

# ÉCOLE THÉMATIQUE

## L'optique non linéaire et ses matériaux

Agelonde – Complexe résidentiel de France Télécom  
La Londe les Maures (Var)

du 29 juin au 11 juillet 1998



**Société Française d'Optique**  
**Centre National de la Recherche Scientifique**



7 avenue du Hoggar, PA de Courtabœuf, B.P. 112, 91944 Les Ulis cedex A, France

First pages of all issues in the series are available at:  
<http://www.edpsciences.org>

# Collection de la Société Française d'Optique

placée sous la direction de Pierre Chavel  
assisté de Jean-Claude Saget

---

## *Volumes précédents parus à EDP Sciences*

- 1 **Optoélectronique** (Vol. I) *P. Chavel*
- 2 **Optoélectronique. Composants de l'électronique logique** (Vol. II) *F. Devos*
- 3 **Systèmes optiques** *G. Roblin*
- 4 **Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales** *C. Fabre et J.P. Pocholle*
- 5 **Optique instrumentale** *P. Bouchareine*

## *À paraître*

**Élaboration et caractérisation des cristaux massifs et en couches minces pour l'optique** (École du 23 au 27 avril 2001)

*B. Boulanger*

ISBN : 2-86883-507-4

Tous droits de traduction, d'adaptation et de reproduction par tous procédés, réservés pour tous pays. La loi du 11 mars 1957 n'autorisant, aux termes des alinéas 2 et 3 de l'article 41, d'une part, que les "copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé du copiste et non destinées à une utilisation collective", et d'autre part, que les analyses et les courtes citations dans un but d'exemple et d'illustration, "toute représentation intégrale, ou partielle, faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite" (alinéa 1er de l'article 40). Cette représentation ou reproduction, par quelque procédé que ce soit, constituerait donc une contrefaçon sanctionnée par les articles 425 et suivants du code pénal.

© EDP Sciences 2000

## **COMITÉ DE PROGRAMME ET D'ORGANISATION**

<b>Jean-Michel Jonathan</b>	Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Orsay
<b>Roland Lévy</b>	IPCMS-GONLO Strasbourg
<b>Pierre Chavel</b>	Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Orsay
<b>Jean-Claude Saget</b>	Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Orsay

### **L'école a bénéficié du soutien des organismes suivants :**

Centre National de la Recherche Scientifique

Ministère de l'Éducation Nationale, de la Recherche et de la Technologie

GDR « Matériaux pour l'optique non linéaire »



## PRÉFACE

Avec l'avènement du laser, des effets optiques nouveaux, dépendant de l'intensité de la lumière, ont été mis en évidence. On les regroupe sous le terme d'« optique non linéaire ». Parce qu'ils autorisent l'interaction entre faisceaux lumineux par l'intermédiaire des milieux qu'ils traversent, ils permettent d'imaginer l'opération tout optique de dispositifs, en particulier dans le domaine des télécommunications et du traitement du signal. Les effets paramétriques permettent par exemple de concevoir des amplificateurs sans bruit. Des besoins tels que la protection laser ou le contrôle non destructif amènent à rechercher des effets nouveaux ou à adapter ceux existants.

Les matériaux pour l'optique non linéaire sont de natures très différentes.

Les semi-conducteurs sont parmi les plus étudiés. Le confinement électronique par réduction de dimensionnalité est utilisé pour renforcer leurs non-linéarités optiques. Les matériaux « bidimensionnels » sont représentés par les structures à puits quantiques et les super-réseaux. Les matériaux à « zéro dimension » (ou boîtes) sont pour l'essentiel réalisés, dans des matrices transparentes, sous forme d'inclusions nanocristallines, essentiellement constituées de semi-conducteurs II-VI ou d'agrégats métalliques.

- Les cristaux photoréfractifs inorganiques restent la référence pour les matériaux non linéaires fonctionnant à faible illumination. Ils sont disponibles dans une gamme de longueurs d'onde s'étendant du proche ultraviolet au proche infrarouge. La diversité de leurs caractéristiques et leur robustesse en font des acteurs essentiels dans le développement actuel des fonctions de l'optique non linéaire.

- Les composants organiques occupent une place croissante. Les polymères peuvent constituer, à faible coût, des matériaux photoréfractifs performants, permettant d'obtenir de fortes efficacités de diffraction et de forts couplages entre faisceaux lumineux, dans des dispositifs d'holographie dynamique. Solides organiques, mais aussi cristaux et verres organiques, cristaux liquides, etc. sont d'autres exemples de nouveaux matériaux étudiés.

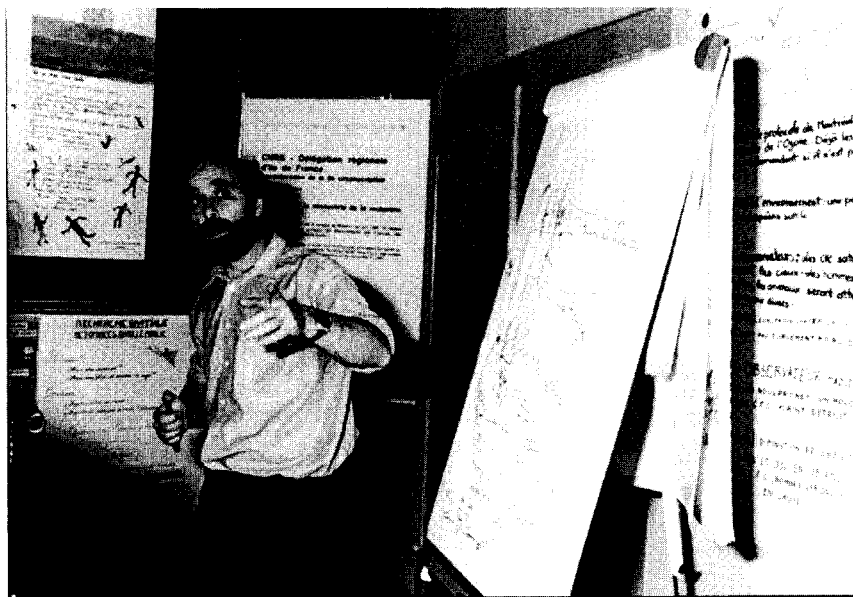
Le champ d'application potentiel de l'optique non linéaire est lui-même très vaste.

Les fonctions de l'optique non linéaire s'étendent du mélange de fréquences et à ses applications dans les lasers et les oscillateurs optiques paramétriques, au traitement de l'information par manipulation de faisceaux et d'images, en passant par toutes les applications de l'interférométrie et de l'holographie dynamique. Elles concerneront aussi bien les applications en propagation guidée, qu'en propagation libre.

C'est dans cet esprit, que le GDR « Matériaux de l'optique non linéaire » a contribué à la mise en place de l'école thématique « L'Optique Non Linéaire et ses Matériaux » organisée

par la Société Française d'Optique et la Formation Permanente du CNRS - Ile de France - Sud.

Cette école s'est tenue à La Londe Les Maures (Var) du 29 juin au 11 juillet 1998. Elle y a réuni près de 25 stagiaires autour des formateurs et organisateurs. Outre des sessions scientifiques animées pour lesquelles nous remercions ici tous les participants, chacun a apprécié la qualité et la convivialité des échanges. Que tous les intervenants soient ici remerciés pour la qualité de leurs exposés et tout particulièrement ceux qui ont pu mener à terme le long travail de rédaction des chapitres qui constituent ce volume.



Cette école a été tout particulièrement marquée par une personnalité hors du commun qui nous manque aujourd'hui. Richard Planel avait accepté la tâche redoutable d'initier des non-spécialistes à la compréhension des propriétés optiques linéaires et non linéaires des hétérostructures de semi-conducteurs. Il a préparé ce cours avec l'acharnement que nous lui connaissons dans toutes ses actions. Malgré les souffrances qu'il endurait déjà, il nous a donné à tous une leçon de courage et de passion, oubliant sa douleur au fur et à mesure qu'il se laissait prendre par son exposé. Nous lui dédions ce recueil. Cette école d'été a, sans conteste, été la sienne.

Roland Lévy  
Jean-Michel Jonathan

## SOMMAIRE

### Cours

Propriétés optiques des semi-conducteurs et de leurs hétérostructures R. Planel.....	3
Les nanocristaux semi-conducteurs ou boîtes quantiques D. Ricard.....	73
Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire B. Hönerlage.....	89
Effets non linéaires en optique guidée G. Vitrant.....	157
Effets non linéaires et fluctuations quantiques É. Giacobino.....	185
Quasi-accord de phase et interactions non linéaires en optique intégrée M. De Micheli.....	203
L'effet photoréfractif G. Pauliat et G. Roosen.....	235
Holographie spectro-temporelle J.-L. Le Gouët.....	333
Correction dynamique des distorsions de faisceaux laser par interactions non linéaires A. Brignon.....	351

### Exposés de stagiaires

Couches minces fabriquées par sol-gel pour des applications en optique non linéaire J. Fick, A. Martucci et M. Guglielmi.....	393
Influence de la saturation des niveaux d'impuretés sur la dynamique de la luminescence de couches épitaxiées de nitrure de gallium H. Haag, B. Hönerlage, P. Gilliot et R. Lévy.....	397

<b>Index des auteurs.....</b>	<b>401</b>
-------------------------------	------------

<b>Liste des participants.....</b>	<b>403</b>
------------------------------------	------------

<b>Liste des cours et des exposés de stagiaires.....</b>	<b>407</b>
--	------------





## **COURS**



## **Propriétés optiques des semi-conducteurs et de leurs hétérostructures**

R. Planel

*Laboratoire de Microstructures et de Microélectronique (L2M), UPR-CNRS, BP. 107,  
92225 Bagneux cedex, France*

**Résumé :** Je pense, dans ce chapitre, présenter l'essentiel de ce qu'un opticien doit savoir pour utiliser à bon escient les « matériaux » semi-conducteurs, avant d'approfondir son propre sujet. Il est donc d'abord question des propriétés optiques linéaires, secondairement de diverses causes possibles de non-linéarités. Enfin, je n'oublie pas qu'aujourd'hui, chacun doit avoir présent à l'esprit la possibilité de réaliser, souvent à la demande, des hétérostructures de basse dimensionnalité. Les plus courantes aujourd'hui restent les structures bidimensionnelles, que je présente plus en détail. Beaucoup sont facilement réalisables ; de plus elles représentent encore l'optimum de ce qu'il est possible de faire en matière de « génie des hétérostructures ». Les structures à zéro dimension font l'objet, sur un exemple particulier, d'un chapitre différent dans ce livre.

### **1. INTRODUCTION**

Les semi-conducteurs ne sont pas avant tout des matériaux pour l'optique. On les définit d'abord, dans le vaste domaine de la physique des solides, par leur conductivité, intermédiaire entre celle des métaux et des isolants ; et surtout par sa dépendance en température, la conductivité étant thermiquement activée. Au plan des applications, c'est d'abord d'électronique qu'il s'agit. On pourra, pour s'en convaincre, compter le nombre de pages consacrées aux propriétés optiques des semi-conducteurs dans des livres de physique des solides classiques de niveau 3<sup>ième</sup> cycle (Kittel [1], Ashcroft-Mermin [2]), ou même dans un livre plus centré sur la physique des semi-conducteurs et des composants (Mathieu [3]).

Cependant, ces livres sont très recommandables à ceux qui souhaiteront approfondir ce chapitre introductif dans les domaines de la théorie des bandes et des propriétés électriques. Celui d'Henry Mathieu va beaucoup plus loin que les deux autres dans le domaine des composants (il est, de plus, écrit en français). Ces dernières années ont cependant vu apparaître plusieurs cours où les propriétés optiques des semi-conducteurs sont beaucoup mieux traités (Haug et Koch [4], Klingshirn [5], Yu et Cardona [6]). Je recommande en particulier ce dernier. On pourra d'abord y combler des lacunes de ce cours-ci, par exemple sur les phonons. De plus afin de pouvoir ici aller à l'essentiel, j'ai choisi d'y renvoyer le lecteur plus curieux, pour des calculs plus rigoureux ou des situations plus complexes, sous la forme suivante : [YC p. ...] ; dans la mesure du possible, j'ai essayé d'utiliser les mêmes notations. Le livre de Klingshirn est plus expérimental, plus centré sur l'optique, mais plus qualitatif. Celui

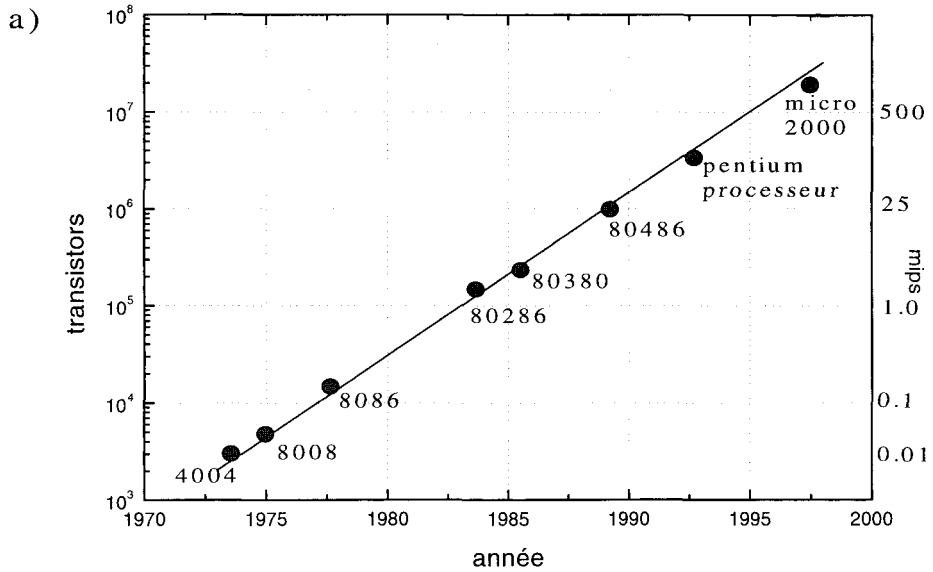
de Haug et Koch est beaucoup moins complet, mais il sera très utile à qui veut établir les liens théoriques avec l'optique non linéaire classique.

Dans ce cours en français, je n'ai pas cherché à citer systématiquement les premiers auteurs de travaux classiques comme il aurait convenu dans un article de revue. De plus, il faut être conscient de la concurrence internationale aiguë qui marque ces sujets, avec de très nombreux doublons et une surpublication dramatique. Une véritable revue raisonnée, citant tout ce qui est digne d'intérêt sur ce que j'aborde dans ce cours compterait probablement plusieurs centaines de publications, avec beaucoup de travaux américains, japonais et, en Europe, allemands. Face à ce problème, j'ai choisi de citer en priorité les travaux français (et proches) lorsqu'ils étaient au niveau de qualité international. De plus je leur ai volontiers emprunté des figures et des résultats. C'était plus commode pour moi, mais cela présente aussi l'intérêt de favoriser les prises de contact, voire les collaborations, pour les lecteurs qui voudraient aller plus loin. Dans cet esprit, je dois faire un peu de publicité pour les actes du *Symposium Claude Benoit à la Guillaume* [7], où une bonne part de la communauté française des opticiens des semi-conducteurs et quelques collègues étrangers proches se sont réunis en hommage à ce pionnier. À cette occasion, de nombreux articles de synthèse ont été écrits avec plus de recul que les publications primaires.

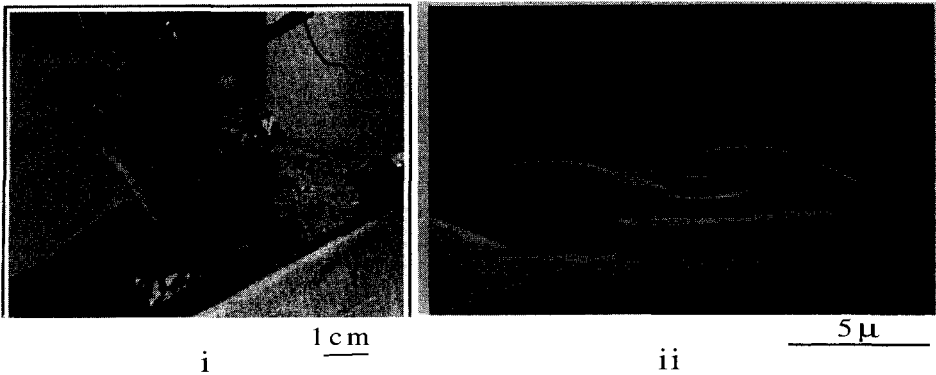
Venons-en maintenant au sujet. Dans l'enseignement académique, on se place assez vite dans le cadre de la théorie des bandes, associée à l'état cristallin, pour dire qu'un semi-conducteur est un isolant à faible bande interdite (gap); avec « faible », on précise généralement quelques kT (énergie thermique à la température ambiante). Mais en réalité, les matériaux étant rarement très purs, c'est surtout à l'énergie de liaison des porteurs de charge sur les impuretés, donneurs ou accepteurs, qu'il faut s'intéresser. Et le critère d'un " bon " semi-conducteur serait plutôt que les états électroniques des bandes sont " bien " délocalisés sur de très nombreux sites, avec une largeur de bande importante et donc une masse effective faible, de l'ordre de ou inférieure à celle de l'électron libre. Dans la suite, nous pourrions donner un contenu plus objectif à ces notions. Mais il en résulte que les états électroniques conduiraient bien s'ils étaient effectivement peuplés d'électrons (dans la bande de conduction) ou de trous (dans la bande de valence). Tel est, je pense, le critère essentiel pour un semi-conducteur. Et alors, le diamant avec son gap supérieur à 5eV, apparaît un bon semi-conducteur, comme, naturellement InSb (gap 0.17eV) ou GaAs (gap 1.4 eV). Dans ces conditions, l'intérêt premier des semi-conducteurs est dans la possibilité de moduler grandement la densité de ces porteurs (de charge), en jouant sur la température, mais surtout sur le dopage (concentration d'impuretés électriquement actives), ou encore, dans un dispositif, par un champ électrique appliqué ou une illumination. De cette faculté découle l'importance de l'industrie de la microélectronique, avec ses caractéristiques qui donnent le tournis : un marché de centaines de milliards de dollars, la miniaturisation des circuits par l'intégration de millions de transistors par  $\text{cm}^2$ , le pas élémentaire du dessin des circuits qui a franchi, il y a déjà plusieurs années, la barre symbolique du micron. De plus toutes ces évolutions se font au rythme d'une loi exponentielle empirique, énoncée par Moore il y a trente ans, et qui depuis se vérifie sous les yeux ébahis de l'ensemble des spectateurs, et des acteurs eux-mêmes (Cf. fig.1.1). Et cette industrie aux retombées sans équivalent dans l'histoire a aussi ses faiblesses : le gigantisme des investissements et l'inertie de la fabrication, qui rendent difficile d'y introduire des innovations ne s'inscrivant pas dans les voies prévues.

Cependant, les progrès de la technologie, stimulés par cette course à l'intégration et à la miniaturisation, ont eu aussi des retombées dans des domaines plus éloignés des applications, voire fondamentaux. Ce furent les premières réalisations d'hétérostructures dans les années 1970, et, aujourd'hui, la maturité impressionnante de certaines techniques (l'épitaxie par

exemple), l'audace de certaines autres (les techniques de champ proche). Le nombre de communications consacrées aux hétérostructures à la Conférence Internationale sur la Physique des Semi-Conducteurs a cru exponentiellement de moins de 5 jusqu'en 1978, à 200 vers 1988, représentant environ 50% des contributions. Depuis, ce pourcentage a tendance à saturer. À celle de Montpellier, en 1982, Pierre Aigrain a parlé d'une *nouvelle jeunesse pour*



b)



**Figure 1.1 :** a) Loi de Moore, donnant le nombre typique de transistors par puce au cours des années. b) Transistors : i) le premier transistor, de taille centimétrique, 1947, Bell Laboratories ii) un transistor expérimental d'aujourd'hui, le MHBT (Metal Heterojunction Bipolar Transistor), 1993, L2M-CNRS.

les semi-conducteurs. Aujourd'hui, on ne peut parler des *matériaux* semi-conducteurs sans y associer les *microstructures* qu'il est possible de réaliser avec ; ce qui est vrai, aussi, dans le domaine de l'optique. D'autre part, les applications envisagées pour les propriétés optiques des semi-conducteurs sont de plus en plus nombreuses. Enfin, la démarche du physicien s'en

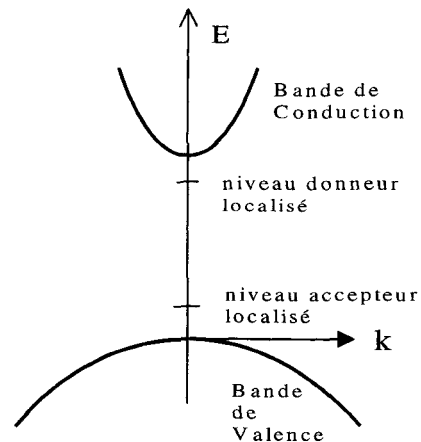
est trouvée renouvelée et les semi-conducteurs ont ouvert la voie à une généralisation de cette démarche dans les autres familles de matériaux, en particulier les métaux magnétiques.

### 1.1 Propriétés électriques

La théorie quantique des solides, qui dans un premier temps se place dans le cadre d'une approximation à un électron, établit donc que les états électroniques y sont groupés en bandes, ce qui les oppose aux atomes. Dans ces bandes, les divers états se distinguent par un vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , assimilable au moment cinétique. Dans un semi-conducteur, ou un isolant, la dernière bande peuplée (bande de valence, BV) l'est complètement, ce qui entraîne, par le principe de Pauli, qu'il n'y a pas place pour un changement d'état, donc un changement de moment tel qu'une accélération provoquée par un champ électrique. Quant à la première bande vide (bande de conduction, BC), elle l'est aussi complètement, et donc, il n'y a rien à accélérer. La température, ou l'excitation optique par des photons d'énergie supérieure au gap, activant la promotion d'électrons de la BV à la BC, changent en principe cette situation de blocage électrique. Mais c'est surtout le dopage avec des impuretés électriquement actives qui est d'une immense importance pratique.

Le paradigme du donneur est un atome d'arsenic noyé dans le cristal de silicium, et occupant la place d'un atome du matériau hôte, tétravalent. Étant pentavalent, une de ses liaisons ne sera pas satisfaite. Il dispose donc d'un électron supplémentaire, qui se trouve être faiblement lié. À température finie, cet électron sera donc disponible pour peupler des états de conduction. Pour décrire la situation (Cf. fig.1.2), on représente les états électroniques supplémentaires par un niveau "donneur", situé un peu en dessous de la bande de conduction, et donc susceptible d'être vide à température ambiante. De façon symétrique, un accepteur, par exemple du bore dans Si, liera un trou à l'état neutre, mais sera susceptible d'être ionisé à température ambiante, autorisant un courant électrique de trous. Ces états localisés ne sont évidemment pas caractérisés par un  $\mathbf{k}$  unique comme les états des bandes. Cependant, ils sont souvent d'énergie proche d'un extremum de bande, et sont donc construits par combinaison linéaire des états de bande avec une forte prédominance des états proche de l'extremum. Ils peuvent alors être décrits dans le cadre de l'*Approximation de la Fonction Enveloppe* (EFA) que nous utiliserons sur l'exemple des hétérostructures bidimensionnelles (2D).

Une fois connues les densités d'états de valence et de conduction d'une part, de donneurs et d'accepteurs d'autre part, la répartition des charges à l'équilibre se décrit donc à toute température par une fonction d'occupation de Fermi-Dirac. Elle se caractérise très synthétiquement par une température, bien entendu, et par un potentiel chimique, couramment



**Figure 1.2 :** Représentation des états électroniques du semi-conducteur dans un schéma à un électron, sur des "courbes de dispersion": énergie  $E$  en fonction du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ . Les niveaux d'impureté localisés n'ont pas de  $\mathbf{k}$  bien défini.

appelé niveau de Fermi,  $E_F$ . Pour l'essentiel, on peut retenir que  $E_F$  se situera aux environs de la BC dans un matériau dopé par des donneurs (de type n), et de la bande de valence s'il est dopé par des accepteurs (de type p). Il n'est jamais inutile, même pour un opticien, de comparer le dopage de son matériau, ou ce qu'il peut en connaître, aux densités de photoporceurs créés par l'illumination.

Dans un matériau pur, intrinsèque,  $E_F$  sera situé dans le gap, équilibrant les densités d'électrons et de trous, en tenant compte des densités d'états différentes. Mais cette dernière situation est moins courante que celle des matériaux "semi-isolants", où ont été introduits plus ou moins volontairement des centres profonds, qui fournissent une densité suffisante de niveaux isolés dans le gap pour interdire la conduction. En effet, mis à part le silicium, dont la technologie est très bien contrôlée, le dopage des semi-conducteurs courants comme GaAs ne se contrôle bien que dans les gammes  $10^{15}\text{cm}^{-3}$  à  $10^{19}\text{cm}^{-3}$ . Quant aux plus exotiques, il faut être prudent et modeste. Dans le cas de couches minces ( $\sim 1\ \mu\text{m}$ ) épitaxiées sur un substrat nécessairement beaucoup plus épais ( $500\ \mu\text{m}$ ), c'est dans la couche mince qu'a lieu l'effet physique intéressant pour la recherche fondamentale (effet Hall quantique) ou pour les applications (transistor). Il est donc impératif d'assurer que le courant ne passe pas dans le substrat. C'est une des servitudes de la technologie.

Une autre de ces servitudes, que les opticiens ont parfois tendance à oublier, est l'existence d'une surface assez mal contrôlée elle aussi. À la surface d'un semi-conducteur, les états électroniques sont modifiés profondément : liaisons pendantes, éventuelles reconstructions (ces liaisons pendantes se réarrangent), adsorption d'éléments étrangers (l'oxygène est un bon candidat), tout cela nous permet tout juste de soupçonner l'immense champ d'intérêt de la physique des surfaces [8]. Mais tout cela peut dépendre des conditions de préparation, de conservation de l'échantillon... en bref, c'est assez incontrôlable, et la passivation des surfaces de semi-conducteurs est un sujet de recherche en soi.

## 1.2 Un exemple de dispositif électronique : le MES-FET GaAs

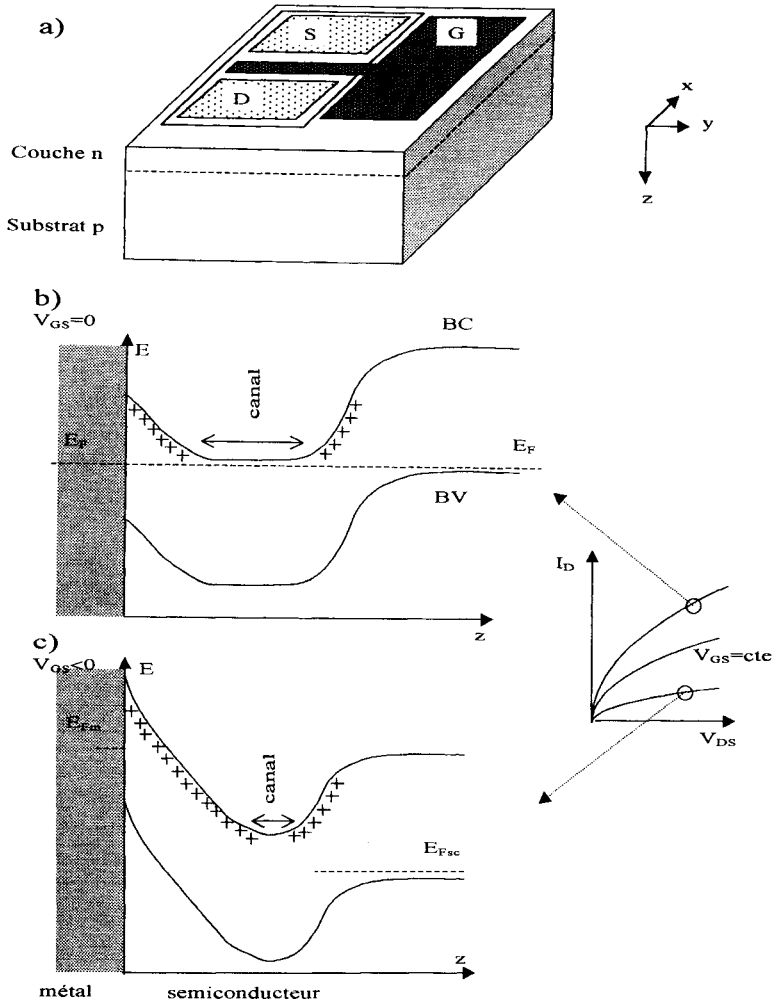
Plutôt que d'explorer toutes les configurations possibles, ce qui irait bien au-delà des ambitions de cette présentation, nous pouvons nous intéresser au fonctionnement d'un dispositif électrique parmi d'autres, qui nous donnera un aperçu des possibilités offertes par la microélectronique, nous permettra de voir concrètement comment utiliser la notion de niveau de Fermi et introduira une mise en garde aux opticiens.

Il s'agit d'un transistor à effet de champ de type "électrode métallique/semi-conducteur", plus connu sous son acronyme anglais MES-FET (Cf. fig. 1.3 a). Il s'agira de GaAs, un matériau effectivement utilisé en microélectronique (beaucoup moins que le silicium), mais que nous rencontrerons souvent dans ce cours d'optique. La couche active est épaisse, par exemple de  $1\ \mu\text{m}$ , dopée n, typiquement à  $10^{17}\text{cm}^{-3}$ . Pour qu'elle soit effectivement la seule couche active électriquement, nous avons déjà vu qu'il faut qu'elle soit déposée sur un substrat semi-isolant ou, dans le cas présent, de type p. Le niveau de Fermi s'égalisant entre couche active et substrat, la bande de conduction remontera vers l'intérieur de la structure, formant barrière au passage des électrons (Cf. fig. 1.3 b).

Que se passe-t-il maintenant à la surface? Dans GaAs, il se trouve le plus souvent que la surface comprend de très nombreux états situés à peu près au milieu du gap, disons  $V_S$  en dessous de la bande de conduction ; par très nombreux, il faut entendre une densité surfacique suffisante pour fixer le niveau de Fermi à cette énergie, quel que soit l'apport (réaliste) d'électrons dû au dopage. Il en résulte que la couche active doit fournir des électrons pour

maintenir l'équilibre, sur une profondeur dépendant du dopage. C'est la couche *désertée*, ou *zone de charge d'espace*.

Pour estimer sa profondeur, et le champ électrique qui y règne, plaçons nous dans l'approximation la plus simple : la densité de charge est pour l'essentiel celle des donneurs



**Figure 1.3 :** a) Schéma d'un MES FET. On distingue la source S et le drain D reliés par le canal C, qui passe sous la grille G. b) Profil de bande en fonction de la profondeur  $z$  à  $V_G = 0$  : la région n conduit. c) Profil de bande à  $V_G < 0$  : la région n est désertée.

ionisés :  $\rho = +eN_d^+$ . En intégrant deux fois l'équation de Poisson, la chute de potentiel dans la zone désertée est donc une fonction quadratique de la profondeur  $z$  :

$V = (+eN_d^+ / 2\epsilon\epsilon_0) (z - z_0)^2$  où la profondeur de la couche désertée est  $z_0$ . On en déduit :

$$z_0 = (2V_S\epsilon\epsilon_0 / eN_d^+)^{1/2} \quad (1.1)$$



Pour fixer les idées, on peut noter que, dans GaAs,  $V_s$  est de l'ordre de 0.7 eV, et  $z_0$  vaut environ 0.1  $\mu\text{m}$  pour un dopage  $N_d \sim 10^{17} \text{cm}^{-3}$ .

Le transistor est fabriqué à partir d'une telle couche (Cf. fig. 1.3 a). On la contacte (*source* et *drain*) avec des électrodes métalliques déposées sur des parties surdopées localement à quelques  $10^{18} \text{cm}^{-3}$ , et généralement recuites pour fournir un contact ohmique. La physique des contacts est complexe, mais on peut se contenter de vérifier que le courant passe... Par contre, l'électrode de commande, la *grille*, consiste en un dépôt métallique plus délicat, qui va respecter l'intégrité du semi-conducteur. À l'équilibre, c'est-à-dire sans tension de grille appliquée, les deux niveaux de Fermi du métal et du semi-conducteur vont s'aligner. En l'occurrence, sur GaAs, il reste fixé sur les états de surface du milieu du gap. Chaque matériau fournira donc les charges nécessaires à cet équilibre. Du côté semi-conducteur, cela amène la création de la zone de charge d'espace, comme on vient de le voir. Du côté du métal, la densité électronique est de l'ordre de  $10^{22} \text{cm}^{-3}$ ; donc les perturbations de la structure de bande y sont imperceptibles. Il résulte de cet équilibre la formation d'un profil de potentiel pour les électrons très asymétrique : il s'agit d'une diode Schottky, redresseuse car le courant reste faible sous tension de grille négative, et croît rapidement sous tension positive. Le fonctionnement du dispositif est simple à comprendre dans son principe. Une tension négative appliquée sur la grille n'injectera que peu de porteurs, mais déséquilibrera les deux niveaux de Fermi, qui restent définis dans le métal d'une part, et dans la profondeur du semi-conducteur d'autre part, car tant qu'il reste des charges mobiles, le champ est négligeable. Ce n'est pas le cas dans la zone désertée, hors d'équilibre. Celle-ci s'élargira, diminuant la conductivité (Cf. fig. 1.3 c). On peut donc contrôler, pour l'essentiel, un courant avec une tension sous haute impédance.

Cette discussion nous permet d'introduire une mise en garde. En se référant à l'expression (1.1), on voit que la zone de charge d'espace d'une structure GaAs varie de, typiquement, 1  $\mu\text{m}$  pour un dopage de  $10^{15} \text{cm}^{-3}$ , à 30 nm pour  $10^{18} \text{cm}^{-3}$ . Et le champ électrique au milieu de cette zone, variera corrélativement de 10 kV/cm à 300 kV/cm. Ce champ peut être non négligeable dans la discussion de nombreux effets électro-optiques et non linéaires. Surtout, il est susceptible d'être écranté par la photo-injection de porteurs ; il suffit pour cela que la densité injectée soit comparable à la densité d'impuretés. Ce sera encore une source de non-linéarité ; encore faut-il en être conscient. L'exemple que nous venons de donner concerne un matériau bien contrôlé, bien connu, probablement le meilleur de ce point de vue hormis le silicium. Dans la plupart des autres cas, on ne pourra pas en savoir tant. Mais un problème mal contrôlé ne peut pour autant être ignoré.

### 1.3 Propriétés optiques des semi-conducteurs

Chacun sait que les semi-conducteurs sont transparents pour les photons d'énergie inférieure au gap. Les semi-conducteurs sont donc d'abord des isolants, avec un gap entre les derniers états peuplés et les premiers états vides (si l'on néglige les états d'impuretés). Mais, de même que pour leurs propriétés électriques, les propriétés optiques des semi-conducteurs usuels, reposent sur l'existence d'états électroniques bien délocalisés. C'est ce qui fait cet ensemble de matériaux si riche et qui a donné lieu à tant d'études originales. Ainsi, les excitations élémentaires du cristal seront au premier ordre, des paires électron-trou. De même, un état lié de donneur ou d'accepteur, relativement peu profond, sera assez semblable aux états

délocalisés (au sens où l'EFA y est applicable), et relèvera de l'approche de type "semi-conducteurs", à laquelle est consacré ce cours.

Par contre, les états d'impuretés "profondes" dans les solides, ce qui veut dire d'énergie très différentes des bandes, ne gardent plus guère de souvenir des états délocalisés des bandes. Il faut, pour rester pertinent, les considérer plutôt comme des atomes, isolés, mais placés dans un environnement de symétrie réduite. Dans la tradition académique, ils relèvent plutôt de "l'optique des solides".

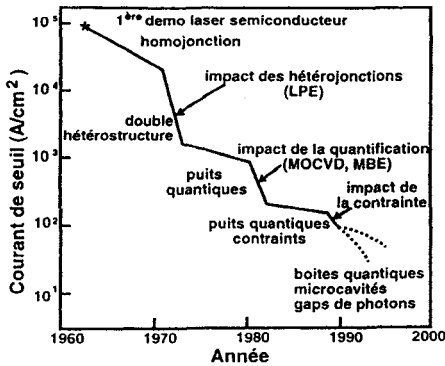


Figure 1.4 : Évolution de la densité du courant de seuil des lasers à semi-conducteurs au cours des années. (D'après C.Weisbuch, [10])

Au plan des applications, il faut d'abord citer le laser à semi-conducteurs, lui aussi très différent du laser solide de type YAG, par, justement, l'organisation des états en bandes qui permet le pompage électrique direct. Les mérites du laser à semi-conducteurs sont la miniaturisation et la rapidité de modulation, qui ouvrent à l'optique tout un champ d'applications pour la transmission de l'information. Ces qualités essentielles sont liées à la densité de courant au seuil, dont on peut mesurer les progrès sur la figure 1.4, progrès essentiellement dus à l'utilisation d'hétérostructures. Il a été décidé, dans cette École d'Été de ne pas aborder le sujet des lasers à semi-conducteurs, déjà bien traité dans le même cadre [9]. Mais du traitement

optique du signal, il sera par contre beaucoup question dans cette École, puisque c'est un domaine d'applications important pour l'optique non linéaire, avec ou sans fibres optiques. Enfin, il ne faut pas négliger les applications des semi-conducteurs dans le domaine de l'affichage, qui pourrait représenter des marchés considérables et pourtant mettre en jeu les derniers développements de la physique et de la technologie.

Il est courant, en matière d'optique, de comparer les semi-conducteurs aux atomes. Évidemment, on gagne en compacité pour l'interaction entre matière et rayonnement. De plus, on le sait, la propagation du champ dans la zone de transparence est aussi considérablement affectée par la densité de matière, et on en rend compte par un indice de réfraction. Nous verrons aussi qu'on trouve, dans les semi-conducteurs, une situation de couplage fort avec la lumière sans équivalent dans les milieux plus dilués (Cf. la sous-section 4.7 sur les polaritons excitoniques). Dans la zone de transparence, lorsqu'on reste suffisamment éloigné de la résonance avec le gap, beaucoup de propriétés optiques sont assez bien décrites par un modèle d'oscillateur de Lorentz, auquel sont éventuellement associées des non-linéarités. On peut à ce propos se demander ce que devient la notion de force d'oscillateur dans un solide.

Dans un atome, la force d'oscillateur  $f_{if}$  associée à une transition d'énergie  $E_{if}$ , notion éminemment quantique, représente, en quelque sorte, la "fraction d'électron" de l'oscillateur de Lorentz classique affectée à cette transition particulière. La susceptibilité optique est

$$\chi(\omega) = -\frac{ne^2}{m\epsilon_0} \sum_{i,f} \frac{f_{if}}{\omega^2 - \omega_{if}^2 + 2i\gamma_{if}\omega_{if}} \text{ avec la règle de somme : } \sum_f f_{if} = 1, \text{ dont la}$$

signification est claire : la force d'oscillateur totale, associée à l'ensemble des transitions du

système quantique, rejoint celle de l'oscillateur classique. Dans un atome, une transition particulière possède donc une force d'oscillateur (quantité sans dimension)  $f \sim 0,1$ .

Un semi-conducteur est constitué d'environ  $N_{\text{at}} = 10^{23}$  atomes/cm<sup>3</sup>. Les transitions optiques entre bande de valence et bande de conduction peuvent, dans une certaine mesure, être vues comme dérivées des transitions atomiques. Donc, elles sont affectées d'une force d'oscillateur globale, par unité de volume, de l'ordre de  $f \cdot N_{\text{at}} \sim 10^{22}$  cm<sup>-3</sup>. Mais ces transitions, parce que nous sommes dans un semi-conducteur, sont élargies comme les bandes, de l'ordre de  $\Delta B \approx 10$  eV. En d'autres termes, la force d'oscillateur  $f$  "par atome" se trouve diluée sur chaque site en une force d'oscillateur par paire électron-trou (accessible optiquement). Il est donc souvent plus utile d'introduire la notion de force d'oscillateur par unité de volume et d'énergie. En moyenne, elle est de l'ordre de  $10^{21}$  cm<sup>-3</sup> eV<sup>-1</sup>. Mais, la densité d'état de paires électron-trou n'est pas constante. On le verra, elle varie en bas de bande avec l'énergie comme  $E^{1/2}$  dans les matériaux massifs (3D). En supposant cette variation sur toute la largeur de bande (ce qui est osé), on montre facilement que, dans un intervalle d'énergie  $\Delta E$  au dessus du gap, se trouve répartie une force d'oscillateur  $F_{\Delta E} = f \cdot N_{\text{at}} (\Delta E / \Delta B)$ .  $F$  sera donc  $3 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> pour les premiers 10 meV,  $10^{19}$  cm<sup>-3</sup> pour les premiers 100 meV.

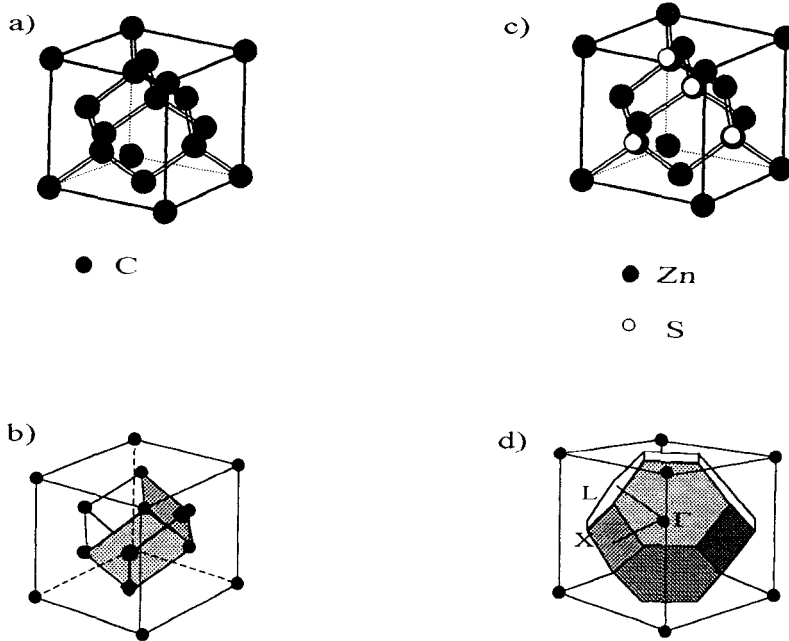
Nous le verrons, cette force d'oscillateur de bas de bande est en fait regroupée sur une *transition excitonique discrète*, située à la distance  $R$  ( le *Rydberg* ) au dessous du gap. Lui est associée une force d'oscillateur suivant la loi ci dessus, soit :  $F_{\text{exciton}} = f \cdot N_{\text{at}} (R / \Delta B)^{3/2}$ . Au passage de cette transition, on trouve donc un pic d'absorption et l'effet sur l'indice de réfraction est notable. Il s'agit là d'un effet fondamental pour les propriétés optiques des semi-conducteurs du moins à basse température. Ces dernières années, la réalisation d'hétérostructures a rendu possible l'observation de cet effet à température ambiante dans beaucoup de matériaux où ce n'était pas le cas, en particulier les semi-conducteurs III-V. L'effet a donc été popularisé bien au-delà du cercle étroit des spécialistes fundamentalistes, jusque dans le domaine de la physique du dispositif.

Quel est le domaine de validité du modèle d'oscillateur de Lorentz pour un semi-conducteur? Autrement posée, la question devient : quand peut-on moyenniser les subtilités de la structure de bande? Ce sera le cas loin de la résonance avec le gap, ou bien aux échelles de temps très courtes, lorsque l'incertitude en énergie rend floues les dites subtilités. Le même type de raisonnement pourra s'appliquer pour savoir jusqu'à quel point il convient de connaître le détail des niveaux des hétérostructures. On en déduit *a contrario* que toute la richesse des matériaux semi-conducteurs et de leurs hétérostructures s'exprimera en optique non linéaire au voisinage des résonances et aux échelles de temps relativement longues.

## 2. STRUCTURE DE BANDE ET PROPRIÉTÉS GÉNÉRALES DES SEMI-CONDUCTEURS MASSIFS

Après les considérations de symétrie qui vont suivre, nous pourrions dans le cadre restreint de ce cours considérer la structure de bande des semi-conducteurs comme donnée par des calculs et des expériences qui ne nous intéressent que secondairement. Il est cependant utile pour l'optique d'avoir une vision qualitative de l'origine des bandes. C'est pourquoi je présenterai d'abord la méthode des "liaisons fortes", avant de donner une classification grossière des divers matériaux semi-conducteurs.

Plus tard, nous verrons que la démarche de "l'ingénieur en structure de bande" est au coeur de la physique des hétérostructures. Pour cet ingénieur, il faut des outils quantitatifs, même s'ils sont de validité plus limitée. Ce sont la méthode de perturbation  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  de Kane et le hamiltonien de Luttinger, qui seront présentés au paragraphe 3.3.



**Figure 2.1 :** a) La structure cristalline du diamant (mais aussi de Si et Ge) est formée de deux réseaux cubiques à faces centrées (cfc) décalés. b) Un réseau cfc avec sa cellule unité, contient donc deux atomes dans le diamant. c) Ces deux sous-réseaux portent des atomes différents dans le cas de la blende de zinc (mais aussi de GaAs, CdTe,...). d) Le réseau réciproque est cubique centré. Notez les points de haute symétrie  $\Gamma, X, L$ , au centre ou au bord de la 1<sup>ère</sup> zone de Brillouin (Emprunté à Yu et Cardona[6]).

## 2.1 Considérations de symétrie

Pour aborder le problème de la structure électronique des semi-conducteurs, il est d'usage, comme en physique atomique, de se placer d'abord dans le cadre de l'approximation à un électron. Cette approximation, où l'action des noyaux et des autres électrons est représentée par un champ moyen est étonnamment efficace. On met ensuite en avant la périodicité du réseau pour expliquer le regroupement des états électroniques en bandes. Ce n'est peut-être pas vraiment indispensable, car les alliages désordonnés et même les matériaux amorphes ont des structures de bandes finalement assez proches des solides parfaits ; mais c'est bien commode pour préciser la forme générale des fonctions d'onde, grâce au théorème de Bloch.

Dans un cristal, par définition, le potentiel effectif  $V$  auquel est soumis l'électron est périodique, ce qui s'exprime par  $V(\mathbf{r} + \mathbf{R}_n) = V(\mathbf{r})$  où  $\mathbf{r}$  est le vecteur position de l'électron, et  $\mathbf{R}_n$  un vecteur quelconque de translation qui laisse le réseau invariant. On sait que cette

proposition est équivalente à  $\mathbf{R}_n = \sum_i n_i \mathbf{a}_i$  où les  $\mathbf{a}_i$  sont les vecteurs de base d'une cellule unité (ou "maille") et les  $n_i$  sont des entiers (Cf. fig. 2.1 a et b. Notez que la maille n'est pas le cube).

Le hamiltonien total,  $H = \mathbf{p}^2 / 2m_0 + V(\mathbf{r})$  ayant la même propriété d'invariance par translation que  $V(\mathbf{r})$ , le théorème de Bloch n'exprime rien d'autre que la proposition suivante : il existe un ensemble de fonctions propres de l'énergie et des translations du réseau. Des propriétés du groupe des translations du réseau, on déduit aisément [YC p.16] que les valeurs propres des translations  $T(\mathbf{R}_n)$  affectent la forme  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_n)$ , où  $\mathbf{k}$ , vecteur d'onde, est défini à un vecteur du réseau réciproque près. La notion de *réseau réciproque* s'impose facilement dans le problème. C'est le réseau des vecteurs d'onde  $\mathbf{g}$  tels que  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}_n = 2\pi N$  ( $N$  entier). L'espace des  $\mathbf{k}$  est donc lui aussi périodique, et l'on connaîtra toute la physique en n'explorant qu'une seule cellule unité du réseau réciproque, la zone de Brillouin (ZB). On trouvera sur la figure 2.1d une esquisse de la 1<sup>ère</sup> zone de Brillouin d'une structure blende de zinc faisant apparaître quelques points remarquables qu'il est utile de savoir repérer.

Si l'on choisit donc comme base l'ensemble commode formé par les fonctions propres des translations, chaque élément  $\psi(\mathbf{r})$  en sera caractérisé :

- par les valeurs propres des opérateurs translations  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_n)$ .
- par d'autres nombres quantiques, symbolisés par l'indice  $\lambda$ .

Alors,  $\psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r} + \mathbf{R}_n) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ , qui ne diffère de  $\psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$  que par un facteur de phase, et qui est aussi fonction propre du hamiltonien avec la même valeur propre.

Satisfont à cette relation plusieurs formes de fonctions d'onde commodées, et d'abord la fonction "de Bloch" :

$$\psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = V^{-1/2} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (2.1)$$

où  $u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$  est invariante par les translations  $T(\mathbf{R}_n)$ , donc a la même périodicité que le cristal. De plus,  $V$  est le volume du cristal, et la fonction d'onde est normalisée à 1 sur ce volume, ce qui impose la normalisation des  $u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$  à 1 sur la maille élémentaire.

Pour prendre en compte le caractère fini du cristal, il est traditionnel d'imposer des conditions aux limites périodiques, du type  $\psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r} + \mathbf{L}_i) = \psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ , où  $\mathbf{L}_i = N_i \mathbf{a}_i$  est la longueur totale du cristal dans la direction  $i$ . Cette démarche, dite de Born-von Karman (BVK), est la plus élégante au plan mathématique pour rendre compte des situations physiques où la taille (macroscopique) du cristal ne peut influencer sur les propriétés microscopiques. Comme souvent, il faudra faire preuve d'un peu de sens physique pour trouver les critères du « macroscopique ». Ce sera le cas lorsque la cohérence quantique des fonctions d'onde ne peut être maintenue en pratique sur aucune des dimensions du cristal. Dans le cas contraire, où la taille du cristal est plus petite, au moins dans une direction, que cette longueur de cohérence, tout en restant assez grande par rapport à la maille élémentaire pour justifier l'approche de Bloch, on parle de méso-, micro- ou nano-structures. Alors, il faut bien sûr imposer aux fonctions d'onde des conditions aux limites adéquates : pour un nano-cristal isolé, ce sera l'annulation aux bords ; dans les hétérostructures, comme nous le verrons, ce seront d'autres plus subtiles mais qualitativement équivalentes.

En tout cas, l'effet de ces conditions aux limites est de limiter la densité des  $\mathbf{k}$  possibles et donc, à l'intérieur d'une zone de Brillouin, de limiter leur nombre. On montre aisément que le nombre total de  $\mathbf{k}$  possibles et physiquement différents est égal au nombre de cellules unités.

La première ZB est de dimension typique  $2\pi/a$ , où  $a$  est la dimension de la maille élémentaire. Ces remarques permettent de connaître la densité d'états  $\rho$  par unité de volume de l'espace réciproque. On se restreindra pour l'instant à un matériau massif, 3D. Alors :  $\rho(\mathbf{k}) = (L/2\pi)^3$ , de sorte qu'on a bien :  $\int_{1^{\text{ère}} \text{ ZB}} \rho(\mathbf{k}) d^3\mathbf{k} = (L/a)^3$ .

La densité d'états par unité d'énergie est une autre quantité importante. En supposant par anticipation une loi de dispersion parabolique  $E = \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m$ , il vient :

$$\rho(E) dE = (L/2\pi)^3 2\pi (2m/\hbar^2)^{3/2} E^{1/2} dE \tag{2.2}$$

$m = \quad 3/2 \quad \quad 1/2 \quad \quad -1/2 \quad \quad -3/2$

BC:  
S=1/2

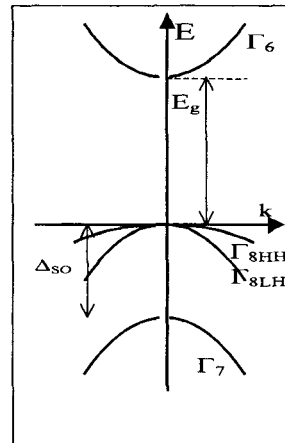
$s\uparrow \quad \quad s\downarrow$

BV:  
J=3/2

HH  $x,\uparrow$       LH  $1/\sqrt{3}(x,\downarrow + \sqrt{2}z\uparrow)$       LH  $1/\sqrt{3}(x,\uparrow + \sqrt{2}z\downarrow)$       HH  $x,\downarrow$

J=1/2

$1/\sqrt{3}(z\uparrow - \sqrt{2}x,\downarrow)$        $1/\sqrt{3}(z\downarrow - \sqrt{2}x,\uparrow)$



**Figure 2.2 :** Fonctions propres du moment angulaire total, formant la base des états électroniques de centre de zone dans les semi-conducteurs cubiques usuels de type ZnS, GaAs, ... On a posé  $X_{\pm} = (X \pm iY)/\mp\sqrt{2}$ . La 1<sup>ère</sup> bande de valence ( $J = 3/2$ ) est dégénérée en  $k = 0$ , mais se sépare en trous lourds (HH) et légers (LH) en dehors.

## 2.2 Aperçu sur la méthode des liaisons fortes

Les calculs de bandes par la méthode des liaisons fortes sont fondés sur les mêmes idées que la méthode des combinaisons linéaires d'orbitales atomiques en chimie. Nous allons l'appliquer de façon irréaliste (Cf. la mise en garde 2.2.4.1), mais pédagogique, au cas d'un matériau extrêmement ionique, et avec toutes les approximations confortables, pour comprendre qualitativement la construction de la structure de bande avec le minimum d'effort.

### 2.2.1 Orbitales atomiques

Considérons donc un matériau très ionique, du type de la blende de zinc ZnS, dont la structure cristalline sert de paradigme à celle de la plupart des semi-conducteurs composés usuels. La liaison chimique peut se comprendre au premier abord en utilisant la vieille "règle de l'octet" : les deux électrons  $4s^2$  du zinc viennent compléter la couche  $3s^2, 3p^4$  du soufre. On a donc une

dernière couche pleine  $p^6$  qui va donner naissance aux bandes de valence, puis, à plus haute énergie, une première couche vide  $s^0$  qui donnera la bande de conduction. En ce qui concerne cette dernière, les deux états par cellule unité correspondent évidemment à la dégénérescence de spin. Pour les premières, trois orbitales  $p$  pointent selon les trois directions  $x,y,z$ , non arbitraires dans un cristal cubique. Elles sont douées d'un moment orbital et, tenant compte du spin, nous savons que les bons états sont ceux du moment angulaire total,  $J = L + S$ .

Les états "atomiques" de départ seront donc convenablement caractérisés par leurs deux nombres quantiques du moment angulaire total, quantifié le long de la direction  $z$ . On les écrit comme sur la figure 2.2. Les notations qui y sont employées sont particulièrement adaptées à l'étude des transitions optiques entre bandes de valence et de conduction, avec leurs règles de sélection de polarisation. Selon les auteurs, on trouvera  $s, p_x, p_y, p_z, p_+, p_-,$  ou bien, respectivement,  $S, X, Y, Z, X^+, X^-$ , ces notations de la partie orbitale de la fonction d'onde étant éventuellement complétées par l'état de spin  $\uparrow, \downarrow, (\uparrow + \downarrow)/\sqrt{2}$ , etc...

Dans les atomes, déjà, la dégénérescence est levée par l'interaction spin-orbite entre les quatre états  $J = 3/2$  et les deux états  $J = 1/2$ . Les premiers sont repoussés à haute énergie, et les seconds à basse énergie (on parle parfois de bande *split-off*). La force de l'interaction spin-orbite est liée à la charge du noyau. Elle varie donc beaucoup avec le numéro atomique de l'anion et, de fait, explique en grande partie les variations de gap entre semi-conducteurs d'une même famille à cation commun.

### 2.2.2 Formation des bandes

Revenons maintenant à la formation des bandes, dans une optique de liaison forte. Toute la physique est dans le recouvrement des orbitales atomiques  $\varphi_\lambda(\mathbf{r})$  de sites voisins, qui donne une pertinence à des combinaisons linéaires délocalisées, ayant les propriétés de symétrie appropriées à des fonctions d'onde du cristal. Compte tenu donc du théorème de Bloch, la proposition la plus simple est :

$$\Psi_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = L^{-3/2} \sum_{\mathbf{n}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_n} \varphi_\lambda(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \quad (2.3)$$

qui devrait être fonction propre du hamiltonien du cristal :

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\hbar^2 \nabla^2 / 2m_0 + \sum_i V_0(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \quad (2.4)$$

où  $m_0$  est bien la masse de l'électron libre,  $V_0$  est le potentiel "atomique", localisé, et où la somme court sur toutes les cellules du cristal. Pour simplifier à l'extrême, nous négligeons tout couplage entre différents niveaux "atomiques". C'est la raison pour laquelle nous n'avons pas sommé sur les indices de niveau  $\lambda$ . Nous négligerons aussi tous les termes de couplage autres qu'entre premiers voisins, et nous supposons les fonctions atomiques orthogonales entre elles, ce qui assure que les fonctions (2.3) sont déjà correctement normées. Alors, l'énergie associée à chaque fonction propre s'écrit :

$$E_{\lambda,\mathbf{k}} = V^{-1} \sum_{\mathbf{n},\mathbf{m}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_m)} \int \varphi_\lambda(\mathbf{r} - \mathbf{R}_m) \mathbf{H}(\mathbf{r}) \varphi_\lambda(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) d^3\mathbf{r}$$

qui se décompose en :

$$E_{\lambda, \mathbf{k}} = V^{-1} \sum_{n,m} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_m)} \left[ \delta_{n,m} (E_{\lambda} + \sum_{\pm 1} \int \varphi_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{n\pm 1}) V_0(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \varphi_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{n\pm 1}) d^3\mathbf{r}) \right. \\ \left. \delta_{n\pm 1, m} \int \varphi_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_m) V_0(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \varphi_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) d^3\mathbf{r} \right] \quad (2.5)$$

+ termes d'ordre supérieurs...

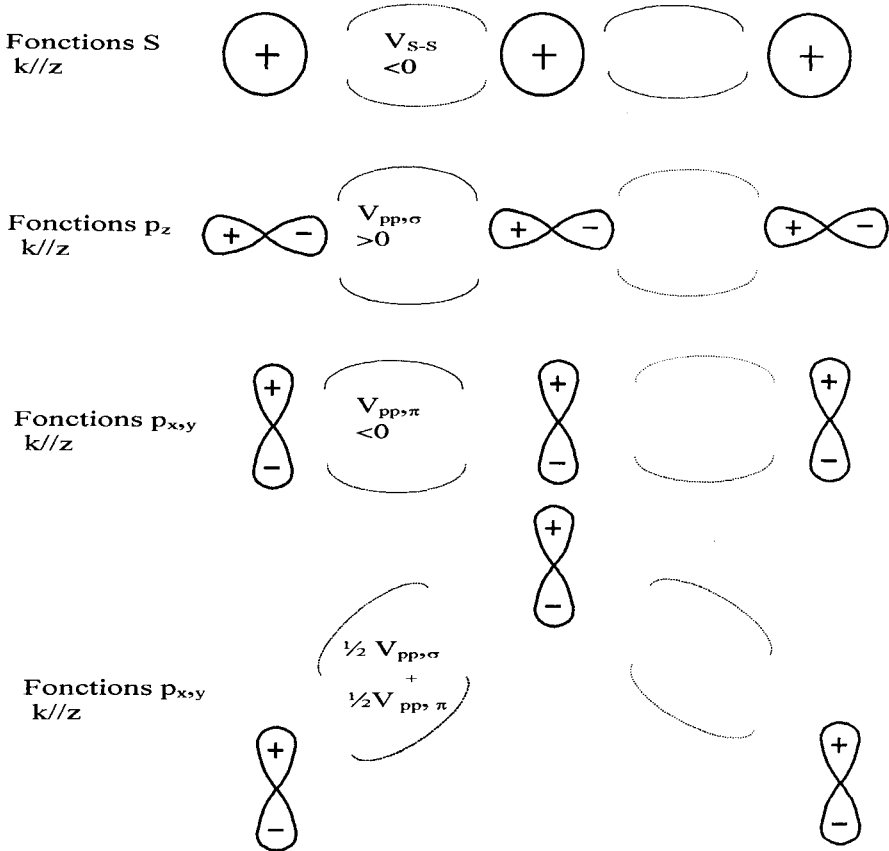


Figure 2.3 : Schéma de quelques configurations de recouvrement entre orbitales S et P, et conséquences qualitatives sur le terme de couplage V.

Les deux premiers termes, diagonaux, représentent l'énergie  $E_{\lambda}$  des états "atomiques" abaissée par le couplage. Ils sont indépendants de  $\mathbf{k}$  de par la condition  $\delta_{n,m} = 0$  sauf si  $m = n$ .

Le troisième (et on s'en tiendra là en négligeant les suivants) est non diagonal et représente le couplage  $V_1$  entre premiers voisins (intégrale de recouvrement). Il dépend bien sûr du détail du potentiel, des fonctions "atomiques" de base, de leur direction (je pense aux fonctions p), et de la symétrie du réseau cristallin. Par exemple, dans le cas d'un réseau



cubique simple et pour une direction de  $k$  parallèle à un des côtés de la maille, il vient facilement :

$$E_{\lambda, \mathbf{k}} = E'_{\lambda} + V_1 \sum_{n, m} \delta_{m, n \pm 1} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_m)} = E'_{\lambda} + V_{\lambda, \mu} \cos ka \quad (2.6)$$

où l'indice  $\mu$  sera différent pour une liaison s-s, p-p,  $\sigma$  ou p-p,  $\pi$  (Cf. fig. 2.3).

### 2.2.3 Quelques enseignements de portée générale

On peut maintenant voir quelles leçons tirer de cette théorie très simplifiée. Pour la discussion, il est utile de visualiser la situation, schématisée sur la figure 2.3.

2.2.3.1 Pour chaque niveau atomique, ou moléculaire, discret, les  $N$  états localisés dégénérés des atomes découplés se sont répartis, avec l'introduction du couplage, en  $N$  états délocalisés, repérés par un indice  $k$  qui a la signification d'un vecteur d'onde. Pour s'en convaincre, observons la fonction d'onde de type liaison forte (éq.2.3), elle-même très proche d'une forme "de Bloch"  $e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \sum_n \varphi_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n)$ . Seule la partie exponentielle dépend explicitement de  $k$ . Aux

faibles valeurs de  $k$ , elle est lentement variable à l'échelle de la maille, au contraire de la partie périodique. Tout se passe donc comme si l'électron sautait d'un site à l'autre. Cependant, la relation  $E(k)$ , parabolique aux petits  $k$ , s'exprime par une masse effective, qui n'a rien à voir avec celle de l'électron libre, mais dépend du recouvrement  $V$  :

$$m^* = \hbar^2 / 2V_{\lambda, \mu} a^2 \quad (2.7)$$

On le voit, un fort couplage entre atomes adjacents induit une grande largeur de bande, une faible masse effective, et donne plus de "corps physique" à cette réalité abstraite des états délocalisés. J'y reviens, c'est sans doute là que réside le bon critère de distinction entre semi-conducteur et isolant, plus que dans la largeur du gap.

2.2.3.2 De même que l'hybridation des orbitales dans une molécule diatomique donne deux états liant et antiliant d'énergies différentes, de même les  $N$  états de Bloch qui forment la bande passent continûment d'un caractère à l'autre quand  $k$  augmente. À partir du signe de l'élément de matrice de couplage, on se convainc aisément que pour les états s (de la bande de conduction), l'état de Bloch de  $k = 0$  a l'énergie la plus basse. La situation est opposée pour les liaisons p-p,  $\sigma$  de la bande de valence, dont la courbure est négative. Les mêmes résultats se retrouvent en considérant les variations spatiales de la fonction d'onde, qui doivent être minimisées pour abaisser l'énergie. (Cf. fig. 2.3)

2.2.3.3 Les divers états de valence, classés selon leur moment orbital, ont un comportement très différents. Considérons par exemple (figure 2.2) les états  $|3/2, \pm 3/2\rangle$ , le moment orbital étant quantifié selon la direction  $k//z$ . Ils vont donner naissance à une bande relativement étroite (grande masse effective), car le couplage sera pour une bonne part de type  $\pi$ . Par contre, pour les autres états  $|3/2, \pm 1/2\rangle$  et  $|1/2, \pm 1/2\rangle$ , les orbitales  $p_z$  pointeront en partie les unes vers les autres, introduisant plus de caractère  $\sigma$  dans la liaison et une masse effective plus légère.

Pour une discussion quantitative de ces effets, il vaut mieux considérer la structure zinc-blende que cubique simple [YC p.78]. Cependant, nous voyons déjà apparaître la distinction entre une bande de trous lourds et deux bandes de trous légers (les deux premières étant dégénérées en  $k = 0$ ). Mais nous voyons aussi combien cette classification est dépendante de la direction de  $\mathbf{k}$ . Une orbitale  $X^+$  sera "lourde" le long de  $k_z$ , en partie légère dans une direction perpendiculaire. Cette remarque n'est pas sans importance dans deux cas que rencontre souvent l'opticien :

- Les cas d'excitation optique à haute énergie au dessus du gap : même dans le cas 3D, les paires électrons trous créées sont réparties dans l'espace des  $k$  en nappes de formes non évidentes, et qui dépendent de la polarisation (Cf. paragraphe 4.2.1).

- Et surtout les structures bidimensionnelles, qui introduisent une direction de croissance privilégiée par rapport à laquelle tout est obligé de s'organiser : le vecteur d'onde, mais aussi le moment cinétique de rotation (Cf. section 3).

## 2.2.4 Pour aller plus loin

La portée de la discussion précédente peut-être étendue au-delà de cette approximation "liaison forte et très ionique", dont l'intérêt est plus pédagogique que quantitatif, et ceci dans deux directions indépendantes.

**2.2.4.1 Vers les matériaux covalents** La structure de bande d'un semi-conducteur élémentaire comme le germanium, de structure "diamant", peut se comprendre comme suit : la maille élémentaire comprend toujours deux atomes par maille, mais identiques. La formation des bandes peut être décomposée en deux temps. D'abord une hybridation  $sp^3$  de type moléculaire, puis l'élargissement en bandes par couplage d'une maille à l'autre. En pratique (YC p.91), les bandes de valence sont issues des orbitales  $p$  liantes et la bande de conduction des orbitales  $s$  antiliantes, et la "règle de l'octet" prévoit un isolant. Il en est de même pour les semi-conducteurs III-V et II-VI à gap direct les plus usuels (GaAs, CdTe,...), et en pratique les plus utilisés aujourd'hui pour la fabrication d'hétérostructures. Ce sont ces exemples qu'on aura en tête dans la suite de ce cours. Par exemple, les symétries des états de bande,  $s$  et  $p$  discutées plus haut, avec leurs conséquences qualitatives sur les masses effectives de trou, et aussi sur les règles de sélection des transitions optiques (Cf. parag. 4.2.1), restent des informations pertinentes.

De fait, le caractère covalent de la liaison est prépondérant dans les semi-conducteurs III-V et II-VI, même si l'ionicté prend de l'importance chez ces derniers.

**2.2.4.2 Vers les fonctions de Wannier** La forme "liaison forte" de la fonction d'onde, de type de l'équation 2.3), présente un intérêt plus général. Elle permet de bien visualiser les situations où la localisation des fonctions d'onde joue un rôle important, par exemple autour d'impuretés ou dans les hétérostructures. En réalité, il est toujours possible d'écrire les fonctions de Bloch sous cette forme agréable, en utilisant la base des fonctions de Wannier :

$$\Psi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{\lambda}(\mathbf{r}) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{R}_i} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_i} w_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)$$

où :

$$w_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_i} w_{\lambda}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)} u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i)$$

sont les fonctions de Wannier ainsi définies. Les fonctions de Wannier sont labellées par un indice de bande et par un site du réseau réel, elles sont localisées autour de ce site, elles "ressemblent" à des fonctions atomiques, mais sont orthogonales entre sites voisins. Ce sont, en quelque sorte, les pseudo-fonctions atomiques qu'il faut pour penser en liaison forte tout en restant réaliste, puisque les fonctions de Wannier peuvent être construites sur les "vraies" fonctions d'onde de Bloch.

### 2.3 Des goûts et des couleurs

Il n'est pas question ici de prétendre présenter tous les semi-conducteurs imaginables. En réalité, on s'accorde en général à considérer que relèvent de la "physique des semi-conducteurs" des familles de composés très étudiées, certains disent trop. C'est un fait qu'avec les succès de ces travaux, sans aucun doute stimulés par les applications, on parvient à une précision de la description peu concevable dans d'autres domaines de la "physique de la matière condensée". Toutes proportions gardées, l'académisme de certains problèmes évoque ce qui a pu se faire en physique atomique. Quelqu'intérêt qu'on y trouve, encore faut-il reconnaître l'accomplissement que cela représente. Mais, rançon du succès, il faut reconnaître que pratiquer cette "physique des semi-conducteurs" nécessite un fond de connaissances préalables assez important pour décourager la curiosité à l'extérieur du domaine. C'est une remarque qui a été faite il y a déjà longtemps par J.J. Hopfield, lors de la Conférence Internationale sur la Physique de Semi-Conducteurs en 1972. Cependant, depuis, les progrès de l'expérimentation et de la technologie ont plusieurs fois fourni des occasions de renouvellement profond, permettant de rétablir le lien avec d'autres domaines de la physique.

Après ces explications, je me sens autorisé à réduire ma présentation aux matériaux semi-conducteurs dont, en pratique, il pourra être question dans cette École.

2.3.1 *Le tout premier critère de classification* est évidemment la nature de la bande interdite ("gap"), *direct ou indirect*. Dans le premier cas, les états de base de conduction et de valence sont situés "en face" dans l'espace des  $\mathbf{k}$ , et, le plus souvent, en  $\mathbf{k} = 0$ . L'absorption optique démarrera à cette énergie franchement, sans besoin de phonon intermédiaire pour satisfaire à la conservation du moment total. C'est donc, réciproquement, la configuration privilégiée des matériaux pour dispositifs émetteurs de lumière, *a fortiori* pour lasers. Mais les propriétés optiques des matériaux indirects ne sont pas pour autant à négliger. En effet, d'une part il n'y a pas que des dispositifs émetteurs. Par exemple les cellules solaires, les détecteurs. Ensuite, des impuretés profondes ou des microstructures peuvent modifier significativement les propriétés émettrices d'un matériau indirect (GaP dopé N, Si poreux). En ce qui concerne le silicium, on comprend que les enjeux industriels induisent une pression formidable pour trouver des dispositifs optiques de fabrication compatible avec sa technologie.

Il semble impossible d'expliquer "avec les mains" pourquoi un matériau est direct ou indirect. Il y a l'exemple de la série GaAs (direct)/ GaP (indirect)/ GaN cubique (direct), bien difficile à comprendre simplement. Autre exemple, le silicium présente son minimum de BC à 85% de la ZB dans la direction [001] de l'espace réciproque ; mais dans le germanium, de la même colonne du tableau périodique et qui cristallise de la même façon, ce minimum est situé

au bord de la ZB dans la direction [111]. La raison en est sans doute que les états de grands  $k$  font intervenir des interférences subtiles entre les influences des seconds voisins. Par contre, on comprendra aisément qu'un extremum de bande se situe volontiers en un point de haute symétrie de la zone de Brillouin, en  $\Gamma$  ou, à défaut, en X ou L, avec donc plusieurs vallées dégénérées. Dans ces derniers cas, chacune de ces vallées sera caractérisée par une masse effective très anisotrope.

2.3.2 *Le second critère de classification* important du point de vue de l'optique est bien entendu *la valeur du gap*, qui fixe le domaine de longueur d'onde d'intérêt principal du matériau. De plus (Cf. parag. 3.3.2), la valeur du gap direct n'est pas sans relation avec la masse effective de conduction en cet endroit, et donc avec l'énergie de liaison excitonique, une quantité importante pour beaucoup de phénomènes optiques. En pratique, on se préoccupera peu des phénomènes excitoniques dans les semi-conducteurs à petit gap, typiquement inférieur à 0,5 eV.

2.3.3 *Un troisième critère est l'ionocité*. De façon générale, elle accroît la valeur du gap par rapport à la liaison covalente. Elle accroît aussi l'interaction "de Fröhlich" entre électron et phonon optique longitudinal (LO), qui est médiatisé par le champ électrique. Ce n'est pas sans importance pour la relaxation des porteurs [YC p.125].

Ce critère d'ionocité est en partie relié à la "famille" à laquelle se rattache le semi-conducteur au regard des colonnes du tableau de Mendeleiev (III-V, II-VI...) Mais l'intérêt de cette classification, la plus utilisée, repose surtout sur les contraintes de la technologie et de la fabrication. D'une part, les problèmes métallurgiques sont voisins au sein d'une même famille ; et aussi, ne l'oublions pas, les composants d'une famille sont en général des dopants pour l'autre, donc actifs à l'état de trace. D'autre part, les possibilités d'ingénierie offertes par les alliages et les hétérostructures s'expriment pour l'essentiel au sein d'une même famille, si l'on veut rester dans le cadre confortable de la "physique des semi-conducteurs", où beaucoup de notions communes restent pertinentes. Cet aspect des choses a pris récemment tant d'importance qu'on parle aujourd'hui de la famille des semi-conducteurs IV-IV, pour évoquer la filière Si/Ge/C.

La famille des semi-conducteurs élémentaires comprend certes phosphore, soufre, sélénium et tellure, mais elle est dominée par les éléments IV, le silicium s'étant finalement affirmé hégémonique avec le développement de la microélectronique, probablement pour des raisons technologiques (l'oxyde  $\text{SiO}_2$  étant un isolant et un passivant extraordinaire) et aussi économiques. Le germanium a été également beaucoup étudié. Tous deux sont restés pendant des décennies des paradigmes de la physique des semi-conducteurs, bien qu'ils soient des matériaux à gap indirect, à une époque où les propriétés optiques étaient plutôt négligées. Ils cristallisent dans la structure "diamant", formée de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées (Cf. fig. 2.1). Paradoxalement, dans le domaine des alliages et de l'hétéroépitaxie, la Nature n'a pas été aussi bienveillante pour la filière IV-IV /Si que pour les III-V : les idées furent nombreuses, mais les succès plus rares et, aujourd'hui encore, ces études restent, relativement, peu développées.

Les semi-conducteurs composés III-V ont souvent un gap direct, mais pas toujours, en particulier du côté des grands gaps (AIAs, GaP). Leur structure cristalline est le plus souvent cubique zinc-blende, dérivée donc de la structure "diamant". Ils ont acquis ces dernières

années une grande importance, car se prêtent bien à l'hétéro-épitaxie et à d'autres opérations technologiques (dopage en particulier) nécessaires pour la réalisation de structures artificielles. Ce sont aujourd'hui par excellence les matériaux du "band-gap engineering", et, en particulier, de l'optoélectronique. Les familles de structures les plus étudiées sont :

- la filière élaborée sur substrat GaAs : GaAs/AlGaAs/InGaAs, intéressante dans la région de longueur d'onde 0.7- 0.9  $\mu\text{m}$ , dont la technologie est toujours la plus avancée, et qui sert de banc d'essai à la plupart des nouvelles idées.

- la filière élaborée sur InP : GaInAs/AlInAs/InP, active dans la fenêtre de longueur d'onde 1.3-1.5  $\mu\text{m}$  qui intéresse les télécommunications.

- les nitrures. Plus récemment des succès spectaculaires et inattendus dans le domaine de l'émission bleue ont relancé l'intérêt pour GaN et sa famille. Notons que la forme cristalline usuelle de ces matériaux est hexagonale, de type Wurtzite, comme certains matériaux II-VI.

Avec les semi-conducteurs II-VI et I-VII, l'ionocité est de plus en plus marquée ce qui a de nombreuses conséquences :

- métallurgiques, avec en particulier la difficulté de doper, de prendre des contacts.

- structurales, avec beaucoup de composés à grand gap de structure Wurtzite. Elle est finalement assez semblable à la blende de zinc du point de vue des liaisons élémentaires et la physique est assez proche. Cela abaisse la symétrie, la dégénérescence trous lourds-légers en  $\mathbf{k} = 0$  est levée, ce qui modifie les règles de sélection sans changer fondamentalement les choses. Il faut de plus noter que les phases cubiques de ces composés sont souvent accessibles aujourd'hui en épitaxie "forcée" sur un substrat cubique (croissance pseudomorphique).

- électroniques et optiques avec beaucoup de grands gaps et des effets excitoniques très marqués.

À ces deux familles, on peut adjoindre CuO et Cu<sub>2</sub>O, semi-conducteurs à grand gap bien connus, mais peu remarqués pour leurs perspectives d'application. Notons enfin que les composés II-VI à base de Te, Se, S sont entrés eux aussi, depuis le début des années 80, dans l'ère de l'hétéroépitaxie et des possibilités d'ingénierie qu'elle offre.

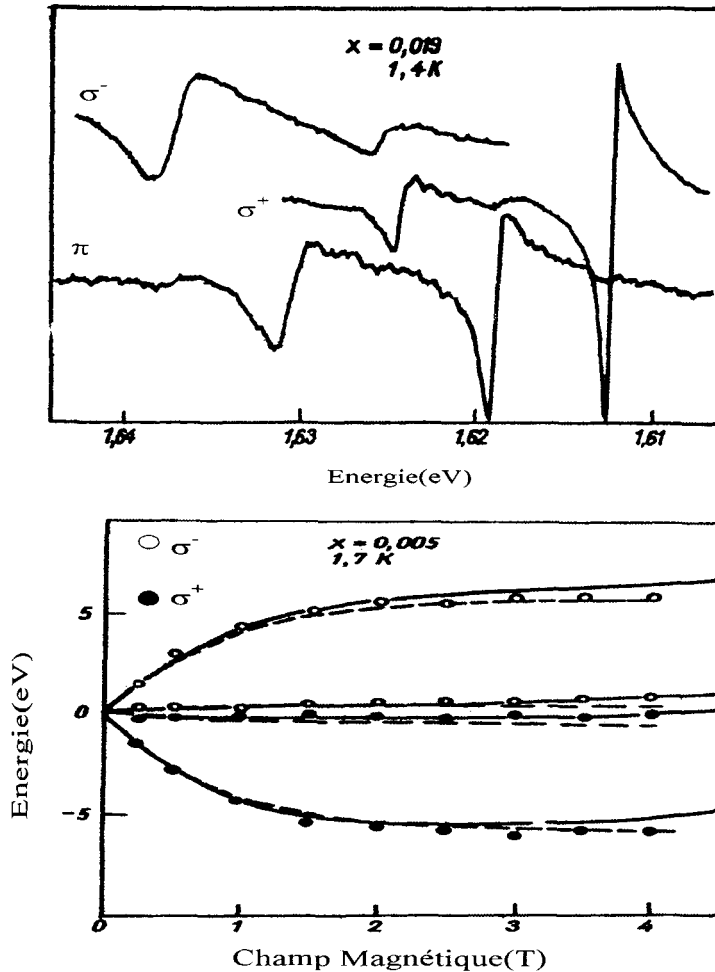
Il faut une mention spéciale pour les composés du mercure. D'une part, la famille des alliages HgCdTe reste remarquablement accordée en maille sur le substrat CdTe. D'autre part, à cause de la très grande masse du cation, pathologique en quelque sorte, HgTe est un semi-conducteur à gap nul et les alliages fournissent donc une palette de gaps ajustables entre 0 et 1,6 eV, avec de grandes possibilités d'application dans le domaine de l'optique infrarouge.

Enfin, citons rapidement quelques composés moins étudiés. Les sels de plomb de type PbS sont aussi des semi-conducteurs à petit gap, direct, mais situé au point L de la zone de Brillouin. Les matériaux III-VI, de type GaSe, sont lamellaires, avec donc une grande anisotropie des propriétés électroniques et optiques.

### 2.3.4 Les semi-conducteurs magnétiques

Sans aller trop loin dans l'exotisme, on ne peut oublier de présenter les semi-conducteurs magnétiques. Les plus étudiés ont d'abord été les matériaux de type EuO, aux propriétés magnétiques intéressantes (ferromagnétisme), issues des couches f de l'euporium. Mais une mention spéciale doit être faite dans cette École aux alliages "semimagnétiques" ou magnétiques dilués (DMS) de type CdMnTe. Leurs propriétés magnétiques semblent moins riches, mais l'introduction progressive du magnétisme permet justement de maintenir leur caractère de "bons" semi-conducteurs, propices à des études assez fines. De plus, ils s'insèrent

bien dans la famille des semi-conducteurs II-VI susceptibles de s'épitaxier les uns sur les autres pour former des hétérostructures alliant des matériaux magnétiques et non magnétiques.



**Figure 2.4 :** a) Spectres de magnétoreflectivité de CdMnTe pour diverses polarisations en configurations Faraday ( $H//k_z$ ,  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) et Voigt ( $H \perp k_z$ ,  $\pi$ ). b) Énergie des transitions en fonction du champ. On reconnaît la loi d'aimantation de Brillouin. (D'après J. Gaj.[12])

L'essentiel de leurs propriétés physiques peut être compris à l'aide des notions présentées jusqu'ici. Pour rester concret, je m'appuierai sur l'exemple de CdMnTe, dont la réputation et l'utilisation ont débordé le cercle des spécialistes. La structure électronique de l'atome manganèse est  $3d^5, 4s^2$ . Du point de vue des couches externes qui participent à la liaison, il peut être considéré comme isoélectronique du cadmium, la couche  $d^5$  incomplète et responsable du magnétisme restant pratiquement non perturbée.

Les états délocalisés des bandes moyennent le potentiel désordonné de l'alliage assez raisonnablement pour rester délocalisés et donc satisfaire la loi de Végard (Cf. parag. 3.1.1).

Le gap  $E_G$  s'accroît, à peu près linéairement, avec la concentration de Mn, et les propriétés du semi-conducteur s'en déduisent sans malice. Dans le cas de  $Cd_{1-x}Mn_xTe$ , on sait incorporer jusqu'à 70% de Mn avant qu'une transition de phase ne perturbe cette vision simple, et on peut écrire :  $E_G(x) = E_G(0) + x\Delta_G$  ( $\approx$ , pour CdMnTe, 1,5 eV + x 0,8 eV)

Quant aux états localisés des couches d, ils sont responsables des propriétés magnétiques. En l'occurrence, CdMnTe est paramagnétique avec une forte tendance antiferromagnétique, qui entraîne à très basse température, un comportement de verre de spin. Dans la plupart des cas, l'aimantation s'exprime en fonction du champ magnétique par une loi de Brillouin modifiée de façon phénoménologique :  $M = N_0 x S_0 B_{5/2}[H/(T + T_{AF})]$  où :

- $N_0 x$  est la concentration volumique de Mn,
- $S_0$  est la valeur effective du spin associée à chaque atome Mn ; aux faibles concentrations, elle vaut 5/2, la valeur de l'atome isolé ; elle diminue avec la concentration, rendant compte en partie de la tendance antiferromagnétique dans ce milieu désordonné.
- $B_{5/2}(H/T)$  est la loi de Brillouin qui décrit le paramagnétisme d'un ensemble de moment 5/2 indépendants [11]. La température  $T_{AF}$ , positive, complète la description de la tendance antiferromagnétique

L'originalité de ces matériaux apparaît quand on en vient aux propriétés magnéto-optiques. Celles-ci se caractérisent par un clivage (splitting) de spin des états de conduction et de valence proportionnel à l'aimantation et vite gigantesque, de l'ordre de plusieurs dizaines de meV par tesla. Souvent, il est légitime de négliger les autres effets associés au champ magnétique, effet Zeeman normal, et quantification de Landau. Cet effet, appelé un peu improprement "Zeeman géant", est dû à l'interaction d'échange entre états d d'une part, s ou p d'autre part. On peut représenter cette interaction par un hamiltonien de type Heisenberg :

$$H_{ex} = \sum_i -J(r-R_i) \sigma \cdot S_i, \text{ où } r \text{ et } \sigma \text{ sont les opérateurs position et spin de l'électron}$$

(délocalisé) des bandes, et  $R_j$  et  $S$  ceux des couches d (localisées) des ions Mn.  $J$  est l'opérateur d'échange s-d ou p-d, selon la bande concernée. Il s'en suit que les extrema de bande sont clivés selon :

$$\Delta_c = N_0 \alpha x \langle S_{Mn} \rangle \sigma_c \text{ pour la bande de conduction, et}$$

$$\Delta_v = N_0 \beta x \langle S_{Mn} \rangle \sigma_v \text{ pour la bande de valence,}$$

où  $N_0$  est la densité de site cation, et  $\alpha$  et  $\beta$  sont respectivement les intégrales d'échange s-d et p-d sur la maille unité, de type  $\langle \Psi | J | \Psi \rangle$ . Dans une théorie de champ moyen tout à fait légitimée par l'expérience, leur valeur est indépendante de la concentration. Elles sont en pratique proches d'un matériau à l'autre.

Pour CdMnTe,  $N_0\alpha = 0,22$  eV et  $N_0\beta = -0,88$  eV. Il est remarquable que le signe de l'échange est opposé pour les deux bandes.  $\langle S_{Mn} \rangle$  est l'aimantation exprimée en valeur moyenne du spin des ions Mn, au maximum 5/2.

$\sigma_c$  (et  $\sigma_v$ ) est la valeur moyenne du spin dans l'état considéré, et non pas la valeur (propre) du moment orbital. Ces deux quantités sont, dans une structure cubique, strictement proportionnelles, comme on peut s'en convaincre sur les fonctions de la figure 2.2. Il n'en va pas toujours de même, et il faudra être prudent, dans un matériau hexagonal ou une hétérostructure.

De ce clivage de spin résultent bien sûr des propriétés magnéto-optiques géantes. En effet, à chaque couple d'états de valence et conduction, états propres du moment orbital, sont associées des transitions optiques sélectionnées en polarisation, comme on l'expliquera plus en détail dans la section 4, et comme l'illustrent les résultats expérimentaux de la figure 2.4.

Ces différences d'énergie entre transitions optiques de polarisations différentes entraînent un dichroïsme et une biréfringence circulaires induits (effet Faraday) eux aussi "géants".

### 3. LES HÉTÉROSTRUCTURES À BASE DE SEMI-CONDUCTEURS

Malgré quelques travaux précurseurs de grande importance, on peut considérer que c'est à la fin des années 70 qu'a vraiment éclaté la révolution des hétérostructures artificielles fabriquées à base de semi-conducteurs. Elle a apporté un renouvellement des thématiques, la multiplication des possibilités et de nouvelles perspectives d'applications. Cela a été possible grâce aux progrès de la technologie, et d'abord de l'épithaxie, et a beaucoup modifié l'exercice du métier de chercheur : il fallut travailler plus à la manière d'un ingénieur, dans des laboratoires richement dotés mais sachant regrouper des équipes pluri-disciplinaires.

Deux livres, pour qui voudra approfondir la physique des hétérostructures bidimensionnelles, restent un bon fondement malgré leur relative ancienneté. En effet, ils ont été écrits après la période la plus féconde du début des années 80. Il s'agit du livre de Bastard [13], surtout intéressant pour regrouper de nombreux résultats théoriques, et du cours de l'École des Houches de 1985 [14], qui présente un spectre plus large de sujets (matériaux contraints, phonons, propriétés de transport...)

#### 3.1 Les fondements

##### 3.1.1 Les alliages

Cette révolution repose d'abord sur les "bonnes" propriétés de beaucoup d'alliages ; il s'agit bien entendu d'alliages semi-conducteurs unissant deux matériaux de la même famille. Le paradigme en est  $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ , où Ga et Al sont isoélectroniques. Je noterai souvent  $\text{GaAlAs}$  lorsqu'il n'y a pas d'ambiguïté. Parmi les plus populaires, il faut citer aussi  $\text{GaInAs}$ ,  $\text{AlInAs}$  et même les quaternaires  $\text{GaAlInAs}$ , accordés en maille sur

$\text{InP}$  (utilisés pour l'optique à 1,3-1,5  $\mu\text{m}$  des télécommunications),  $\text{CdZnTe}$ , (composant de base des hétérostructures II-VI),  $\text{CdMnTe}$  (magnétique dilué),  $\text{HgCdTe}$  (détecteurs infrarouge),  $\text{CdSSe}$  (filtres optiques dans la région du visible),  $\text{SiGe}$  (permettant d'introduire des hétérojonctions dans l'électronique silicium). Au premier ordre, et s'il n'y a pas de transition de phase cristalline, ils se comportent comme des matériaux de propriétés moyennes, interpolées linéairement entre celles des deux parents : c'est la *loi de Vegard*, qui concerne les paramètres de maille, mais aussi les énergies des bandes et tout ce qui en découle plus ou moins (masses effectives, constante diélectrique...). Il faut cependant prendre la

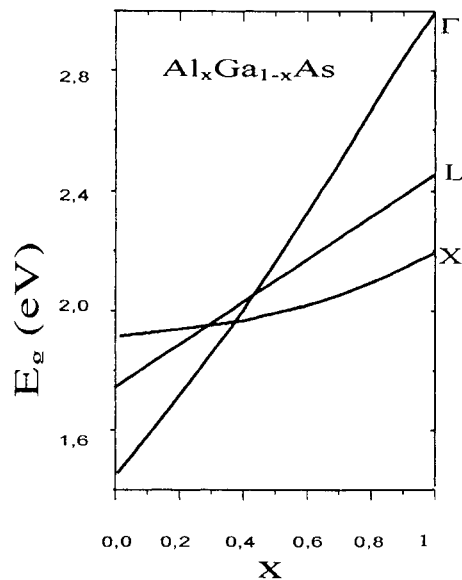


Figure 3.1 : Variation de l'énergie des minima  $\Gamma$ , X et L pour l'alliage désordonné  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  en fonction de  $x$ , à  $T = 300\text{K}$ . L'origine des énergies est prise au sommet de la bande de valence. L'intersection des courbes associées à  $\Gamma$  et X est située vers  $x = 0,4$ . On remarque un écart à la loi linéaire de Vegard, appelé "bowing".



précaution de comparer ce qui est comparable, c'est-à-dire les propriétés des bandes aux mêmes points de la zone de Brillouin. On le voit sur la figure 3.1 dans le cas de GaAlAs.

Cette loi, lorsqu'elle s'applique aux propriétés électroniques implique que les états soient bien délocalisés et moyennent les irrégularités du potentiel, les deux aspects étant liés intimement. Alors, les effets d'alliages pourront être soit négligés, soit traités en perturbation. Par exemple, on introduira une contribution supplémentaire à la diffusion des porteurs, ou une largeur en énergie et en  $k$  des courbes de dispersion. Ou bien encore, on raisonnera à partir d'états localisés, sur des distances grandes par rapport à la maille élémentaire ; cela permet de les construire à partir des états délocalisés, dans l'esprit de l'EFA (Cf. parag. 3.1.4).

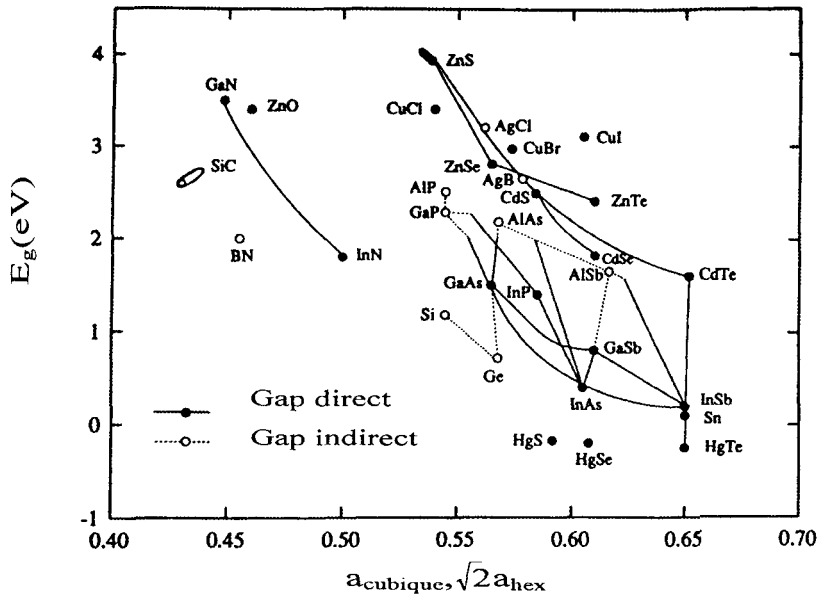
Il faut cependant savoir qu'une foi aveugle en la loi de Vegard peut apporter de grosses surprises. D'une part, certains alliages sont le siège de phénomènes de démixtion des atomes qui conduisent à un ordre spontané ; c'est observé, par exemple, avec l'alliage GaInP, intéressant car épitaxiable sur GaAs sans contenir d'aluminium. D'autre part, certaines substitutions d'éléments isoélectroniques ne se passent pas "bien". C'est le cas, connu depuis longtemps, de l'azote dans GaP, qui forme, à l'état d'impureté, un piège très profond pour les électrons de conduction. La localisation se fait sur une distance qui n'est pas grande par rapport à la maille ; en conséquence, l'état lié mélange des états de toute la zone de Brillouin, ce qui d'ailleurs confère à ce matériau indirect de bonnes propriétés d'émetteur de lumière. Pour des raisons sans doute similaires, les alliages GaAsN, qui sont étudiés depuis peu, comportent des déviations considérables à la linéarité : en partant de GaAs (gap = 1.4 eV), le gap de GaAsN commence par diminuer jusque, semble-t-il, moins de 1 eV avant, probablement, de remonter vers celui de GaN (3 eV).

### 3.1.2 L'épitaxie.

Un autre prérequis pour la physique des hétérostructures est la possibilité de réaliser de bonnes épitaxies. L'épitaxie idéale pourrait être considérée comme une vue de l'esprit, mais c'est un fait que la Nature nous la laisse entrevoir. Elle repose sur la continuité du réseau cristallin au travers de l'interface, celle-ci étant aussi abrupte et plane que possible. Comme pour les alliages, on comprend que dans la plupart des cas, l'épitaxie allie des matériaux de la même famille et aussi de même structure cristalline (le plus souvent cubique zinc-blende). Pour l'ingénieur en structure de bande, des tableaux tels celui de la figure 3.2 sont une source d'inspiration. Source partielle, car il est difficile d'y faire figurer toutes les informations de la structure de bande, gap direct ou indirect, décalage de bande entre les divers matériaux...

La continuité du réseau ne peut être maintenue sur de grandes épaisseurs que si les matériaux ont à très peu près ( $<1/1000$ ) les mêmes paramètres cristallins naturels, c'est-à-dire à l'état massif. C'est le cas pour GaAs, AlAs et leurs alliages et, dans une moindre mesure, pour HgTe, CdTe et leurs alliages. Mais l'utilisation d'alliages de concentration judicieusement déterminée permet de contourner cette difficulté ; les meilleurs exemples en sont  $\text{Ga}_{0.47}\text{In}_{0.53}\text{As}$  et  $\text{Al}_{0.48}\text{In}_{0.52}\text{As}$ , tous deux *accordés* sur InP.

Lorsque le désaccord de maille reste, typiquement, inférieur à 1%, il est souvent possible de faire croître des couches peu épaisses, des puits quantiques par exemple, dont la structure se déforme élastiquement sous l'effet de la contrainte pour adapter les paramètres de maille dans le plan. On parle de *croissance pseudo-morphique*, la structure pouvant rester d'excellente qualité, avec une densité limitée de défauts ponctuels ou étendus. Il n'en est plus de même au-delà d'une épaisseur critique, où la couche minimise son énergie élastique, relaxe plastiquement, en émettant des dislocations. Cette épaisseur critique est, grosso modo,



**Figure 3.2** : Largeur du gap en fonction du paramètre de maille (cubique ou hexagonale) pour divers matériaux et alliages. N'apparaissent pas sur ce genre de schéma des quantités intéressantes comme les décalages de bandes. (Emprunté à C.F.Klingshirn [5] p.147)

inversement proportionnelle à la densité d'énergie élastique stockée, donc au désaccord. Mais comme la génération de dislocation nécessite le franchissement de barrières d'énergie, elle peut être dépassée dans certaines conditions de croissance, laissant la couche contrainte en équilibre métastable. Au contraire, une fois relaxée, la couche contient une densité élevée de dislocations, souvent incompatible avec de bonnes propriétés électroniques et optiques.

Ajoutons ici que le terme pseudo-morphique et les considérations ci-dessus peuvent s'appliquer aussi à d'autres modes de croissances forcées par le substrat, comme des structures cubiques pour un matériau naturellement hexagonal.

Au-delà d'un désaccord de l'ordre du pour cent, on entre dans le domaine des croissances *exotiques*, souvent difficilement prévisibles, mais qui peuvent révéler de bonnes surprises. Par exemple, dans le système InAs/GaAs, caractérisé par un désaccord de maille de 7%, la croissance s'effectue en îlots, sans génération de dislocations. Leur taille est encore imparfaitement contrôlée, mais ce sont de bons exemples de "boîtes quantiques".

Ne nous y trompons pas. Aucune technologie n'est parfaite. L'épitaxie GaAs/GaAlAs a été bien sûr l'objet des études les plus détaillées pour apprécier concrètement les écarts à l'idéalité de la structure. Les résultats dépendent en grande partie de l'expérience en cause. Nous sommes par excellence dans le domaine quantique, où il ne peut être question d'isoler la connaissance de l'objet de la nature de la sonde. Autrement dit, même la *caractérisation* des structures peut mettre en jeu les techniques les plus sophistiquées

Une bonne façon d'appréhender cette réalité est de faire l'historique des études sur la rugosité et la gradualité des interfaces dans ce système école. Depuis la fin des années 70, on sait par des études de photoluminescence que la hauteur moyenne des rugosités d'interface est d'une monocouche. En effet la raie de recombinaison d'exciton était d'une largeur variable avec l'épaisseur du puits, correspondant à l'incertitude introduite par de telles fluctuations de

l'épaisseur [15]. Ceci renforçait l'idée, acquise par les caractérisations *in situ* de diffraction d'électrons par la surface, d'une croissance EJM bidimensionnelle, couche par couche. Puis, on observa [16] non pas une raie large, mais plusieurs raies fines, dont l'écart en énergie correspondait à une monocouche. Il en fut déduit que la taille latérale des îlots d'épaisseur pouvait varier grandement en fonction des conditions de croissance :

- d'une situation "lisse", aux très grands îlots presque découplés électroniquement,
- à une situation "rugueuse", où la taille des îlots est comparable à la longueur des cohérence des excitons.
- et à une situation "pseudo-lisse", à très fine rugosité moyennée comme un alliage.

La longueur de cohérence des excitons a rapidement été assimilée au rayon de Bohr, alors qu'il s'agit d'une notion qui affecte le mouvement d'ensemble de l'exciton, ou de tout autre particule (électron, phonon...). Cette erreur est aujourd'hui ancrée dans le vocabulaire courant, mais a été relevée et a suscité des analyses théoriques du phénomène nettement plus solides [17].

Plus tard, a été mis en évidence [18] le rôle de la gradualité, par le confinement des phonons LO, et qui semble avoir pour origine principale l'échange des atomes dans les deux premières monocouches du front de croissance. Une bonne synthèse de ces questions a pu être réalisée vers le début des années 90 [19], jusqu'à ce que l'avènement récent des techniques de *microluminescence* [20] permettent d'approfondir, ou de compliquer encore les choses.

En résumé, l'épitaxie de couches bidimensionnelles a joué un rôle moteur dans la révolution des hétérostructures, et continue de fournir une majorité des structures pour l'optique. Cependant, il faut mentionner les autres technologies qui l'accompagnent.

### 3.1.3 Les autres technologies.

Ce sont d'abord les techniques de la microfabrication et, en particulier, de la micro-électronique : lithographie optique et électronique, masquage, implantation localisée, gravure chimique ("humide") et ionique ("sèche"). Au laboratoire, elles viennent souvent, mais pas exclusivement, en complément de l'épitaxie pour définir des structures dans le plan, tels que motifs pour les expériences de transport électronique, dispositifs électro-optiques, détecteurs, modulateurs ou émetteurs de lumière, fils et boîtes quantiques. Elles sont souvent assez lourdes, mais relativement contrôlables. Elles sont bien adaptées aux Sciences de l'Ingénieur.

Ensuite, il faut mentionner les usages extrêmes de l'épitaxie pour réaliser des structures de dimensionnalité inférieure à 2. C'est le cas des îlots InAs/GaAs déjà cités, où on utilise astucieusement les tendances naturelles au facettage de la croissance. On parle de croissance "auto-organisée". C'est aussi le cas de la croissance sur surface "vicinale", légèrement désorientée par rapport à un plan principal du réseau. Une telle surface comporte un réseau de marches monoatomiques qui fourniront des sites de nucléation privilégiée aux "adatoms" déposés pendant l'épitaxie. On parvient ainsi, en modulant la nature des "adatoms", à abaisser la symétrie bidimensionnelle de la couche. Dans cette catégorie, on peut aussi ranger la croissance dans des sillons en V préalablement gravés de façon adéquate. On parvient, en jouant sur les différentes propriétés de facettage de GaAs et AlAs, à réaliser des fils quantiques.

Enfin, n'oublions pas tout un ensemble de techniques variées, souvent modestes et astucieuses, qui permettent de réaliser de très beaux objets. On peut citer la manipulation d'atomes par des techniques de microscopie à pointe, et aussi, plus utiles dans le domaine de

l'optique, le remplissage des zéolithes ou des opales. Il y a aussi l'exemple des techniques sol-gel qui permettent de réaliser des nanocristaux noyés dans une matrice transparente.

### 3.1.4 La théorie EFA (Approximation de la Fonction Enveloppe).

C'est un peu par provocation que je cite une théorie parmi les fondements qui ont rendu possible le développement des hétérostructures. Bien entendu, c'est une théorie limitée, nécessairement approximative, parmi d'autres plus fondamentales, plus proches des premiers principes. Mais elle a d'abord le mérite d'être intuitive et utilisable quantitativement par tout expérimentateur. Ensuite elle fournit dans la plupart des cas des résultats numériques de précision suffisante, nous verrons plus loin pourquoi. C'est donc par excellence l'outil de « l'Ingénieur en Structure de Bande », car, en ce domaine, il n'y a guère eu de réalisation sans prévision.

Il est utile dès maintenant d'en présenter le principe sur le cas simple d'une bande présentant un extremum non dégénéré en  $k = 0$ , par exemple la bande de conduction de GaAs et de  $\text{Ga}_{0,7}\text{Al}_{0,3}\text{As}$ . Nous avons vu (éq.2.1) que la forme générale des fonctions d'onde (de Bloch) du cristal infini était :

$$\psi_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = V^{-1/2} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$$

où  $\lambda$  est l'indice de l'extremum et où  $u_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  est périodique, comme le potentiel du cristal, donc rapidement variable à l'échelle de la maille élémentaire. Dans la région de l'espace des  $\mathbf{k}$  proche de l'extremum  $k = 0$ , il est raisonnable de supposer que les fonctions  $u_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  ne dépendent pas de  $\mathbf{k}$  :  $u_{\lambda,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\lambda,0}(\mathbf{r})$ . De plus, l'exponentielle  $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ , appelée fonction enveloppe, est alors lentement variable, et l'énergie des états suit une loi parabolique de masse effective  $E = \hbar^2 k^2 / 2m$ . On peut donc considérer que tout se passe comme si l'électron se déplaçait dans l'espace libre, avec une fonction enveloppe qui joue le rôle de sa fonction d'onde, à deux détails d'importance près : la masse effective  $m$ , et l'énergie potentielle, égale à l'énergie de l'extremum.

Dans une hétérostructure, par exemple un puits quantique bidimensionnel de largeur  $L$  formé du matériau A entre deux barrières du matériau B, l'approximation de la fonction enveloppe consiste à écrire les fonctions d'onde sous la forme :

$$\Psi_{\lambda,n}(\mathbf{r}) = F_{\lambda,n}(\mathbf{r}) u_{\lambda,0}(\mathbf{r}) \quad (3.1)$$

où  $F_{\lambda,n}(\mathbf{r})$  est lentement variable, et  $n$  représente l'ensemble des nombres quantiques qui labellent l'état, comme le faisait le vecteur d'onde dans le matériau massif. Cette fonction enveloppe est fonction propre du hamiltonien effectif  $\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\hbar^2 \nabla^2 / 2m_{\text{eff}}(z) + V_{\text{eff}}(z)$ , avec une énergie potentielle et une masse effective dépendant de  $z$ , la direction de croissance. La signification de cette forme de fonction d'onde est illustrée par la figure 3.3. Ceci repose sur l'hypothèse, forte, que les fonctions rapidement variables sont non seulement indépendantes de  $\mathbf{k}$ , mais aussi les mêmes dans les deux matériaux :

$$u_{\lambda,0}^A(\mathbf{r}) \approx u_{\lambda,0}^B(\mathbf{r}) \quad (3.2)$$

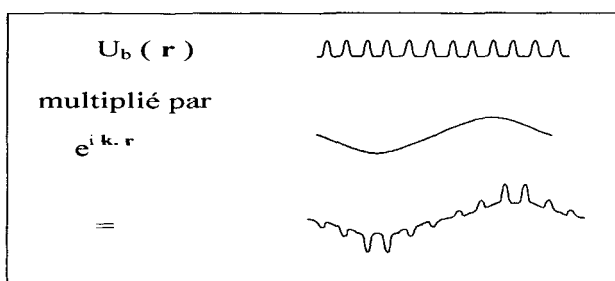
Une autre approche pour introduire l'EFA, parfaitement complémentaire, est encore plus parlante. Elle repose sur l'écriture de la fonction d'onde sur la base des fonctions de Wannier (Cf. paragraphe 2.2.4.2) :

$$\Psi_{\lambda,n}(\mathbf{r}) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{R}_i} F_{\lambda,n}(\mathbf{R}_i) w_{\lambda}^A(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \text{ dans le matériau A} \quad (3.3 a)$$

$$\Psi_{\lambda,n}(\mathbf{r}) = N^{-1/2} \sum_{\mathbf{R}_i} F_{\lambda,n}(\mathbf{R}_i) w_{\lambda}^B(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \text{ dans le matériau B} \quad (3.3 b)$$

et la fonction enveloppe  $F_{\lambda,n}(\mathbf{R})$  sera cette fois la fonction continue de  $\mathbf{R}$ , qui reproduit, en la lissant, la variation des coefficients  $F(\mathbf{R}_i)$ . Mais il faut supposer que les fonctions de Wannier restent une bonne base, donc restent orthogonales en passant d'un matériau à l'autre. Cette condition est équivalente à (3.2) qui affecte les fonctions de Bloch.

Etat délocalisé dans le réseau massif:



Etat localisé dans un puits quantique:

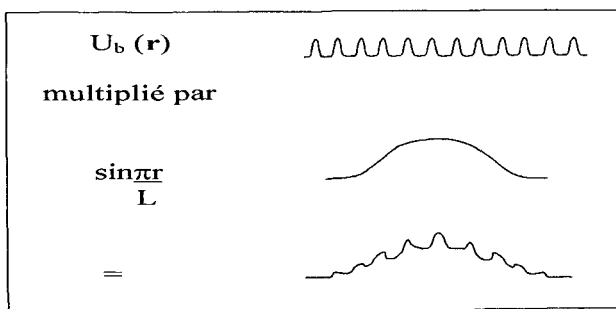


Figure 3.3 : L'esprit de l'Approximation de la Fonction Enveloppe

En tout cas, quelle que soit la façon dont l'EFA est justifiée, on en vient aisément au modèle de Ben Daniel-Duke : la fonction enveloppe est fonction propre de l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2} \frac{\partial}{\partial z} \frac{1}{m(z)} \frac{\partial}{\partial z} - \frac{\hbar^2}{2m_{\perp}(z)} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) + V(z) \right] F(\mathbf{r}) = \epsilon F(\mathbf{r}) \quad (3.4)$$

où il faut remarquer que la masse effective dépendant de  $z$ , l'énergie cinétique est écrite de façon à respecter l'hermiticité du hamiltonien. De plus, on n'exclut pas la possibilité que la

masse effective pour le mouvement dans le plan  $m_{\perp}$  soit différente de la *masse de confinement*  $m$ . C'est souvent une situation à prendre en compte pour les états de valence (Cf. parag. 2.2.3.3).

Les variables  $x$ ,  $y$  et  $z$  se découplent sans difficulté, et la particule est libre dans le plan :

$F(\mathbf{r}) = e^{i(k_x x + k_y y)} \varphi(z) = e^{i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}} \varphi(z)$ . Pour ne pas alourdir les équations, on va se restreindre au cas de deux matériaux A et B formant, par exemple, un puits quantique. La condition de continuité de la fonction d'onde aux interfaces impose évidemment que  $\mathbf{k}_{\perp}$  est le même dans les matériaux A et B. Il vient donc pour le mouvement en  $z$  :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m^{(A \text{ ou } B)}} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{\hbar^2}{2m_{\perp}^{(A \text{ ou } B)}} k_{\perp}^2 + V^{(A \text{ ou } B)} \right] \varphi^{(A \text{ ou } B)}(z) = \varepsilon \varphi^{(A \text{ ou } B)}(z) \quad (3.5)$$

On se trouve face à un problème de mécanique quantique relativement classique. Intéressons-nous aux états liés du puits quantique. Dans le matériau A (puits) l'énergie cinétique en  $z$  est positive, c'est-à-dire :  $T_z^A = E - V - \hbar^2 k_{\perp}^2 / 2m_{\perp}^A > 0$ . Donc les solutions sont des ondes planes de vecteur d'onde  $\pm \kappa = \hbar^{-1} \sqrt{T_z^A / m^A}$  :

$$\varphi^A = a_1 e^{i\kappa z} + a_2 e^{-i\kappa z} \quad (3.6 \text{ a})$$

Par contre, dans les régions B (Barrières) où  $T_z^B < 0$ , ce sont des exponentielles réelles de paramètre  $\pm \tau = \hbar^{-1} \sqrt{-T_z^B / m^B}$  :

$$\varphi^B = b_1 e^{\tau z} + b_2 e^{-\tau z} \quad (3.6 \text{ b})$$

Pour déterminer les fonctions et valeurs propres, on utilise également les conditions aux limites :

- à l'infini, ondes évanescentes, donc  $b_1(z \rightarrow -\infty) = 0$  et  $b_2(z \rightarrow +\infty) = 0$

- aux interfaces, notées  $z = i$ , continuité de la fonction enveloppe et, non pas simplement de sa dérivée, mais du courant  $\text{Im} \left( \varphi^* \frac{\hbar}{m} \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right)$  [21]. Ceci impose :

$$\varphi^A(z = i^+) = \varphi^B(z = i^-) \quad (3.7 \text{ a})$$

$$\frac{1}{m^A} \frac{\partial \varphi^A(z = i^+)}{\partial z} = \frac{1}{m^B} \frac{\partial \varphi^B(z = i^-)}{\partial z} \quad (3.7 \text{ b})$$

Dans le cas de hauteur de barrière  $V_B$  infinie, la fonction d'onde doit simplement s'annuler à l'interface, et on retrouve sans difficulté, puisque le potentiel est symétrique, que les solutions sont des cosinus (symétriques) ou des sinus (antisymétriques). La tradition s'est établie de numéroter ces états à partir de 1. Plus précisément :

$$\varphi_{2p+1}(z) = (2/L)^{1/2} \cos[(2p+1)\pi z/L] \quad (3.8 \text{ a})$$

$$\varphi_{2p+2}(z) = (2/L)^{1/2} \sin[(2p+2)\pi z/L] \quad (3.8 \text{ b})$$

$$\text{d'énergie} \frac{\hbar^2}{2m^A} \left[ \begin{array}{c} (2p+1) \\ \text{ou } (2p+2) \end{array} \frac{\pi}{L} \right]^2 + V_A$$

avec  $p$  entier  $\geq 0$  et  $z \leq L/2$ .

Mais en général, la résolution de ces équations ne peut être que numérique. À ce prix, il est raisonnable d'y inclure aussi les effets de non-parabolicité dans la bande de conduction. Par ailleurs, on comprend que le confinement de la bande de valence dégénérée en  $K = 0$  introduise une situation physique plus complexe, et nécessite un traitement particulier. Je traiterai donc tout cela globalement au paragraphe 3.3.

On trouvera dans le livre de Yu et Cardona [YC p.152], une présentation plus développée et plus rigoureuse de l'EFA, fondée sur les combinaisons linéaires de fonctions localisées de Wannier. Dans le livre de Bastard [13], elle est présentée d'un point de vue très complémentaire, comme une extension de la théorie  $\mathbf{k}, \mathbf{p}$  de Kane aux hétérostructures.

Discutons maintenant de l'intérêt et des limites de la théorie EFA.

- Comme on le voit, elle se nourrit de paramètres de masse effective qu'il est possible d'ajuster. Cela permet, avec quelques échantillons bien choisis, de "calibrer" sa théorie pour toute une famille de structures.

- Sa principale condition de validité est que le potentiel effectif varie lentement à l'échelle de la maille élémentaire. C'est du moins ce qu'on doit supposer pour la justifier rigoureusement. Cependant, son efficacité pour prévoir les énergies de super-réseaux à très courte période a étonné plus d'un expérimentateur. En réalité, il apparaît que la condition de variation lente porte sur la fonction enveloppe elle-même, ce qui peut être beaucoup moins sévère. On retrouve ici une situation physique analogue à celle de la loi de Végard pour les "bons" alliages (Cf. parag. 3.1.1).

- En pratique, sa validité est donc rarement mise en défaut, d'autant moins qu'aux incertitudes expérimentales (résolution d'une expérience de spectroscopie), il faut ajouter les incertitudes technologiques (largeur du puits, raideur des interfaces), ou celles sur les paramètres utilisés.

- La condition (3.2) est évidemment essentielle. En particulier, la théorie EFA ne peut associer, dans les deux matériaux hôtes, que des fonctions d'ondes de même symétrie pour construire celles de l'hétérostructure. Le cas du système GaAs/AlAs est, de ce point de vue, très instructif (Cf. parag. 3.2.2).

### 3.2 Zoologie des micro- et nanostructures

Dans les années 80, les techniques d'épitaxie n'ont cessé de progresser et d'étendre la physique des hétérostructures bidimensionnelles à d'autres systèmes que GaAs/GaAlAs. Aujourd'hui, beaucoup sont accessibles couramment, et disponibles pour des études variées avec une bonne reproductibilité. Il est donc apparu indispensable dans cette École de présenter en détail les structures bidimensionnelles. De plus, cela nous permettra d'explicitier des notions généralisables aux structures de dimensionnalité inférieure. Les structures à 0-Dimension seront elles aussi présentées en détail à travers l'exemple des nanocristaux II-VI et I-VII (Cf le cours de D.Ricard).

On va donc tenter de brosser à grands traits un bilan sommaire, et provisoire, des efforts faits pour concevoir et fabriquer des hétérostructures à base de semi-conducteurs pour l'optique.

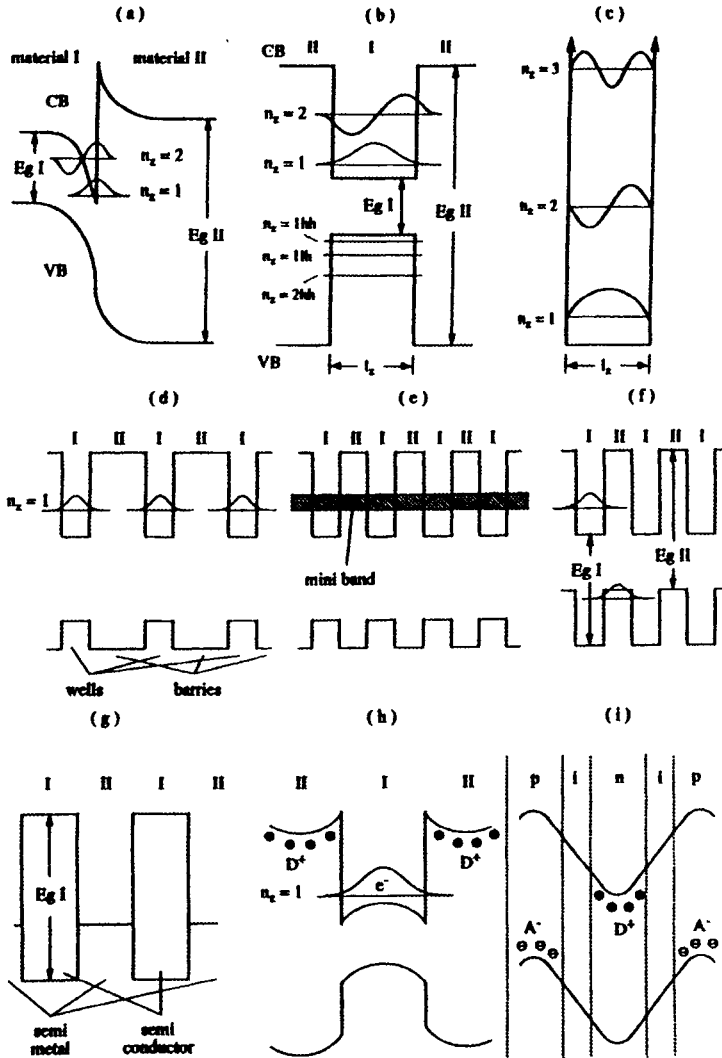


Figure 3.4 : Zoologie des hétérostructures 2D, vue par C.F.Klingshirn [5] p.145 : a) Hétérojonction à dopage modulé. La courbure de bande est provoquée par la charge d'espace des donneurs dont les électrons sont transférés dans le canal. b) Puits quantique et ses niveaux confinés. c) Puits quantique idéal de barrière infinie. d) Multipuits quantique de type I. e) Super-réseaux de type I, dont les états de conduction sont délocalisés. f) Super-réseau de type II. g) Super-réseau de type III. h) Puits quantique dopé par transfert de charge. i) Super-réseau obtenu par simple transfert de charge entre donneurs et accepteurs localisés, dit nipi.

### 3.2.1 Puits quantiques et super-réseaux : en quel sens?

Les premières hétérostructures bidimensionnelles ont été réalisées couramment à la fin des années 70. Elles peuvent être qualifiées de bidimensionnelles au sens où les états électroniques sont *confinés quantiquement*. Il est nécessaire de prendre quelques précautions pour objectiver cette notion : il ne fait aucun doute que les états électroniques d'un semi-conducteur massif ne peuvent s'expliquer que grâce à la mécanique quantique. Mais leurs



propriétés sont en pratique indépendantes de la taille du cristal, car celle-ci est bien supérieure à la longueur de cohérence des états, limitée par des processus de diffusion inévitables, les imperfections du cristal, de sa surface, etc. Lorsque la largeur d'un "puits quantique" (Cf. fig.3.4 b, c) est nettement inférieure à cette longueur de cohérence, on peut parler d'effet de confinement quantique. En effet, la fonction enveloppe de l'état considéré subira aux limites du puits des conditions (par exemple d'annulation) qui se traduiront visiblement sur les observables. On voit donc que cette notion dépend des états considérés et aussi, secondairement, de la température et de la qualité de réalisation technologique. En pratique, les effets de confinement sont visibles sur les électrons de conduction dans GaAs, de masse effective 0.07, en dessous de 30 nm. Mais on peut aussi en parler pour des phonons optiques, en dessous de 3 nm ; ou bien pour des polaritons excitoniques qui sont des particules mixtes exciton-photon et dont la longueur de cohérence peut s'étendre comme celle des photons.

Dans le cas pédagogique du puits quantique de profondeur infinie et de largeur  $L$ , les conditions aux limites (3.7) imposent l'annulation de la fonction d'onde à l'interface. Les états tridimensionnels de valence et de conduction se regroupent en sous-bandes d'états, de fonction enveloppe (Cf. éq. 3.5 et 3.8) :

$$F_{\lambda,n,\mathbf{k}_{\perp}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}} \varphi_{\lambda,n}(z)$$

et d'énergie :

$$E_{n,\mathbf{k}_{\perp}} = \hbar^2 \pi^2 n^2 / 2m_{e,h} L^2 + \hbar^2 \mathbf{k}_{\perp}^2 / 2m_{e,h}$$

Le mouvement libre dans le plan reste donc décrit par un vecteur d'onde bidimensionnel. La densité d'états de chaque sous-bande est évaluée de façon similaire au cas tridimensionnel (Cf. parag. 2.1) :  $\rho(\mathbf{k}_{\perp}) d^2 \mathbf{k}_{\perp} = (L/2\pi)^2 d^2 \mathbf{k}_{\perp}$ , et donc, en supposant là aussi une loi de dispersion parabolique :

$$\rho(E) dE = (L/2\pi)^2 2m\pi / \hbar^2 \sum_n \Theta(E - E_{n,0}) dE \quad (3.9)$$

où  $\Theta(E)$  est la fonction de Heavyside. La densité d'état associée à chaque sous-bande bidimensionnelle est constante, et l'ensemble présente une discontinuité plus marquée qu'en 3D, au gap et au passage de chaque sous-bande.

À partir de puits quantiques répétés périodiquement (multipuits quantique), on parle de super-réseau lorsque des effets de superpériodicité ou de couplage entre puits sont attendus (Cf. fig.3.4 d, e).

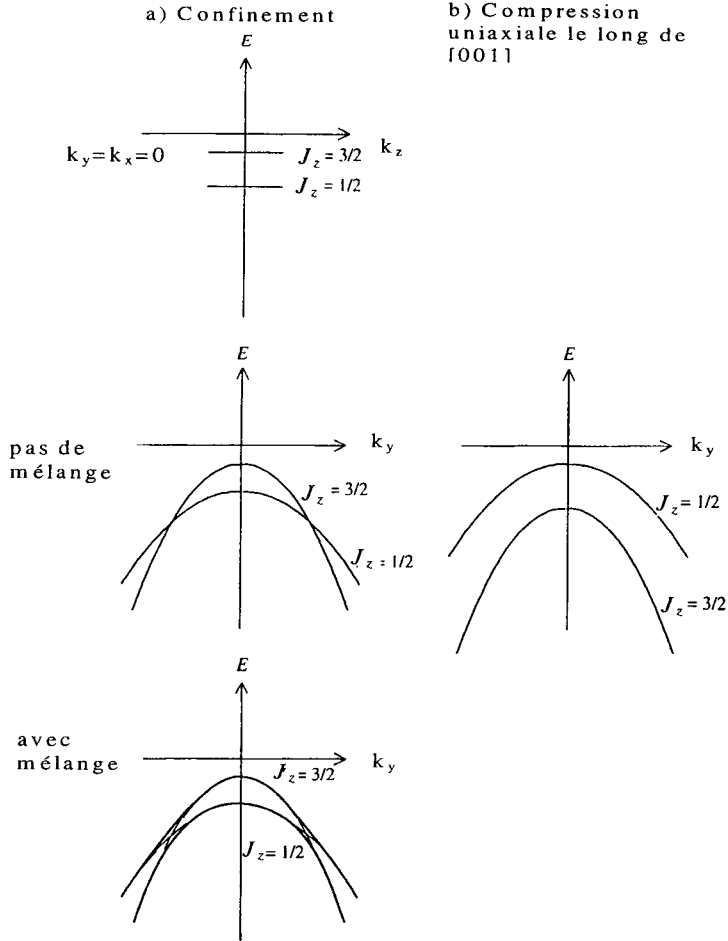
Les états électroniques de super-réseau se décrivent dans le cadre de l'EFA de façon tout à fait analogue à une méthode des liaisons fortes appliquée uniquement dans la direction  $z$ , analogue à ce qui est présenté au paragraphe 2.2.2. Contrairement au calcul de structures de bande des cristaux, cette approche simplissime donne d'ailleurs des résultats très satisfaisants. On fabrique des combinaisons linéaires de fonctions enveloppes de puits isolés qui ont la forme de Bloch :

$$F_{\lambda,n,Q,\mathbf{k}_{\perp}}(\mathbf{r}) = \varphi_{\lambda,n}(z) e^{iQz} e^{i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \mathbf{r}_{\perp}} \quad (3.10)$$

mais où  $Q$  est maintenant un super-vecteur d'onde à une dimension. Il s'ensuit, à partir de chaque état lié du puits isolé, la formation d'une mini-bande de courbure positive ou négative en  $Q = 0$  selon la parité de l'état de départ.

Là aussi, pour que cela ait une réalité physique, il faut que la sonde de cette périodicité reste cohérente sur plusieurs périodes. Cela pose moins de problèmes, par exemple, en optique ou en diffraction de rayons X, qu'avec les états électroniques. Comme on s'y attend, la tendance générale des effets de super-réseaux est d'atténuer le caractère bidimensionnel des

états électroniques et des densités d'états, de tendre vers un système tridimensionnel anisotrope.



**Figure 3.5 :** Dispersion dans le plan des trous "lourds" et "légers" a) dans un puits quantique b) sous contrainte uniaxiale le long de l'axe [001], souvent la direction de croissance. Remarquez le croisement lourd/léger hors de  $k = 0$ , qui devient anticroisement lorsqu'on inclut les termes de couplage. (Emprunté à Yu et Cardona [6] p.472)

### 3.2.2 Diversité des systèmes bidimensionnels.

Dans le système classique GaAs/GaAlAs, la proportion d'aluminium dans l'alliage est maintenue inférieure à environ 35% afin qu'il reste direct (Cf. fig. 3.1). Le profil de potentiel dessiné par les extrema de valence et de conduction, en  $k = 0$ , est représenté sur la figure (3.4 b d, e). On se trouve donc avec un puits de potentiel situé au même endroit dans la structure pour les électrons et pour les trous. C'est un profil de type I, dont on comprend déjà qu'il sera particulièrement favorable aux transitions optiques électron-trou. Pour dessiner un

tel profil, il faut connaître les énergies des gaps, assez facilement accessibles expérimentalement ; mais il faut aussi connaître la position relative en énergie des structures de bandes des matériaux hôtes, ce qui n'est pas si facile : les expériences de mesure directe de ce décalage, comme la photoémission d'électrons, manquent beaucoup de précision, et les prévisions théoriques sont hasardeuses. En pratique, seule l'étude des propriétés électroniques et optiques d'hétérostructures astucieusement dessinées permettent d'accéder à ce décalage de bande avec une précision suffisante.

On exprime généralement cette position par un *paramètre de décalage* sans dimension qui est donné par la proportion du décalage de gap direct qui affecte la bande de conduction. L'intérêt d'utiliser une telle proportion vient du fait que, dans les "bons systèmes" dont les alliages suivent la loi de Végard, ce paramètre se révèle peu dépendant de la composition. Pour le système GaAs/GaAlAs, il est estimé entre 0.6 et 0.7.

La situation est très différente, en particulier pour l'opticien, dans les structures dites de type II, où les états de base d'électrons et de trous ne sont pas confinés dans les mêmes couches (Cf. fig.3.4 f). D'une part les transitions optiques associées au gap fondamental seront moins fortes. D'autre part, à l'excitation lumineuse sera associé, après relaxation des porteurs, un transfert de charge, puisqu'électrons et trous ne seront pas situés dans les mêmes couches. Un système exemplaire, dans le domaine visible, est formé par le couple InP/AlInAs accordé, avec un gap assez proche pour les deux matériaux, et un décalage de bande d'environ 0,2 eV, qui donne des profils de potentiel "en chicane".

Un autre exemple de grande importance pratique est le système GaAs/AlAs lorsque sont concernés les états de bord de zone X (et non les états de centre de zone  $\Gamma$ , qui forment un système de type I). Ce système présente aussi un intérêt heuristique pour la compréhension de l'Approximation de la Fonction Enveloppe et de ses limites (Cf. parag. 3.1.4). Le profil de potentiel des états  $\Gamma$  de conduction donne naissance à une première série d'états confinés, dans les couches de GaAs. Un autre profil peut être tracé avec les états X, qui donne des états confinés dans les couches d'AlAs. Chacune de ces familles d'états peut être décrite dans l'esprit de l'EFA, en séparant les fonctions d'onde des matériaux massifs en une partie rapidement variable (attachée à l'extremum  $\Gamma$  ou X) et une partie lentement variable qui est modulée par le potentiel. On mesure là l'importance de la condition (3.2), qui nous dit qu'il faut marier les états  $\Gamma$  de chaque matériau entre eux, et les états X entre eux. En pratique, quand les couches de GaAs sont inférieures à 4 nm, et les couches d'AlAs suffisamment épaisses, l'état fondamental de conduction est de type X, situé dans l'AlAs. Mais décrire un quelconque couplage entre les deux familles va, par définition, au-delà de l'EFA. Expérimentalement, ce couplage perturbe le croisement des états  $\Gamma$  et X sur, typiquement, quelques meV ; c'est dire l'étonnante validité de l'EFA.

Dans certains cas, le décalage de bande d'un système de type II est comparable aux gaps des matériaux, ce qui amène à une situation originale où le gap entre les énergies d'électrons dans l'un et les énergies de trous dans l'autre est très petit, voire nul. C'est le cas du système InAs/GaSb.

La distinction entre systèmes de type I et II devient plus floue, quand on prend en compte non plus seulement les profils de potentiel au sens strict, mais aussi les effets de confinements dans toutes leurs richesses, ce qui inclut la pénétration des fonctions d'ondes dans les barrières. Ainsi, on peut construire, avec un système de type I, des structures asymétriques, où électrons et trous ne sont pas localisés de la même façon, à cause de la différence de leur masse effective. En effet, dans beaucoup de cas, les trous lourds ont une masse de confinement (parallèle à la direction z de croissance) supérieure d'un ordre de grandeur à celle

des électrons. On comprend donc que les distributions de probabilités de présence de l'un et l'autre soient très différentes dans une structure notablement différente du puits carré infini. Ces quantités peuvent en conséquence faire l'objet d'un travail d'"ingénierie de structure de bande" sans équivalent dans les matériaux massifs, par exemple pour induire des non-linéarités dues au transfert de charge. Ces structures asymétriques permettent d'ailleurs de jouer aussi avec les niveaux confinés successifs issus d'une même bande. On en verra des exemples intéressants pour l'optique intrabande au paragraphe 4.9

J'ai évoqué plus haut la possibilité de réaliser, dans certaines limites, la croissance pseudomorphique de matériaux contraints. La déformation associée n'est pas sans influence sur les énergies des bandes, en particulier en abaissant la symétrie du cristal. Ainsi, la dégénérescence trou lourd/trou léger est levée, hors tout effet de confinement, ce qui rajoute une tonalité supplémentaire à la palette de l'ingénieur (Cf. fig. 3.5). Un bon exemple en est GaInAs contraint sur GaAs, qui permet de repousser à plus haute énergie les trous légers et de bénéficier de la masse plus légère des trous lourds dans le plan, ce qui leur confère une meilleure mobilité. Une application se trouve dans les transistors à effet de champ (Cf. parag.1.2), Une autre application se trouve dans les lasers, pour adapter les densités d'états des électrons et des trous. Plus généralement, ce peut être un moyen de se débarrasser dans une certaine mesure de la complexité de la bande de valence. La description théorique de ces effets de contrainte est très bien maîtrisée mais un peu lourde. Je m'en dispenserai dans ce cours, renvoyant au cours de Marzin [22] qui donne les outils nécessaires.

Un autre type d'asymétrie est fourni par les structures piézoélectriques. Celles-ci sont obtenus par croissance de matériaux contraints sur des substrats orientés dans des directions qui s'y prêtent, par exemple [111]. La contrainte génère un champ électrique qui introduit donc un type d'asymétrie un peu comparable à celle du profil de potentiel de type II. Là aussi, l'illumination induit un transfert de charge, ou, si l'on préfère, un écrantage du champ électrique. Il en résulte une modification marquée du profil de potentiel et des effets non linéaires associés. Beaucoup de dispositifs ont été imaginés dans les systèmes GaInAs/GaAs et CdZnTe/CdTe.

Avec les semi-conducteurs magnétiques, (en pratique avec les semi-magnétiques), on peut réaliser des structures incluant des couches aimantées (paramagnétiques le plus souvent) localisée dans l'empilement. Grâce à l'interaction d'échange entre états électroniques localisés et états des bandes, il est donc possible de modifier sous champ magnétique le profil de potentiel effectif vu par les électrons (et les trous) d'un spin donné ; avec, bien entendu, une évolution opposée pour les états de spin conjugué.

Enfin, il ne faut pas oublier de prendre en compte les effets du dopage et du transfert de charge éventuellement associé dans les hétérostructures, par définition inhomogènes. Le dopage localisé, ou modulé, est d'ailleurs un outil supplémentaire pour l'ingénierie. Quelques exemples sont représentés sur la figure 3.4 a, h, i, dont la structure emblématique des expériences de transport quantique, l'hétérojonction à dopage modulé. Dans le domaine optique, il faut surtout citer les puits dopés pour l'optique intrabande (Cf. parag.4.9), et les structures n-i-p-i, qui, comme les structures asymétriques ou de type II, permettent d'envisager des non-linéarités associées au transfert de charge sous illumination. Dans tous ces cas, la modélisation quantitative des structures nécessitera la prise en compte du potentiel électrostatique relié à la densité de charge volumique par l'équation de Poisson. La densité de charge elle-même dépend de la probabilité de présence des états confinés, et la modification du potentiel de l'hétérostructure est en général suffisamment importante pour que le calcul des états confinés par l'équation de Schrödinger doive être repris (la méthode des matrices de

transfert, présentée au paragraphe 3.3 est alors d'une grande utilité), et un traitement par itérations successives est le plus souvent inévitable.

### 3.2.3 Fils et boîtes quantiques

Dans les années 80, on a vu se déployer de par le monde des trésors d'imagination, s'appuyant sur beaucoup de travail, pour réduire la dimensionnalité des objets réalisables. Il s'agissait donc de créer des fils et boîtes "quantiques", au sens explicité plus haut (Cf. parag. 3.2.1) pour le cas bidimensionnel. Aujourd'hui, le bilan est mitigé. Les méthodes les plus simples de lithographie ont prouvé leur efficacité dans de nombreux domaines, en particulier la physique du *transport mésoscopique*, mais les résultats pour l'optique sont un peu décevants. La raison principale en est sans doute les recombinaisons non radiatives induites par les flancs gravés. Les structures les plus intéressantes semblent obtenues lorsqu'on fait appel, peu ou prou, aux facultés d'*auto-organisation* de la croissance. Risquons nous à un bilan sans doute provisoire et certainement subjectif : les meilleurs fils quantiques sont aujourd'hui réalisés par croissance dans des sillons en V [23] ou par reprise d'épitaxie sur la tranche clivée d'un puits quantique [24], ce qu'on appelle les fils en T. Les ensembles d'objets obtenus ne sont pas très denses, ce qui pose problème pour de véritables utilisations en optique. Aujourd'hui, seules les croissances sur surface désorientée de quelques degrés [25], qui permettent d'accrocher des fils quantiques à chaque marche de la surface, peuvent fournir une densité très supérieure. Mais par contre, le confinement obtenu est assez faible.

Les meilleures boîtes quantiques semblent quant à elles obtenues par croissance épitaxiale en îlots [26] ou, noyées dans des matrices transparentes, par des techniques sol-gel (Cf. le cours de D.Ricard dans ce livre). On obtient des objets encore imparfaitement calibrés, mais en grande densité.

Il est facile de généraliser le calcul des énergies et densité d'états au cas 1 et 0 dimension, dans le modèle le plus simple de masse effective et de hauteur de barrière infinie. À 1D, on en déduit que la densité d'état présente, à l'énergie de base de chaque sous-bande, une singularité en  $E^{-1/2}$ , encore plus marquée qu'à 2D. À 0D, on retrouve théoriquement une série discrète de niveaux d'énergie, comme pour un atome ou bien une impureté dans un semi-conducteur. Cependant, pour des barrières finies, les calculs sont beaucoup plus complexes qu'à 2D car l'équation de Schrödinger effective n'est plus séparable.

Cependant, bien que ces systèmes "quantiques" de dimension inférieure à 2 soient moins bien maîtrisés au plan de la technologie, beaucoup de travail a déjà été fait en optique non linéaire sur les nanocristaux noyés dans des matrices de verre, et leur qualité continue de progresser. C'en est donc le meilleur exemple à présenter aujourd'hui dans cette École.

### 3.2.4 Structures optiques

Les semi-conducteurs sont aussi des matériaux pour l'optique au sens où ils sont doués d'un indice de réfraction. Les techniques de dépôt de couches minces, très utilisées en optique, peuvent donc être employées dans certaines limites avec des semi-conducteurs, jouant avec les sauts d'indice pour définir des "structures optiques" tels que guide d'onde, miroir interférentiel ou résonateur Fabry-Perot. Dans les cas où le dépôt prend la forme d'une épitaxie, on peut y inclure des nanostructures électroniques (puits quantiques par exemple), mariant avec un bénéfice mutuel la physique des semi-conducteurs et l'optique.

Cette démarche est présente depuis plusieurs années avec le laser à double hétérostructure et à puits quantiques, qui associe donc des puits de largeur nanométrique, de densité d'états électroniques bidimensionnelle, à un guide d'onde optique, de dimensions micrométriques. Le problème de l'accord de phase en optique non linéaire, abordé dans cette École, a inspiré récemment bon nombre de ces structures optiques. Une École y a été consacrée récemment, dont le volumineux compte rendu mérite une mention spéciale [27]. Ici, je présenterai en détail au paragraphe 4.7 les structures microcavités où excitons et photons sont couplés fortement.

### 3.3 Calcul des états électroniques des hétérostructures bidimensionnelles

Je voudrais dans ce paragraphe exposer un ensemble cohérent de méthodes d'intérêt pratique pour calculer les états confinés dans une hétérostructure bidimensionnelle. Par "méthodes d'intérêt pratique", j'entends suffisamment élaborées pour souffrir la comparaison avec l'expérience. Si l'on considère en effet les systèmes les mieux connus, comme le système GaAs/GaAlAs, avec une bonne maîtrise de la technologie et une connaissance raisonnable des paramètres de base des matériaux hôtes, l'intérêt d'aller au-delà de la méthode de calcul de Ben Daniel-Duke (masse effective constante, mais différente d'un matériau à l'autre) ne fait aucun doute. Cependant, toutes ces méthodes se situent dans le cadre général de l'Approximation de la Fonction Enveloppe (EFA), qui a largement prouvé son utilité dans tous les cas où les états électroniques sont raisonnablement délocalisés. Naturellement, aller trop loin dans la sophistication pourrait relever de l'exercice gratuit ; il faut savoir faire preuve de sens physique.

#### 3.3.1 Traitement d'un profil de potentiel quelconque. Matrice de transfert

Il est vite indispensable de pouvoir traiter un profil de potentiel plus compliqué que celui d'un puits carré ou d'un super-réseau en créneau. D'une part pour les besoins de « l'ingénierie de bande », qui peut amener à construire des structures de formes plus riches, et/ou à appliquer un champ électrique le long de l'axe de croissance. D'autre part pour prendre en compte certaines imperfections technologiques inévitables, comme la gradualité des interfaces, par exemple dans le système GaInAs/GaAs. On peut employer selon les cas des méthodes perturbatives ou variationnelles, souvent riches de sens physique. Mais la méthode la plus utile pour les structures bidimensionnelles, en particulier par la généralité de son traitement numérique, est celle des matrices de transfert [28].

La méthode consiste à découper le profil en sections de potentiel constant, aussi fines qu'il est nécessaire dans le cas d'une gradualité ou d'un champ électrique. On l'aura compris, il ne s'agit pas ici de se préoccuper outre mesure ni de la discrétisation naturelle en mailles élémentaires, ni de la condition de validité de l'EFA, qui stipule que le potentiel doit varier lentement à cette échelle. On l'a déjà dit (cf. parag. 3.1.4), il apparaît que cette condition est suffisante, mais pas nécessaire lorsque la fonction enveloppe finalement calculée varie, elle, lentement. Chaque tranche ainsi définie sera caractérisée donc par une énergie potentielle  $V_i$  et une masse effective  $m_i(\epsilon)$ , qui peut dépendre de l'énergie. Nous nous autorisons à considérer au départ des états de  $k$  non nul, avec une masse dans le plan  $m_{\perp,i}(\epsilon)$  non nécessairement identique à la masse de confinement  $m_i$ . Pour trouver les états stationnaires de

l'énergie, la structure sera toujours entourée de barrières suffisamment hautes et épaisses, qui représenteront soit des couches de confinement ad hoc, soit le vide, et qui assureront l'annulation de la fonction enveloppe à l'infini. (Mais d'autres conditions aux limites peuvent être mieux adaptées à la situation physique : conditions périodiques BVK pour des super-réseaux infinis, ondes planes à l'infini pour des expériences de transmission.)

La méthode consiste à fixer une énergie  $\varepsilon$  et à suivre de proche en proche l'évolution de l'onde électronique d'énergie  $E$  à partir de la première barrière, puis au travers de toutes les tranches de la structure. Les états propres seront ceux qui satisfont aux conditions aux limites dans l'ensemble de la structure, généralement d'être bornée à l'infini.

L'évolution de la fonction enveloppe dans chaque tranche  $i$  est régie par l'équation de Schrödinger : par contre, nous supposons que les mouvements // et  $\perp$  sont séparables, d'éventuels termes de couplage étant par la suite traités en perturbation, comme on le verra dans le cas de la bande de valence :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_i} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\hbar^2 k_{\perp}^2}{2m_{\perp,i}} + V_i \right] \varphi_i(z) = \varepsilon \varphi_i(z) \text{ dans la tranche } i \text{ où } z_i < z < z_{i+1} \quad (3.11)$$

La fonction enveloppe peut s'écrire, sous sa forme la plus générale et symétrique :

$$\varphi_i(z) = a_i e^{ik_i(z-z_i-L_i/2)} + b_i e^{-ik_i(z-z_i-L_i/2)} \quad (3.12)$$

où  $L_i = z_{i+1} - z_i$ . Notons surtout que l'énergie cinétique en  $z$  :  $\frac{\hbar^2 k_i^2}{2m_i(\varepsilon)} = \varepsilon - \frac{\hbar^2 k_{\perp}^2}{2m_{\perp,i}(\varepsilon)} - V_i$

peut être positive ou négative, selon que l'onde est propagative (onde plane) ou évanescence (exponentielle décroissante).

Pour une énergie  $E$  donnée, la propagation de l'onde est donc parfaitement déterminée dans la couche  $i$  par cette équation de Schrödinger, et à l'interface, par les conditions aux limites (éq. 3.7) :

$$\varphi_i(z_{i+1}) = \varphi_{i+1}(z_{i+1}) \quad (3.13 \text{ a})$$

$$m_i^{-1}(\varepsilon) \varphi_i'(z_{i+1}) = m_{i+1}^{-1}(\varepsilon) \varphi_{i+1}'(z_{i+1}) \quad (3.13 \text{ b})$$

L'ensemble formé par les équations (3.12) et (3.13) permet d'obtenir  $a_i$  et  $b_i$  en fonctions de  $a_{i-1}$  et  $b_{i-1}$  par un système linéaire, représentée par une "matrice de transfert"  $\mathbf{M}_i$  ne dépendant que des paramètres des couches  $i$  et  $i+1$ . La fonction enveloppe est donc connue de proche en proche par:

$$\begin{bmatrix} a_i \\ b_i \end{bmatrix} = \prod_{j=i-1}^{j=0} \mathbf{M}_j \begin{bmatrix} a_0 \\ b_0 \end{bmatrix}$$

Cependant, comme toujours dans un système confiné, toute énergie  $E$  ne permet pas de construire une fonction propre ; ce sont les conditions aux limites qui en décideront. Ici, on veut que la fonction soit évanescence dans les deux barrières extrêmes, indexées 0 et N.

On en déduit que  $\begin{bmatrix} a_0 \\ b_0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$  et  $\begin{bmatrix} a_N \\ b_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$  (à une normalisation près). Donc, la matrice de transfert totale  $M = \prod_{j=0}^{j=N} M_j$  doit satisfaire :  $\begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$ , ce qui impose que son élément  $M_{22} = 0$ .

Telle est donc l'équation séculaire qui autorise les valeurs propres de l'énergie. Ensuite, le calcul (et la normalisation) de la fonction d'onde ne pose pas de problèmes autres que numériques, ce qui peut tout de même nécessiter quelque attention pour les structures complexes.

### 3.3.2 Non parabolicité des bandes. Méthode de Kane

**Tableau 3.1 :** Hamiltonien de Kane à 4 bandes pour les semi-conducteurs de type GaAs, ZnTe... L'origine des énergies est située en haut de la bande de valence. (Emprunté à G.Bastard, [13]).

	$ iS \uparrow\rangle$	$ 3/2, 1/2\rangle$	$ 3/2, 3/2\rangle$	$ 1/2, 1/2\rangle$	$ iS \downarrow\rangle$	$ 3/2, -1/2\rangle$	$ 3/2, -3/2\rangle$	$ 1/2, -1/2\rangle$
$ iS \uparrow\rangle$	$E_G + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	$\frac{P\hbar k_+}{m_0}$	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	0	$-\frac{\sqrt{1} P\hbar k_-}{\sqrt{3} m_0}$		$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_-}{\sqrt{3} m_0}$
$ 3/2, 1/2\rangle$	$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	0	0	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_-}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	0
$ 3/2, 3/2\rangle$	$\frac{P\hbar k_-}{m_0}$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	0	0	0	0	0
$ 1/2, 1/2\rangle$	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	$\frac{-\Delta_{SO}}{\hbar^2 k^2} + \frac{1}{2m_0}$	$\frac{\sqrt{2} P\hbar k_-}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	0
$ iS \downarrow\rangle$	0	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_-}{\sqrt{3} m_0}$	0	$\frac{\sqrt{2} P\hbar k_+}{\sqrt{3} m_0}$	$E_G + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	$\frac{P\hbar k_-}{m_0}$	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$
$ 3/2, -1/2\rangle$	$-\frac{\sqrt{1} P\hbar k_+}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	0	$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	0	0
$ 3/2, -3/2\rangle$	0	0	0	0	$\frac{P\hbar k_+}{m_0}$	0	$\frac{\hbar^2 k^2}{2m_0}$	0
$ 1/2, -1/2\rangle$	$-\frac{\sqrt{2} P\hbar k_+}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	0	$\frac{\sqrt{1} P\hbar k_z}{\sqrt{3} m_0}$	0	0	$\frac{-\Delta_{SO}}{\hbar^2 k^2} + \frac{1}{2m_0}$

La méthode de perturbation de Kane [29, YC.p.64] permet d'obtenir une description des états de bande assez satisfaisante autour d'un extremum, le terme de perturbation étant l'opérateur  $\mathbf{k.p}$ . Elle a été d'abord utilisée pour obtenir les masses effectives des semi-conducteurs



massifs. Mais, étant valable aux petits  $k$  et fournissant des résultats analytiques, elle est particulièrement adaptée à l'esprit de l'EFA, dont elle forme d'ailleurs l'une des fondations théoriques possibles [13]. Ici, nous nous contenterons d'en tirer des valeurs de masse effective dépendant de l'énergie, qu'il sera possible d'"injecter" dans un calcul EFA, utilisant par exemple les matrices de transfert.

Une fois de plus, je prendrai exemple sur la structure de bande la plus courante des matériaux composés de type zinc-blende, avec comme point de départ l'ensemble bien connu des  $4 \times 2$  bandes de conduction et de valence (Cf. parag. 2.2.1 et fig. 2.2) qui diagonalise l'interaction spin-orbite. La méthode consiste à considérer cet ensemble comme suffisamment éloigné des autres bandes pour constituer un sous-espace pertinent. On peut alors y diagonaliser le hamiltonien perturbé. Plus précisément, les fonctions d'onde (de Bloch) sont de la forme :

$$\varphi_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}, \text{ fonction propre du hamiltonien total } \mathbf{H}_{\text{total}} = \left[ \frac{1}{2m_0} \mathbf{p}^2 + V \right]$$

mais dont la partie périodique  $u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$  est fonction propre du *hamiltonien de Kane* :

$$\mathbf{H}_{\text{Kane}} u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \left[ \frac{1}{2m_0} (\mathbf{p}^2 + 2\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} + \hbar^2 k^2) + V \right] = E_{\lambda, \mathbf{k}} u_{\lambda, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (3.14)$$

Il est présenté sous forme matricielle dans le tableau 3.1, sur la base des fonctions  $u_{n0}$ , supposées connues. L'origine des énergies est prise en haut de la BV,  $E_G$  est le gap et  $\Delta_{SO}$  l'interaction spin-orbite. Naturellement, on a quantifié l'opérateur  $J$  le long de  $k$ , ce qui peut toujours se faire dans le semi-conducteur massif. Les éléments de matrice des opérateurs  $p$  seront à nouveau rencontrés et discutés à propos des règles de sélection des transitions optiques interbandes (parag. 4.2.1).  $P$  est le fameux élément de matrice de Kane :

$$iP = \langle S|p|X \rangle = \langle S|p|Y \rangle = \langle S|p|Z \rangle \quad (3.15)$$

En pratique, dans la plupart des matériaux usuels,  $P^2 / m_0 \approx 10\text{eV}$ . Ce fait est discuté de façon intéressante dans [YC. p.66].

Les quatre valeurs propres de l'énergie (dégénérées deux fois par renversement du temps) s'obtiennent en annulant le déterminant. En posant par commodité  $E^*(\mathbf{k}) = E(\mathbf{k}) - \hbar^2 k^2 / 2m_0$ , il vient :

- d'une part :

$$E^* = 0, \quad (3.16 \text{ a})$$

c'est la bande de trous lourds HH, non affectée par la perturbation, car sa fonction d'onde "atomique" pointe perpendiculairement à  $k$ .

- d'autre part :

$$(E^* - E_G) E^* (E^* + \Delta_{SO}) = \hbar^2 k^2 P^2 / m_0^2 (E^* + 2\Delta_{SO} / 3) \quad (3.16 \text{ b})$$

dont les trois racines sont les trois bandes légères BC, LH et SO. On obtient explicitement  $k(E)$  sous forme analytique, ce qui est la quantité qu'il nous faut dans un calcul de matrice de transfert, par exemple. La tendance générale est à un alourdissement de la masse avec l'énergie cinétique, d'autant plus marqué que le gap est petit. Notons qu'il est possible aussi d'imposer l'énergie dans le gap  $(E^* - E_G) < 0$ , ce qui fournit la relation entre l'énergie et le vecteur d'onde imaginaire des ondes évanescentes dans le matériau considéré et de prendre en compte aussi ces effets de non-parabolicité dans l'EFA.

Cette description des bandes légères est raisonnable tant que les énergies cinétiques restent faibles par rapport à l'espacement des autres bandes non incluses dans cette théorie "à quatre bandes". Malheureusement, on ne décrit pas la bande de trous lourds ; il faudrait pour cela inclure le couplage avec les autres bandes plus éloignées, ce qui est beaucoup plus pénible. C'est pourquoi l'approche de Kane sera en pratique utilisée pour calculer les niveaux confinés de conduction, et aussi les niveaux de valence "légers" de  $k_{\perp}=0$ . Mais pour prendre en compte la complexité des bandes de valence, par exemple pour décrire les états de  $k_{\perp} \neq 0$ , il faut faire appel au hamiltonien phénoménologique de Luttinger.

### 3.3.3 Dégénérescence de la bande de valence. Hamiltonien de Luttinger

Il s'agit donc maintenant de décrire analytiquement, mais phénoménologiquement, le haut de la bande de valence, en pratique les deux bandes  $J = 3/2$  dans l'approximation parabolique ; nous disposons pour cela du hamiltonien introduit par Luttinger [30, YC p.164], le plus général qui soit construit avec les vecteurs  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{J}$ , quadratique en  $\mathbf{k}$  et invariant par les opérations de symétrie du cube (en toute rigueur, il faut préciser que l'absence de centre d'inversion de la structure zinc-blende est négligée) :

$$\mathbf{H}_{\text{Luttinger}} = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left[ (\gamma_1 + \frac{5}{2}\gamma_2) k^2 - 2\gamma_2 (\mathbf{k} \cdot \mathbf{J})^2 + 2(\gamma_3 - \gamma_2) (k_x^2 J_x^2 + \text{perm.circ.}) \right]$$

dont les coefficients sont exprimés en fonction des *paramètres de Luttinger*. C'est ainsi qu'on décrit aussi la non-sphéricité de la bande de valence (*warping*).

Voici les valeurs de ces paramètres pour quelques matériaux d'intérêt courant [31] :

	$\gamma_1$	$\gamma_2$	$\gamma_3$
GaAs	7.65	2.41	3.28
AlAs	3.45	0.68	1.29
CdTe	5.29	1.89	2.46
ZnTe	3.77	1.07	1.64
ZnS	2.54	0.75	1.09

L'approximation sphérique, souvent suffisante, consiste à écrire  $\gamma_2 = \gamma_3 = (3\gamma_3 + 2\gamma_2) / 5$

Ce hamiltonien s'écrit facilement sous forme matricielle, en explicitant les éléments de matrice des opérateurs de type  $\mathbf{J}^2$  sur la base des états dont le moment de rotation est quantifié le long de  $z$  :  $J = 3/2, m = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$ . Je rappelle que cette base s'impose naturellement dans l'hétérostructure 2D, puisque le confinement va lever la dégénérescence entre  $\pm 3/2$  (trous lourds) et  $\pm 1/2$  (trous légers).

$$\mathbf{H}_{\text{Lut.}} = \begin{matrix} & \langle 3/2,+3/2 | & \langle 3/2,-1/2 | & \langle 3/2,+1/2 | & \langle 3/2,-3/2 | \\ \langle 3/2,+3/2 | & H_{hh} & c & b & 0 \\ \langle 3/2,-1/2 | & c^* & H_{hh} & 0 & -b \\ \langle 3/2,+1/2 | & b^* & 0 & H_{hh} & c \\ \langle 3/2,-3/2 | & 0 & -b^* & c^* & H_{hh} \end{matrix} \quad \text{avec :}$$

$$\begin{aligned} H_{hh} &= \frac{-\hbar^2}{2m_0} [(\gamma_1 - 2\gamma_2)k_z^2 + (\gamma_1 + \gamma_2)k_{\perp}^2] \\ H_{lh} &= \frac{-\hbar^2}{2m_0} [(\gamma_1 + 2\gamma_2)k_z^2 + (\gamma_1 - \gamma_2)k_{\perp}^2] \\ c(\mathbf{k}_{\perp}) &= \frac{\hbar^2 \sqrt{3}}{2m_0} [\gamma_2(k_x^2 - k_y^2) - 2i\gamma_3 k_x k_y] \\ b(\mathbf{k}_{\perp}, k_z) &= \frac{\hbar^2 \sqrt{3}}{2m_0} (k_x - ik_y)(2\gamma_3 k_z) \end{aligned} \quad (3.17)$$

où  $m_0$  est, rappelons le, la masse de l'électron libre.

Nous en tirons d'abord les masses effectives pour les mouvements parallèle et perpendiculaire à l'axe de croissance  $z$  :

$$\begin{aligned} m_{hh, //} &= m_0 / (\gamma_1 - 2\gamma_2) \\ m_{lh, //} &= m_0 / (\gamma_1 + 2\gamma_2) \\ m_{hh, \perp} &= m_0 / (\gamma_1 + \gamma_2) \\ m_{hh, \perp} &= m_0 / (\gamma_1 - \gamma_2) \end{aligned}$$

Dans GaAs par exemple, ces masses ont pour valeur, en unité de  $m_0$  :

$$m_{hh, //} \sim 0.35, m_{lh, //} \sim 0.08, m_{hh, \perp} \sim 0.1, m_{lh, \perp} \sim 0.19$$

On voit donc que les trous lourds sont relativement légers dans le plan des couches et réciproquement (dans les milieux de l'optique, il me semble que les termes "trous lourds et légers" sont malgré tout utilisés largement, et toujours par référence à la masse de confinement).

Cette situation de "renversement de masse" à des conséquences visibles sur la figure 3.5. Dans les puits quantiques standard, où les trous lourds ont une moindre énergie de confinement, il y a croisement des deux bandes en  $\mathbf{k}_{\perp} \neq 0$ .

Pour faire usage du hamiltonien de Luttinger ci-dessus dans un calcul de fonction enveloppe, il faut bien entendu ajouter un potentiel  $V$  variable en  $z$ , et remplacer les termes en  $k_z$  par l'opérateur dérivation. En pratique, comme dans le modèle de Ben Daniel-Duke, on va se permettre d'utiliser des coefficients  $\gamma$  de Luttinger variables en  $z$ . Il faut donc symétriser l'opérateur pour conserver son hermiticité. Donc, dans les expressions (3.17), on remplacera :

- dans les termes diagonaux :

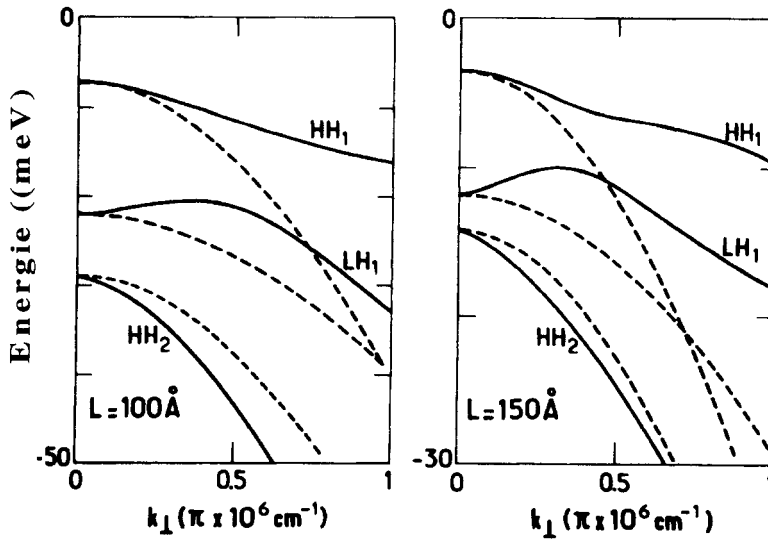
$$\frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_0} \gamma \quad \text{par} \quad \frac{1}{2m_0} p_z \gamma(z) p_z + V(z)$$

- et dans le terme  $b$  :

$$\hbar k_z \gamma \quad \text{par} \quad \frac{1}{2} (p_z \gamma(z) + \gamma(z) p_z)$$

Ensuite, on pourra construire, par exemple par la méthode des matrices de transfert, les fonctions propres des équations de Schrödinger correspondant aux termes diagonaux :

$H_{hh}\varphi = E\varphi$  et  $H_{lh} = E\varphi$ , dont les solutions sont les fonctions enveloppes des états de trous lourds et légers non couplés, et les énergies propres sont les termes diagonaux de la matrice (3.17). On peut maintenant, dans un esprit de perturbation, en calculer les termes non-diagonaux (seul  $b$  dépend explicitement de la fonction enveloppe en  $z$ ), et la diagonaliser pour trouver les nouveaux états couplés.



**Figure 3.6 :** Détail de la dispersion dans le plan des trous lourds et légers, calculés dans deux puits quantiques différents (GaAs/GaAlAs) par G.Bastard [13]. Avec les courbes en pointillés, on néglige les termes non diagonaux du Hamiltonien de Luttinger, qui expriment le couplage trous lourds-légers.

À titre d'illustration, considérons les résultats d'un tel couplage sur la figure 3.6. Le fait le plus marquant est le *dos de chameau* des trous légers, qui se traduit par un pic de densité d'état bien commode pour la caractérisation optique. Ce calcul est réalisé dans des puits rectangulaires, symétriques. Il faut noter que, dans une structure non symétrique, lorsque le terme  $b$  n'est pas nul, les dégénérescences entre  $\pm 3/2$  d'une part,  $\pm 1/2$  d'autre part (dégénérescences de spin) sont levées hors de  $k_{\perp} = 0$ . Ce résultat est discuté en détail par Bastard [13] et Altarelli [14].

#### 4. PROPRIÉTÉS OPTIQUES

Dans l'approche semi-classique des propriétés optiques, la plus courante, les états électroniques sont décrits en mécanique quantique mais le champ électromagnétique (de fréquence  $\omega$  et vecteur d'onde  $\mathbf{q}$ ) est traité classiquement. La forme du hamiltonien

d'interaction, en jauge de Coulomb, la plus utilisée dans les solides est :  $H_{er} = \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$  où  $\mathbf{A}$  est le potentiel vecteur du champ oscillant  $\mathbf{E}$  :

$$\mathbf{A} = -\frac{\mathbf{E}}{2q} [e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + \text{c.c.}]$$

et l'interaction est traitée en perturbation dépendant du temps.

Ce hamiltonien est évidemment commode dans un système physique comportant des états délocalisés. On peut montrer [32] qu'il se réduit, dans le cadre de l'approximation dipolaire où le vecteur d'onde de la lumière est négligé, à  $H_{er} = -e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$ , dont la signification physique est plus parlante, du moins pour un dipôle ponctuel.

Selon le régime temporel étudié, régime cohérent (effet Stark optique par exemple) ou au contraire obtention d'un état excité en quasi-équilibre (création de paires électron-trou), la partie dépendant du temps de ce hamiltonien fera l'objet d'un traitement différent. Cette discussion est introduite dans cette École par J.Y. Bigot. Je vais dans la suite discuter l'intensité du couplage et emprunterai des exemples à des expériences quasi continues d'absorption et de luminescence, donc relatives au régime des durées longues. Et ceci dans l'esprit de la remarque faite en fin de section 1.

#### 4.1 Éléments de matrice de l'opérateur $\mathbf{p}$

L'intensité du couplage, donc les propriétés optiques, vont reposer sur les éléments de matrice du produit scalaire  $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ , qui connectent un état initial  $\psi_i$  et un état final  $\psi_f$  de la transition :  $\langle \psi_f | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | \psi_i \rangle$ . En développant ce produit scalaire, il vient :

$$H_{er} \propto \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} = A_x p_x + A_y p_y + A_z p_z = A_+ p_+ + A_- p_- + A_z p_z \quad (4.1)$$

ce qui permet de décrire la relation entre la polarisation du champ et les états couplés. La première écriture est bien adaptée à une excitation polarisée linéairement, et la seconde, construite à partir de combinaisons linéaires *ad hoc*, à une excitation polarisée circulairement dans le plan  $x, y$ .

Comme on l'a vu, les états du semi-conducteur massif idéal prennent la forme de Bloch (Cf. éq. 2.1) ; de plus, les états d'impuretés peu profondes comme ceux des hétérostructures sont construits sur cette base dans le cadre de l'approximation de la fonction enveloppe. On va donc s'intéresser aux fonctions d'onde de la forme  $|\psi_{i/f}\rangle = F_{i/f} u_{i/f}$ , où  $u$  est une fonction rapidement variable, périodique comme le réseau cristallin (Cf. parag. 3.1.4) ; comme d'habitude, nous supposons que nous traitons des états proches d'un extremum de la bande et négligerons sa dépendance en  $k$  autour de cet extremum.  $F$  est la fonction enveloppe, solution d'une équation de Schrödinger effective de type (3.4).

Pour calculer l'élément de matrice  $\langle \psi_f | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | \psi_i \rangle$ , on peut procéder rigoureusement dans l'esprit de la théorie quantique des solides, en remplaçant l'intégrale sur tout l'espace par une somme d'intégrales (égales) sur la cellule unité, pondérées par la valeur de la fonction enveloppe sur le site (YC p.248). On peut aussi aller plus vite à la discussion physique en supposant, une fois de plus, que la fonction enveloppe et le champ sont lentement variables à l'échelle de la cellule unité. Cela permet de séparer les intégrations sur les fonctions  $u$  et sur

les fonctions enveloppes. D'autre part, l'application de l'opérateur  $p$ , une dérivation, à un produit donne deux termes. Il en découle que :

$$H_{er} \propto \langle \psi_f | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | \psi_i \rangle = \sum_{d=x,y,z} \left[ \langle F_f | A_d p_d | F_i \rangle \langle u_f | u_i \rangle + \langle F_f | F_i \rangle \langle u_f | A_d p_d | u_i \rangle \right] \quad (4.2)$$

où  $d$  repère la direction de la polarisation.

Nous allons maintenant discuter ces deux termes séparément.

#### 4.1.1 Transitions intrabandes

Dans le premier terme du hamiltonien d'interaction, c'est la fonction enveloppe qui est dérivée. Le produit scalaire  $\langle u_f | u_i \rangle$  n'est non nul que si  $u_i = u_f$ , puisque ces fonctions forment une base orthonormée. Ce terme correspond donc à des transitions intrabandes, c'est-à-dire entre un état plein et un état vide de la même bande. Cela ne peut se trouver que dans un matériau dopé.

Il y a aussi dans ce terme une intégrale sur les fonctions enveloppes, modulées par la variation exponentielle du champ : dans un matériau massif, il s'agit du terme  $\hbar \mathbf{k}_i \int e^{i[(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}]} d^3r$ , qui introduit la condition de conservation du moment au cours de la transition :  $\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f = \mathbf{q}$ , le (très petit) vecteur d'onde du champ. Cette condition ne peut, en pratique, être satisfaite à l'intérieur d'une même bande, à cause de la très grande pente de la relation de dispersion de la lumière. De fait, ce qu'on appelle "l'absorption due aux porteurs libres" dans un semi-conducteur dopé n'est possible qu'en faisant intervenir des processus supplémentaires de relaxation du moment (phonons). Elle est donc intimement reliée à la conductivité (YC p.296).

Par contre, si l'un des états considéré n'a plus la forme de Bloch, il est possible d'envisager de telles transitions intrabandes directes. C'est le cas à partir d'un état lié d'impureté, d'intérêt surtout académique. C'est surtout vrai dans les hétérostructures, qui ont ouvert, fondées sur ce principe, de nouvelles possibilités d'études et de dispositifs optiques dans le domaine de l'infrarouge moyen. J'y reviendrai plus loin en détail au paragraphe 4.9.

#### 4.1.2 Transitions interbandes

Dans le second terme de l'expression (4.2), la dérivation s'applique aux fonctions  $u$ . Il y a donc possibilité de changer de bande dans la transition : les énergies mises en jeu sont plutôt proches du gap, ou supérieures, et les transitions interbandes peuvent concerner l'optique du proche infrarouge et du visible.

De fait, l'élément de matrice  $\langle u_f | p_d | u_i \rangle$ , qui joue un rôle central dans la théorie des transitions optiques interbandes, est le même qui intervient dans la théorie de perturbation de Kane de la structure de bande (Cf. parag. 3.3.2). Cela renforce l'intérêt d'exprimer les états de bande dans l'esprit de cette théorie. L'étude de cet élément de matrice, conduit à une première série de règles de sélection présentées au paragraphe 4.2.1.

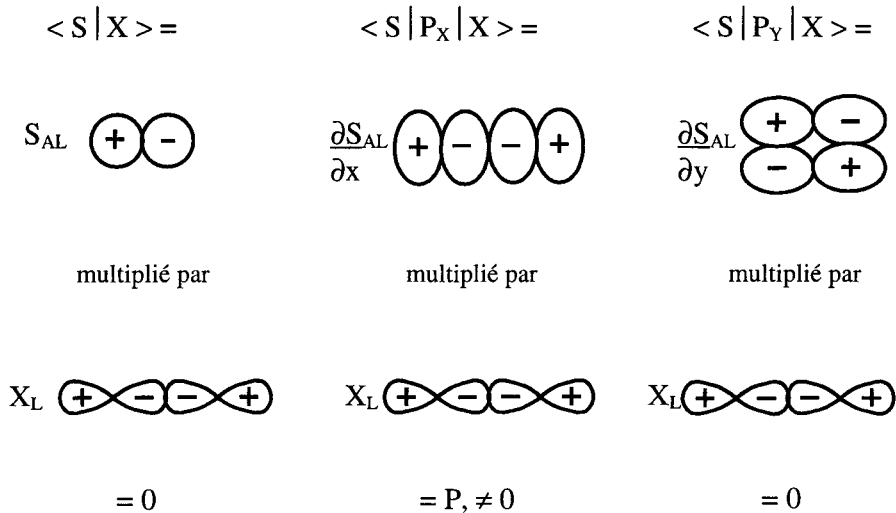
Dans ce terme, vient aussi le produit scalaire des fonctions enveloppes modulées par le champ. Dans un semi-conducteur massif c'est  $\int e^{i[(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}]} d^3r$  qui exprime donc la conservation du moment. Avec, en pratique,  $q = 0$ , on parle de transition optique *verticale*, et

on fonde la notion de matériau à *gap direct* (Cf. parag. 2.3). Mais lorsque l'invariance de translation est brisée, et particulièrement dans les hétérostructures, ce produit scalaire introduit de nouvelles règles de sélection, comme on va le voir au paragraphe 4.2.2.

**4.2 Transitions interbandes : règles de sélection et premiers effets du confinement**

Nous allons donc discuter ici successivement les deux éléments du terme interbande de la force de transition, et aussi l'influence sur les propriétés optiques de la densité en énergie des états électroniques.

4.2.1 L'élément de matrice interbande



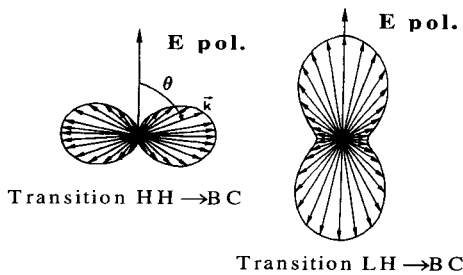
**Figure 4.1 :** Essai de représentation des éléments de matrice de l'opérateur  $\mathbf{p} = -i\hbar\vec{\nabla}$ , une dérivation, entre bandes de valence (X liant) et de conduction (S antiliant).

Il s'agit ici d'expliciter le calcul de l'élément de matrice les matériaux comme GaAs, CdTe, etc., matériaux, on l'a vu au paragraphe 1, les plus intéressants pour nous. Je rappelle qu'ils cristallisent dans la structure cubique blende de zinc ; au centre de la zone de Brillouin, la bande de conduction est issue des états S, et la bande de valence des états P (X, Y, Z). Nous avons déjà écrit les états "atomiques" de départ pour expliciter notre approche en liaisons fortes (fig. 2.2). Rappelons nous qu'ils sont orthogonaux et que l'opérateur p est une dérivation. On se convainc alors facilement en s'aidant de la figure 4.1 que seuls sont non nuls les éléments de type :  $\langle S | p_x | X \rangle = \langle S | p_y | Y \rangle = \langle S | p_z | Z \rangle = iP$ , où P est l'élément de matrice de Kane. Bien entendu, cette approche très qualitative est totalement confortée par la théorie des groupes (YC p.41). Donc un champ polarisé le long de x ne couplera à la bande de conduction

que la partie X des états de valence. Je rappelle que P a pratiquement la même valeur dans tous les "bons" semi-conducteurs :  $P^2/m_0 = 10\text{eV}$ .

Plusieurs conséquences peuvent être évoquées ici, dans les matériaux massifs et les hétérostructures.

Considérons d'abord l'excitation à travers le gap de paires électron-trou, d'énergie assez grande pour que les vecteurs d'onde des porteurs ne soient pas négligeables. Les électrons photocréés ont un moment  $\mathbf{k}$  dont la direction prédominante est perpendiculaire à la polarisation du champ électrique, alors que ceux photocréés à partir de la bande de trous légers ont un moment plutôt parallèle au champ. Il suffit pour le comprendre de se référer sur la figure 2.2 à la forme des fonctions d'onde  $m = \pm 3/2$  (trous lourds) et  $m = \pm 1/2$  (trous légers), et se rappeler ( Cf. parag. 2.2.3.3) que le moment orbital des trous est quantifié le long de la direction de  $\mathbf{k}$  dans un matériau massif.



**Figure 4.2 :** Distribution du moment  $\mathbf{k}$  des électrons photocréés à une énergie non négligeable. La longueur d'un vecteur donné est proportionnelle à la population des états dont le moment  $\mathbf{k}$  est parallèle à ce vecteur.  
D'après F. Charfi [33]

La répartition des électrons de conduction dans l'espace des  $\mathbf{k}$  portera donc la trace de la polarisation (Cf. fig.4.2), du moins avant relaxation du moment. C'est l'*alignement optique des électrons* [33,34]. La luminescence hors d'équilibre, mais aussi de nombreux effets d'optique non linéaire (saturation d'absorption par exemple), gardent la mémoire de cet alignement.

Voici une autre conséquence dans une hétérostructure bidimensionnelle. La dégénérescence trou-lourd/ trou léger est levée, y compris en  $\mathbf{k}_\perp = 0$ , où le moment orbital est quantifié le long de l'axe de croissance,  $z$ . On

constate alors facilement que les transitions impliquant les trous lourds sont interdites en polarisation //z.

Enfin, en explicitant les éléments de matrice de  $p$  pour les diverses polarisations, on montre aussi comment réaliser l'*orientation de spin par pompage optique*. Cette technique fera l'objet d'un développement plus long au paragraphe 4.8.

#### 4.2.2 Le recouvrement des fonctions enveloppes

On va maintenant voir comment évolue la règle de conservation du moment  $\mathbf{k}_i \approx \mathbf{k}_f$  hors du matériau massif homogène.

Lorsqu'intervient dans la transition un état lié suffisamment profond, la conservation de  $\mathbf{k}$  est en partie relaxée. Ainsi, la recombinaison d'un électron (de conduction) sur un accepteur neutre, est permise sur toute la largeur de la zone de Brillouin, avec une intensité variable qui reflète la composante de Fourier en  $\mathbf{k}$  de la fonction enveloppe de l'accepteur. C'est un outil souvent utilisé pour l'étude optique des distributions énergétiques d'électrons.

Dans les matériaux désordonnés (amorphes), on s'attend aussi à une relaxation de cette règle. Mais, plus important pour notre propos, dans les hétérostructures, la notion de moment perd son sens pour les directions de confinement. En conséquence, la règle des transitions verticales est partiellement remplacée par d'autres règles de sélection dépendant des fonctions enveloppes des états confinés.



Explicitons en quelques conséquences pour les structures bidimensionnelles de type I. Dans une structure symétrique (puits quantique carré, double puits) le hamiltonien effectif étant symétrique, les fonctions enveloppes propres sont, elles, symétriques ( $n$  impair) ou antisymétriques ( $n$  pair). On en déduit la règle de sélection :

Transition permise seulement si  $n_f - n_i$  est pair (pour une structure symétrique) (4.3 a)

Lorsque les deux particules sont confinées dans un puits carré de barrière suffisamment haute pour que l'approximation du puits infini soit légitime (compte tenu des masses effectives), le hamiltonien effectif ne dépend plus de la masse effective de la particule. En conséquence, les fonctions enveloppes propres d'électron et de trou d'indice différent sont orthogonales :

Transition permise seulement si  $n_f - n_i = 0$  (dans l'approximation du puits infini) (4.3 b)

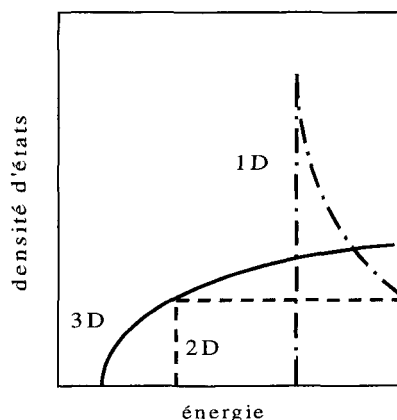
Cette approche se trouve souvent réaliste, par exemple dans le système GaAs/AlAs pour des puits assez larges, où les transitions à  $\Delta n \neq 0$  sont nettement moins intenses que les autres.

#### 4.2.3 Densités d'états conjointes

L'absorption optique, calculée à partir des éléments de matrice de  $\mathbf{A.p}$  par la Règle d'Or de Fermi, fait intervenir aussi la densité conjointe des états de départ et d'arrivée. Comme on l'a vu au paragraphe 3.2, cette densité d'états dépend de la dimension du système. On montre facilement que chaque niveau apporte une densité d'états :

$$\rho(E) = \frac{d-2}{2} \Theta(E - E_G)$$

pour  $d = 1, 2$  ou  $3$ .  $E_G$  est l'énergie du niveau de la structure, c'est-à-dire inclut les effets de confinement à  $d < 3$ . La dépendance spectrale de l'absorption sera donc très différente, comme il est illustré sur la figure 4.3. Il est intéressant de noter que, sans même introduire d'effet excitonique, réduire la dimension permet de mieux "piquer" l'absorption, avec les conséquences qu'on peut imaginer sur les propriétés non linéaires.

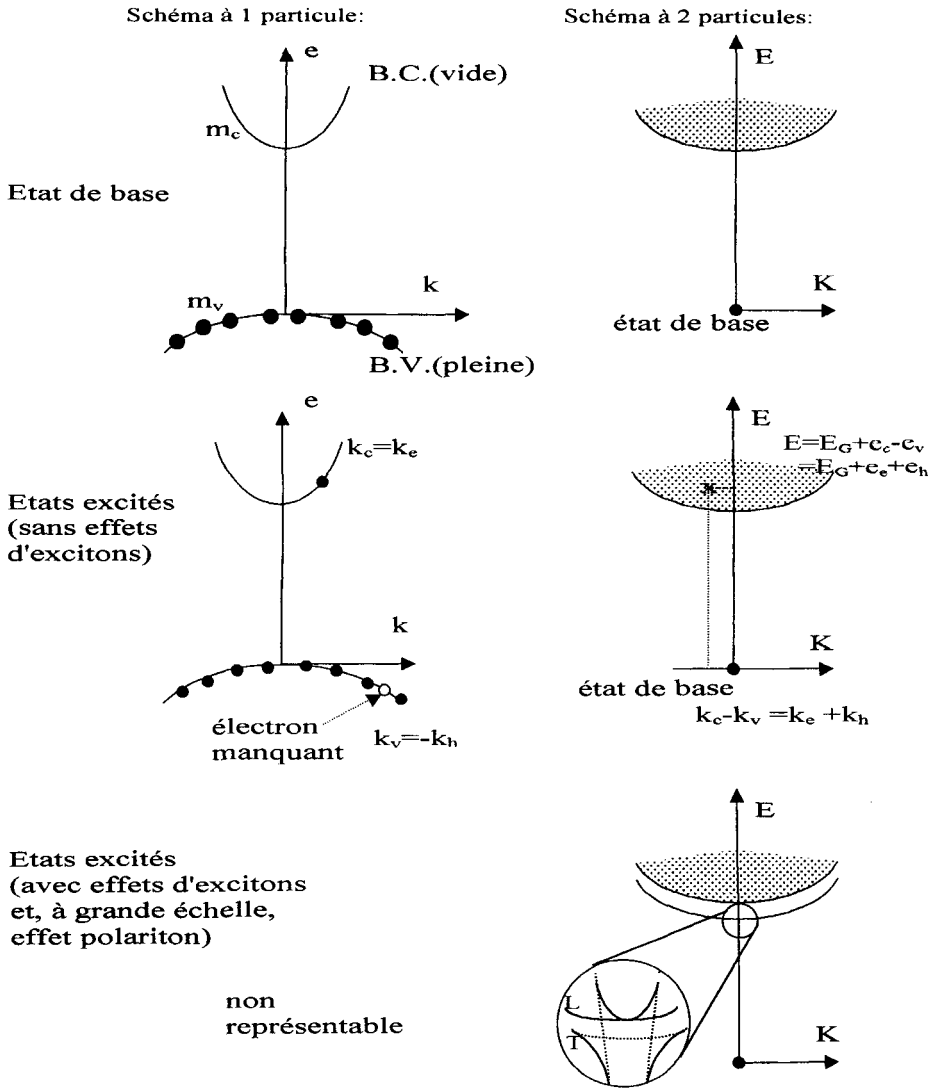


**Figure 4.3 :** Spectre d'absorption (hors effets excitoniques) d'un semi-conducteur massif (3D), puis réduit à un puits (2D) et à un fil quantique (1D). Cette réduction induit une augmentation du gap et aussi un « piquage » de la densité d'état.

#### 4.3 Excitons

Le concept d'exciton s'impose expérimentalement dans l'étude des propriétés optiques des semi-conducteurs, surtout pour les grands gaps ( $> 2\text{eV}$ ) et dans les hétérostructures, où ses effets peuvent rester visibles à température ambiante. Il est pertinent dans le régime linéaire (faible excitation) ; de fait, nous verrons en plusieurs occasions au

cours de cette École que les premières non-linéarités résonantes de type  $\chi_3$  ont pour origine l'altération des effets d'excitons due à la puissance excitatrice.



**Figure 4.4 :** Un schéma à 2 particules est indispensable pour comprendre l'exciton et, bien sûr, le polariton excitonique. En haut, l'état de base est représenté par le point 0,0. Au milieu, un état excité (paire électron-trou) par un point à l'intérieur de la parabole de courbure équivalent à une masse  $M = m_c + m_h$ . En bas, en incluant la liaison électron trou, on obtient les états d'exciton en dessous de la parabole des paires électron-trou. À l'intersection avec la courbe de dispersion des photons, le « zoom » montre l'anticroisement de l'effet Polariton.

Rappelons qu'il s'agit de décrire les premières excitations élémentaires du système électronique, à nombre d'électrons constant. Cette situation physique contraste avec celle du

dotage, où l'on modifie le nombre de particules qui peuplent les états de la structure, et qui se décrit bien sous l'approximation à un électron, tant que le dopage reste moyen. Dans ce dernier cadre, les excitations élémentaires du système sont les "paires électron-trou", qui fournissent une description satisfaisante de la conductivité intrinsèque, et même de l'absorption optique pour les énergies assez nettement supérieures au gap. Parler d'exciton, c'est aller au-delà de cette approximation à un électron. Dans ce domaine comme dans d'autres, l'intuition physique, guidée par l'expérience, a précédé un établissement théorique rigoureux. Je m'en tiendrai (par goût et par nécessité) à l'approche la plus intuitive.

Sur les excitons, le classique, aujourd'hui très vieilli, mais restant pour certains problèmes théoriques une référence indispensable, est le livre de Knox [35]. Comme livre de revue d'avant les hétérostructures, il faut citer celui édité par E.I. Rashba et M.D. Sturge [36]. On trouvera enfin une discussion critique et récente des théories naïves comme celle présentée ici, dans une contribution de M. Combescot [37]. Dans les hétérostructures, les excitons sont présents dans toute revue ou livre consacré aux propriétés optiques, et par exemple dans les références [4] pour la théorie, [5,6] pour des résultats expérimentaux. Cependant, le récent compte rendu d'École édité par Burstein et Weisbuch [27] est sans doute aujourd'hui le plus complet.

#### 4.3.1 L'exciton dans l'approximation de la masse effective : une vue dans l'espace réel

Considérons, formellement, un électron supplémentaire placé dans la bande de conduction. Les interactions entre cette particule et les  $N$  autres électrons de la bande de valence sont, par définition, prises en compte dans la valeur du gap. Retirer maintenant un électron dans la bande de valence va modifier ces interactions. C'est cette modification qui est approchée par une interaction coulombienne entre électron et trou. Il en résulte des états liés électron-trou qui ne peuvent plus se représenter dans un schéma de bande traditionnel, mais dans un schéma à deux particules (Cf. fig.4.4).

Cette interaction coulombienne se traite ensuite dans le cadre de l'approximation de la masse effective, avec les réserves usuelles sur sa validité : il faut que la fonction d'onde décrivant le mouvement relatif électron-trou (mouvement interne) soit délocalisée sur un grand nombre de cellules élémentaires, ce qui se vérifiera *a posteriori* dans tous les semi-conducteurs usuels. On parle alors d'exciton de Wannier, par opposition aux excitons de Frenkel, où l'électron et le trou restent localisés ensemble autour d'une même cellule. Dans le même esprit pragmatique, on pondère l'interaction coulombienne par une constante diélectrique  $\epsilon$ , dont la valeur précise dépendra de la fréquence caractéristique du mouvement interne de façon autoconsistante. En pratique, on prendra la valeur statique, sauf si le mouvement interne est plus rapide que celui des phonons optiques, ce qui se traduit par  $R_{ex}^* > \hbar\omega_{ph,LO}$  ; on prendra alors la valeur de  $\epsilon$  diminuée de leur contribution.

On se limite ici au cas de deux bandes paraboliques et non dégénérées de masses effectives  $m_e$  et  $m_h$ . La suite du raisonnement est exposée ci-dessous à 3 dimensions, mais est facilement généralisable à 2 D. Une écriture générale de fonction d'onde à deux particules, particulièrement pédagogique, est obtenue sur la base des fonctions de Wannier (Cf. parag. 2.2.4.2) :

$$\psi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = N^{-1} \sum_{\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h} \Phi(\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h) w(\mathbf{r}_e) w(\mathbf{r}_h)$$

où  $N$  est le nombre de sites (facteur de normalisation). Surtout,  $\mathbf{r}_e$  et  $\mathbf{r}_h$  sont les coordonnées de l'électron et du trou dont on veut décrire le mouvement, alors que  $\mathbf{R}_e$  et  $\mathbf{R}_h$  sont les sites qui labellent les fonctions de Wannier, localisées.  $\Phi(\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h)$  est la fonction enveloppe à deux particules sur laquelle nous allons travailler maintenant.

L'esprit de l'EFA consiste à user des coordonnées des sites comme s'il s'agissait de variables continues. Le hamiltonien effectif du système électron-trou sera de même type que celui de l'atome d'hydrogène, avec bien sûr, des masses effectives affectant le terme cinétique et une constante diélectrique diminuant l'interaction coulombienne :

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\mathbf{R}_e}^2 - \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_{\mathbf{R}_h}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\mathbf{R}_e - \mathbf{R}_h|} \right] \Phi(\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h) = E_x \Phi(\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h) \quad (4.4)$$

qui se traite comme il est bien connu dans le problème classique, en séparant et quantifiant successivement le mouvement du centre de masse d'une part, le mouvement relatif (interne) d'autre part :

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2M} \nabla_{\mathbf{R}}^2 \right] F(\mathbf{R}) = E_R F(\mathbf{R}) \text{ pour les coordonnées } \mathbf{R} = (m_e \mathbf{r}_e + m_h \mathbf{r}_h) / M \text{ du centre de}$$

masse, avec  $M = m_e + m_h$ , la *masse totale* ; et :

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon r} \right] \varphi(\mathbf{r}) = E_r \varphi(\mathbf{r}) \text{ pour la coordonnée } \mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h \text{ du mouvement}$$

interne, avec  $\mu = (m_e^{-1} + m_h^{-1})^{-1}$  la *masse réduite*.

Ces deux mouvements sont découplés, les états propres sont produits d'ondes planes pour  $\mathbf{R}$  :  $F(\mathbf{R}) = N^{-1/2} e^{i\mathbf{K}\cdot\mathbf{R}}$  d'énergie  $E_R = \hbar^2 K^2 / 2M$ , et de fonctions hydrogénoïdes pour  $\mathbf{r}$ . Il sont donc caractérisés par l'indice  $n$  ( $= 1s, 2s, 2p, \dots$ ) du mouvement interne et le vecteur d'onde  $\mathbf{K}$  du mouvement d'ensemble.

**Tableau 4.1** : Résumé des principales propriétés des états d'excitons à 3 et 2 dimensions, en fonction du Rydberg  $R^*$  et du rayon de Bohr  $a^*$  tridimensionnels, dans les matériaux de type zinc blende à transition permise en  $k=0$ .

	3D	2D
Energie de liaison	$R^* 1/n^2$ $n=1, 2, \text{etc} \dots$	$R^* 1/(n+1/2)^2$ $n=0, 1, \text{etc} \dots$
Fonction enveloppe radiale de l'état de base,	$\varphi_{1,0} = a^{*-3/2} 2e^{-r/a^*}$	$\varphi_{0,0} = a^{*-1} 4e^{-2r/a^*}$
Fonction enveloppe radiale du 1 <sup>er</sup> état excité S	$\varphi_{2,0} = (2a^*)^{-3/2} (2-r/a^*)e^{-r/2a^*}$	$\varphi_{1,0} = a^{*-1} (4/3\sqrt{3}) \times (1-4r/3a^*)e^{-2r/3a^*}$
Fonction enveloppe radiale des 1 <sup>ers</sup> états excités P	$\varphi_{2,1} = (2a^*)^{-3/2} (r/a^* \sqrt{3})e^{-r/2a^*}$	$\varphi_{1,\pm 1} = a^{*-1} (16/9\sqrt{6}) (r/a^*)e^{-2r/3a^*}$
Force d'oscillateur des états S ( $n, l=0$ )	$\propto 1/n^3$	$\propto 1/(n+1/2)^3$

Le tableau 4.1 rappelle quelques résultats classiques sur ces fonctions à 3 et 2 dimensions. Les quantités caractéristiques de ces états s'expriment à partir d'un Rydberg effectif  $R_X^* = 13,6eV \frac{\mu}{m_0} \frac{1}{\epsilon^2}$  qui vaut typiquement de 1 à 100 meV.

et d'un rayon de Bohr effectif  $a_B^* = 0,053 \text{ nm} \frac{m_0}{\mu} \epsilon$  de 1 à 50 nm, ce qui justifie *a posteriori*

l'EFA pour ces excitons de Wannier. Dans beaucoup de cas,  $m_e \ll m_h$ , et donc ces quantités sont proches de celles d'un donneur.

Il est bien entendu possible de trouver dans la littérature des calculs plus poussés, prenant en particulier en compte la dégénérescence de la bande de valence [38]. Mais il est plus important, pour notre propos, de compléter nos points de vue de la même réalité.

#### 4.3.2 L'exciton dans l'approximation de la masse effective : une vue dans l'espace réciproque

Il est intéressant de ne pas s'en tenir à une représentation de l'exciton sur l'espace réel des fonctions de Wannier, mais d'en avoir une vision "transformée de Fourier" dans l'espace des  $k$ . Cela peut se faire à propos de nombreux problèmes mais il se trouve que nous aurons besoin dans la suite d'écrire les opérateurs création et annihilation d'exciton. Je suppose le lecteur familiarisé avec le formalisme de la seconde quantification. Si ce n'est pas le cas, il pourra s'initier [39] et trouvera un premier exercice d'application facile dans ce qui suit et le paragraphe 4.4.2.

Nous allons construire les opérateurs « excitons »  $X_{n,K}^+$  et  $X_{n,K}$  par combinaison linéaire des opérateurs « électron » et « trou », ce qui est en principe toujours possible, ces derniers formant une base complète. Ce sont :

$\alpha_{\mathbf{k}_e}^+$ ,  $\alpha_{\mathbf{k}_e}$  pour les électrons et

$\beta_{\mathbf{k}_h}^+ = -\alpha_{\mathbf{k}_h}$ ,  $\beta_{\mathbf{k}_h} = \alpha_{\mathbf{k}_e}^+$  pour les trous.

Dans le cadre de l'EFA (appliquée sur la base des fonctions de Wannier) l'opérateur création d'exciton de niveau  $n$  et de vecteur d'onde  $K$  pourra donc s'écrire :

$$\begin{aligned} X_{n,K}^+ &= \sum_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h} \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | n, \mathbf{K} \rangle \alpha_{\mathbf{k}_e}^+ \beta_{\mathbf{k}_h}^+ = \\ X_{n,K}^+ &= \sum_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h} \sum_{\mathbf{R}_e, \mathbf{R}_h} \sum_{\mathbf{R}'_e, \mathbf{R}'_h} e^{-i\mathbf{k}_e \cdot \mathbf{R}_e} e^{-i\mathbf{k}_h \cdot \mathbf{R}_h} \Phi(\mathbf{R}'_e, \mathbf{R}'_h) \\ &\quad \times \int w_{\mathbf{R}_e}^*(\mathbf{r}_e) w_{\mathbf{R}_h}^*(\mathbf{r}_h) w_{\mathbf{R}'_e}(\mathbf{r}_e) w_{\mathbf{R}'_h}(\mathbf{r}_h) d^3r_e d^3r_h \alpha_{\mathbf{k}_e}^+ \beta_{\mathbf{k}_h}^+ \quad (4.5) \end{aligned}$$

L'expression se simplifie en utilisant le fait que les fonctions de Wannier forment une base orthonormée, ce qui introduit les conditions  $\mathbf{R}'_e = \mathbf{R}_e$  et  $\mathbf{R}'_h = \mathbf{R}_h$ . Ensuite, les choses s'éclairent avec le changement de variable :

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{K}} &= \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h & \mathbf{R} &= (m_e \mathbf{r}_e + m_h \mathbf{r}_h) / M \\ \bar{\mathbf{k}} &= \left( \frac{\mathbf{k}_e}{m_e} - \frac{\mathbf{k}_h}{m_h} \right) \frac{m_e m_h}{M} & \mathbf{r} &= \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h \end{aligned} \quad (4.6)$$

Comme attendu, on va traiter les coordonnées de site comme des variables continues, transformant les sommes en intégrales avec les coefficients de normalisation *ad hoc*. Alors, l'expression (4.5) s'écrit sans trop de difficultés [40] :

$$X_{n,\mathbf{K}}^+ = \sum_{\mathbf{k}} \vec{\varphi}(\bar{\mathbf{k}}) \alpha_{\frac{m_e}{M}\mathbf{K}+\bar{\mathbf{k}}}^+ \beta_{\frac{m_h}{M}\mathbf{K}-\bar{\mathbf{k}}}^+ \quad (4.7)$$

L'état d'exciton est construit, on s'en doutait, sur des paires électron-trou de même  $\bar{\mathbf{K}} = \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h = \mathbf{K}$ . Le deuxième vecteur caractéristique de la paire,  $\bar{\mathbf{k}}$ , se distribue sur tout l'espace réciproque, mais pondéré par la fonction  $\vec{\varphi}(\bar{\mathbf{k}})$ , transformée de Fourier de la fonction hydrogénoïde  $\varphi(\mathbf{r})$ .

Pour les états de base de l'exciton, on a

$$\text{en 3d : } \vec{\varphi}(\bar{\mathbf{k}}) = 8\sqrt{\pi} a_B^* \left[ 1 + (\bar{\mathbf{k}} a_B^*)^2 \right]^{-2}, \text{ et en 2d : } \vec{\varphi}(\bar{\mathbf{k}}) = \sqrt{2\pi} a_B^* \left[ 1 + (\bar{\mathbf{k}} a_B^*/2)^2 \right]^{-3/2}$$

L'exciton est donc construit essentiellement sur des paires électron-trou de  $\bar{\mathbf{k}}$  inférieur à l'inverse du rayon de Bohr, avec une probabilité maximum pour celles de  $\bar{\mathbf{k}} \approx \mathbf{0}$ . Il est intéressant de remarquer, en utilisant (4.7) et l'approximation des bandes paraboliques, que :

$$\bar{\mathbf{k}} \approx \mathbf{0} \Rightarrow \frac{k_e}{m_e} \approx \frac{k_h}{m_h} \Rightarrow \frac{\partial E_e}{\partial k_e} \approx \frac{\partial E_h}{\partial k_h} \Rightarrow \left. \frac{\partial E_X}{\partial \bar{\mathbf{k}}} \right|_{\bar{\mathbf{K}}=\mathbf{K}}$$

On en déduit que :

- les paires les plus probables dans l'exciton sont celles d'énergie minimum pour un  $\mathbf{K}$  donné, ce qui est logique puisqu'on cherche dans l'exciton l'état de base des états excités.
- les vitesse de groupe d'électron et de trou sont approximativement égales dans l'exciton, ce qui peut s'interpréter en disant que les deux particules "voyagent ensemble" à travers le cristal. J'ai choisi dans la figure 4.4 de représenter une telle paire, d'énergie relativement basse, et on pourra y vérifier que les pentes des courbes de dispersion pour l'électron et le trou sont proches.

L'analogie entre l'état d'exciton et un atome hydrogénoïde ne doit pas inspirer d'idée fausse. Cet état préexiste à toute illumination, mais il est vide. L'absorption d'un photon le peuple. Les analogues des états de base et excité d'un atome sont plutôt, rappelons le, les bandes de valence et de conduction. Mais l'exciton est une excitation élémentaire en théorie parfaitement délocalisée sur tout le cristal, et en pratique sur plusieurs centaines de nm, plusieurs expériences l'attestent [41].

#### 4.4 Vers les fortes excitations

L'influence de la densité d'excitation sur l'intensité du pic exciton et sur sa position est à l'origine des principales non-linéarités aux énergies proches du gap, du moins dans les semi-conducteurs intrinsèques. Elle relève des théories les plus élaborées de la physique des solides, celles qui permettent d'aller au-delà de l'approximation à un électron, vers les problèmes "à N-corps". Sur ce sujet immense [42], je limiterai mon ambition à donner au

lecteur une idée des mécanismes en jeu. En simplifiant donc à l'extrême [43], je distinguerai trois types d'effets.

4.4.1 *L'écrantage de l'interaction coulombienne*, dû aux porteurs libres. Il est donc plutôt efficace à haute température. Par ailleurs, en 2D, ce mécanisme perd de l'efficacité car il n'est pas facile d'écranter des lignes de champ 3D avec un gaz d'électrons 2D.

On peut le décrire en modifiant l'interaction coulombienne comme suit :

$$\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon|r_e - r_h|} e^{|r_e - r_h|/l_s}$$

La longueur  $l_s$  peut être estimée à partir de la fonction diélectrique du gaz d'électrons  $\epsilon(q)$ , dépendant du vecteur d'onde. *Grosso modo*, elle dépend de la capacité du système à fournir des électrons pour "gommer" les variations du potentiel. La quantité clé est donc la dérivée de la densité de particules par rapport au potentiel chimique, ou niveau de Fermi :  $\partial n / \partial E_F$ .

Pour un gaz classique (modèle de Debye Hückel en 3D), c'est la température qui limitera l'écrantage :  $l_s^{DH} = (\epsilon_0 \epsilon k T / e^2 n)^{1/2}$

Pour un gaz dégénéré (modèle de Thomas Fermi, également à 3D), ce sont plutôt le principe de Pauli et la masse effective :

$$l_s^{TF} = (2\epsilon_0 \epsilon E_F / 3e^2 n)^{1/2} \text{ avec } n \text{ relié au niveau de Fermi par}$$

$$n = \frac{1}{3\pi^2} (2mE_F / \hbar^2)^{3/2}$$

En pratique, à basse température et à 3D, l'écrantage de Thomas Fermi est très efficace, et  $l_s$  est de l'ordre de la distance moyenne entre électrons. Puis, comme la température augmente, l'écrantage de Debye prend le relais quand  $kT > 2/3 E_F$ . On le comprend, l'exciton cessera d'être lié lorsque la longueur d'écran  $l_s$  sera comparable au rayon de Bohr  $a_B^*$  de l'exciton. Cette condition peut se traduire en termes de *densité critique*, dite de *Mott*, pour la transition de phase entre un gaz d'exciton et un plasma électron-trou (Cf. fig.4.5 a)

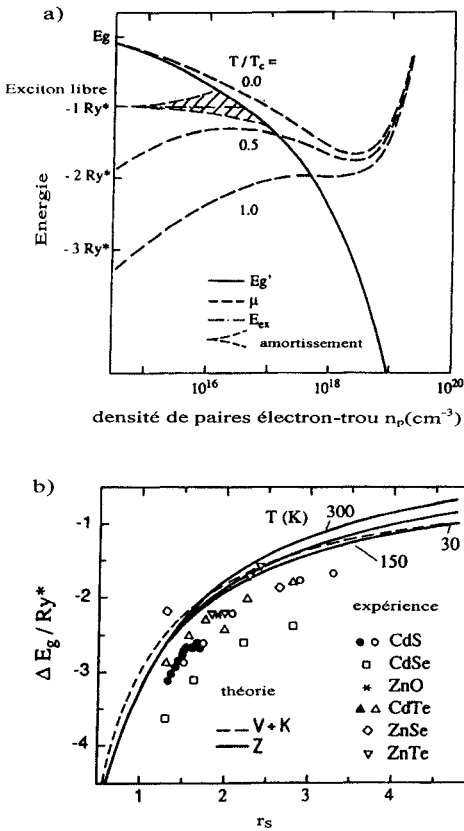


Figure 4.5 : a) Evolution, avec la densité de porteurs, de la liaison excitonique dans CdS. b) Exprimée en fonction de  $r_s$  (voir paragraphe 4.4.3) et exprimée en unité de Rydberg  $Ry^*$ , la renormalisation du gap est à peu près la même pour tous les semi-conducteurs III-V (dont les points représentatifs se confondent avec les courbes théoriques) et II-VI. (Emprunté à C.F.

Klingshirn [5] p.308 )

4.4.2 *Le remplissage de l'espace des phases* s'impose donc surtout à 2D. On dit souvent, non sans prendre un air mystérieux, que l'exciton est un boson. Mais il est composite, formé de deux fermions, l'électron et le trou. Que faut-il en penser? Nous sommes en mesure de calculer les commutateurs de type :  $[X_{1,0}, X_{1,0}^+]$ , qui vaut 1 pour les bosons et  $-1$  pour les fermions. Pour simplifier, on prendra l'état de base  $n = 1$  et  $\mathbf{K} = \mathbf{0}$ . Alors, en utilisant le résultat (4.7), il vient :

$$[X_{1,0}, X_{1,0}^+] = \sum_{\mathbf{k}} |\varphi_{1,0}|^2 \left( 1 - \alpha_{\mathbf{k}}^+ \alpha_{\mathbf{k}}^- - \beta_{-\mathbf{k}}^+ \beta_{-\mathbf{k}}^- \right) \approx 1 - o(n a_B^{*3}),$$

mais qui diminue à l'approche de la densité critique  $a_B^{*-3}$ . Elle n'est pas très éloignée de la densité de Mott. Autrement dit, les excitons sont des bosons tant qu'il n'y en a pas trop, c'est-à-dire nettement moins d'un par "volume" excitonique.

4.4.3 *Ces deux phénomènes, écrantage et remplissage*, se conjuguent pour faire apparaître aux excitations intermédiaires ( $10^{16}$ - $10^{17}$  paires par  $\text{cm}^3$ ), un plasma électron-trou qui remplace le gaz d'excitons neutres. De ce fait, l'intensité du pic d'absorption caractéristique de l'exciton et son énergie de liaison diminuent. Cela tendrait à faire remonter l'énergie du gap effectif si ce mouvement n'était contrarié par un *troisième* phénomène important : la *renormalisation du gap*. On peut voir ce phénomène comme une généralisation à haute densité de la liaison excitonique, qui serait une sorte de "renormalisation locale". C'est pourquoi il est pertinent d'exprimer dans l'étude de ce phénomène :

- la densité par le paramètre réduit  $r_s/a_B^*$ , avec  $4\pi r_s^3/3 = n$
- la fermeture du gap en unités de Rydberg excitonique  $R^*$ .

Exprimée en fonction de ces quantités, la renormalisation est à peu près indépendante du matériau, du moins en 3D, comme le montre la figure 4.5 b.

## 4.5 L'exciton dans les hétérostructures

Comme on l'a vu au paragraphe 4.3, l'exciton 1S à 2 dimensions (mais l'interaction de Coulomb reste tridimensionnelle) est 4 fois plus lié qu'à 3D, toutes choses égales par ailleurs. Ce résultat n'est rigoureusement valable que pour des puits quantiques assez étroits et de barrières assez hautes pour que les états électroniques de départ soient bien bidimensionnels.

On peut interpréter cette grande énergie de liaison comme une forte tendance de l'exciton à rester sphérique malgré le confinement des barrières, pour minimiser l'énergie cinétique du mouvement interne ; en conséquence, l'électron et le trou se rapprochent dans toutes les directions, et pas seulement le long de  $z$ . On peut aussi dire qu'à cause de la densité d'état en marche d'escalier, un plus grand nombre d'états de paires de basse énergie peuvent participer à la construction de l'état de base. Par contre, les états excités sont remarquablement moins liés qu'en 3D, et moins couplés à la lumière, ce qui va de pair.

Tout se passe donc comme si une fraction encore plus importante de force d'oscillateur répartie dans les bandes était regroupée sur un seul niveau. En pratique, même si la situation physique n'est pas idéalement bidimensionnelle, on observe des effets excitoniques à température ambiante, y compris dans les semi-conducteurs III-V. Cette situation conduit à un accident d'absorption ou d'indice de réfraction assez marqué, et ceci dans la matière



condensée, c'est-à-dire avec une probabilité d'interaction forte. Elle est à l'origine du succès des hétérostructures pour l'optique non linéaire et certains dispositifs.

Parmi ces derniers, deux ont connu un développement remarquable et font l'objet de nombreuses présentations pédagogiques [44]. Entre la conception de l'effet, véritablement quantique, parfaitement descriptible dans le cadre de l'EFA, et l'introduction dans le catalogue de certains fournisseurs, il ne s'est écoulé qu'une petite décennie (1983-1993). Le premier est fondé sur l'*effet Stark confiné quantiquement* (QCSE) [45], où un champ électrique, parallèle à l'axe de croissance  $z$ , sépare le long de  $z$  les états d'électron et de trou confinés à l'intérieur d'un puits quantique. Cela diminue l'énergie et la force de la transition excitonique, réalisant un modulateur de lumière efficace et rapide. Le second est fondé sur l'*effet Wannier Stark* [46]. La structure de départ est un super-réseau, présentant donc des états délocalisés le long de  $z$ , et construits par combinaison linéaire des états de puits couplés (Cf. parag. 3.2.1). L'application d'un champ électrique le long de  $z$  lève la dégénérescence entre ces états de puits et donc diminue le couplage. On arrive au résultat paradoxal que *la champ localise les états*, modifiant là aussi le spectre d'absorption. Cet effet, qui s'est révélé subtilement relié à l'oscillateur de Bloch [47], est un exemple remarquable d'exercice de mécanique quantique, profond mais simple et de bon goût, qui s'est transformé en réalité au laboratoire, puis dans l'industrie.

Cependant, dans une hétérostructure non strictement bidimensionnelle, un puits large ou un super-réseau par exemple, seuls des calculs assez lourds permettront d'estimer avec précision les énergies de liaison excitoniques. Ils sont souvent fondés sur une approche variationnelle. Si l'on ne peut y consacrer du temps, on en est réduit à utiliser des abaques résumant des calculs numériques [48]. Il faut aussi citer une approche phénoménologique intéressante qui définit et utilise une dimension non entière de la structure [49]. En tous cas, le paramètre clé pour ces questions est le rapport de la largeur de la structure avec le rayon de Bohr.

Enfin, je cite ici pour mémoire les boîtes quantiques, dont D. Ricard parle en détail. Selon le rapport des dimensions caractéristiques du problème (rayon de Bohr et dimensions de la boîte), ce sera l'effet d'exciton qui perturbera l'effet de confinement, ou l'inverse.

#### 4.6 Couplage exciton-photon

Le premier calcul de l'interaction entre l'exciton et le champ électromagnétique de la lumière est dû à Elliott [50]. L'élément de matrice de couplage est une somme cohérente des contributions des paires électron-trou qui construisent l'exciton :

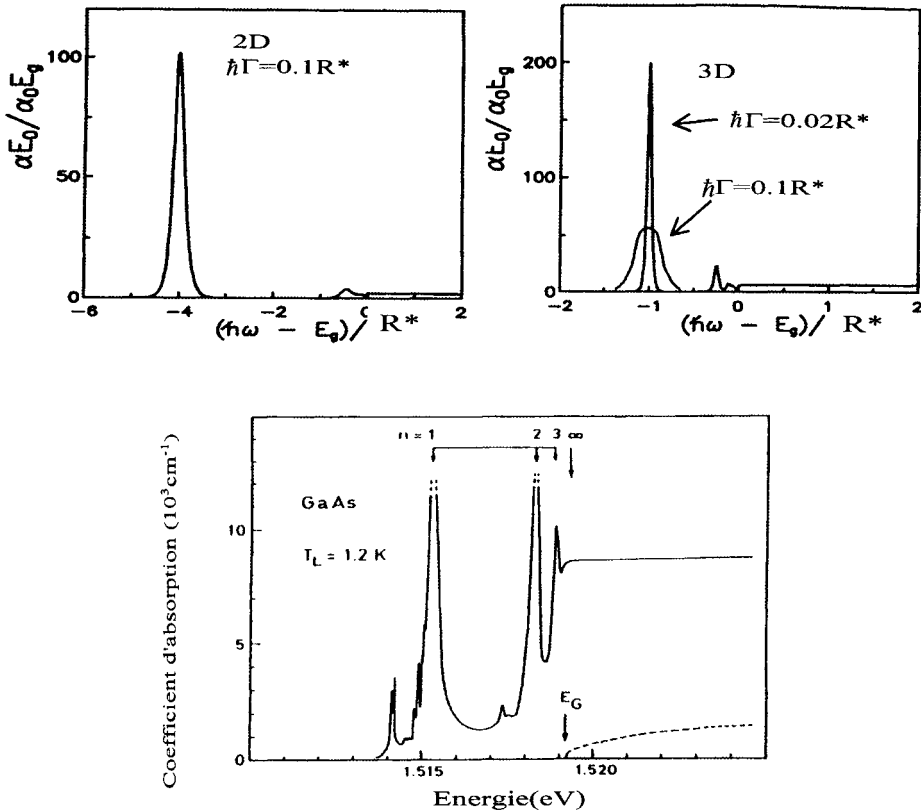
$$\begin{aligned}
 \langle n, \mathbf{K} | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | 0 \rangle &\propto \sum_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h} \langle n, \mathbf{K} | \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h \rangle \langle \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | 0 \rangle \\
 &\propto \sum_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h} \langle n, \mathbf{K} | \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h \rangle \langle \mathbf{k}_e | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | -\mathbf{k}_h \rangle \\
 &\propto \sum_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h} \langle n, \mathbf{K} | \mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h \rangle \int e^{(-\mathbf{k}_e - \mathbf{k}_h + \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r}} \langle u_{c, \mathbf{k}_e} | \mathbf{p} | u_{v, -\mathbf{k}_h + \mathbf{q}} \rangle d^3r \quad (4.9)
 \end{aligned}$$

La dernière intégrale sur  $\mathbf{r}$  impose la conservation du moment :  $\mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h = \mathbf{q}$ , le moment de la lumière. De plus, dans le cadre de l'EFA pour les excitons de Wannier, l'extension en  $\mathbf{k}_e$  et  $\mathbf{k}_h$  est réduite, ce qui permet de supposer :  $\langle u_{c, \mathbf{k}_e} | \mathbf{p} | u_{v, -\mathbf{k}_h + \mathbf{q}} \rangle \approx \langle u_c | \mathbf{p} | u_v \rangle$ , indépendant de  $\mathbf{k}$ , et

bien sûr de  $\mathbf{q}$ . La somme sur  $\mathbf{k}_e$  et  $\mathbf{k}_h$  se traite de la même façon qu'au paragraphe 4.3.2 (éq. 4.5). En effectuant le changement de variable (4.6), il vient :

$$\langle n, \mathbf{K} | \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} | 0 \rangle \propto \langle u_c | \mathbf{p} | u_v \rangle \delta(\mathbf{K} - \mathbf{q}) \sum_{\mathbf{k}} \vec{\varphi}_n(\mathbf{k}) \propto \langle u_c | \mathbf{p} | u_v \rangle \delta(\mathbf{K} - \mathbf{q}) \varphi_n(\mathbf{r} = \mathbf{0}) \quad (4.10)$$

Le premier terme rappelle que l'exciton regroupe des transitions interbandes. Le second terme exprime la conservation du vecteur d'onde : l'absorption optique crée des excitons de  $\mathbf{K} = \mathbf{q} \sim 0$ . Dans le troisième terme, on n'oubliera pas que  $\varphi(\mathbf{r})$  et  $\vec{\varphi}(\mathbf{k})$  sont, respectivement, la fonction enveloppe des coordonnées internes à l'exciton, et sa transformée de Fourier.  $\varphi_n(0)$  est donc la probabilité de trouver l'électron et le trou sur la même cellule unité ("au même endroit"). Ce dernier terme n'est non nul que pour les états ns ( $l = m = 0$ ) de l'exciton, dans le "bon" cas où l'élément de matrice interbande est non nul et indépendant de  $\mathbf{k}$ . Cependant, il est intéressant de noter que dans le cas où l'élément de matrice interbande est nul en  $\mathbf{k} = 0$  ( $\text{Cu}_2\text{O}$  par exemple), il est possible à l'aide d'un développement limité en  $\bar{\mathbf{k}}$  de montrer que les états p de l'exciton deviennent permis.



**Figure 4.6 :** Spectres d'absorption calculés par Haug et Koch ([4] p.196) en tenant compte de tous les effets excitoniques, y compris le facteur de Sommerfeld. On a élargi le pic exciton 3D à  $0,1R^*$  pour comparer à la situation 2D. En bas, magnifique spectre expérimental d'absorption de GaAs massif (3D) obtenu par R.Ulbrich ([27] p.33). En pointillé, l'absorption théorique sans effet d'exciton.

Le terme  $\varphi_n(0)$  est proportionnel à l'inverse du "volume de Bohr". Il est donc d'autant plus fort que l'exciton est plus lié. De façon complémentaire on peut voir les paires électron-trou qui le construisent coopérer pour concentrer une part  $\overline{\varphi}(\vec{k})$  de leur force d'oscillateur à l'énergie de l'exciton. C'est de cet effet, et non pas de l'élément de matrice de Kane, que vient le meilleur couplage exciton-photon dans les semi-conducteurs II-VI (constante diélectrique un peu plus faible et surtout grand gap, donc masse effective électronique élevée). Ce renforcement est particulièrement net à 2D, où le premier niveau d'exciton est bien séparé des suivants (Cf. fig. 4.6).

L'influence de l'interaction coulombienne se fait également sentir sur les états non liés de l'exciton ; autrement dit, même les paires électron-trou "libres" sont corrélées positivement. Il en résulte un renforcement de l'absorption au dessus du gap par rapport à la loi en  $E^{1/2}$  (à 3D) ou en marche d'escalier (à 2D). Ce renforcement est souvent appelé "facteur de Sommerfeld". Il est particulièrement spectaculaire à 3D, puisque l'absorption au gap, nulle sans corrélation électron-trou, atteint la valeur qu'elle aurait à plusieurs Rydberg au dessus du gap, comme on le voit sur le spectre expérimental de la figure 4.6. À 2D, ce renforcement au bord du gap est d'environ un facteur 2.

## 4.7 Le polariton excitonique

### 4.7.1 dans les matériaux massifs

Considérer l'absorption comme une transformation photon  $\Rightarrow$  exciton, dans le schéma à deux particules de la figure 4.4, permet de montrer qu'on a affaire à une situation physique entièrement nouvelle. En effet, avec l'exciton tridimensionnel dans son état de base, on a une excitation d'énergie bien définie, qui donne lieu à une transition optique au spectre piqué, bien que nous soyons dans un solide. Mais on ne retrouve pas la situation d'un atome, car le milieu est dense. C'est pourquoi les états sont étendus et doués d'un vecteur d'onde (les excitons). Et chaque état d'exciton est couplé à un et un seul état de photon, grâce à la règle de sélection en  $\mathbf{K}$ . Donc rien ne s'oppose, dans une vision première des choses, à une suite cohérente d'événements photon  $\Rightarrow$  exciton  $\Rightarrow$  photon  $\Rightarrow$  exciton  $\Rightarrow$  etc... En réalité (Cf. fig. 4.7 en haut), on a deux états discrets couplés qui vont interagir pour donner un être hybride, le polariton excitonique [51], avec un anticroisement des courbes de dispersion qu'on peut voir dans le « zoom » de la figure 4.4.

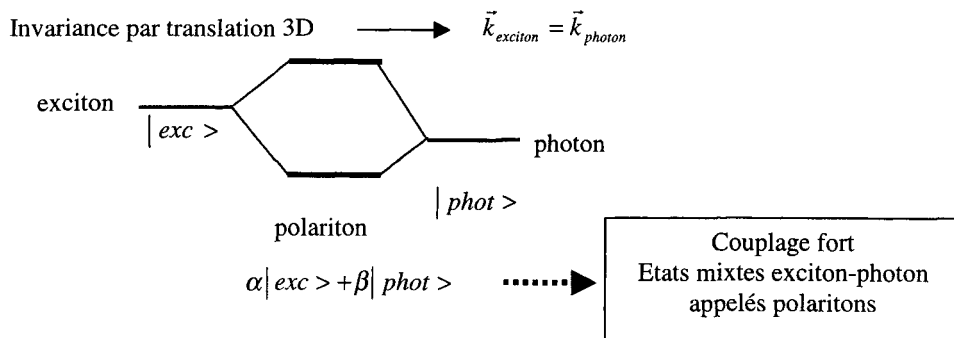
Le traitement temporel de l'interaction champ-matière est complètement différent de la situation où l'état d'arrivée de la transition appartient à un continuum, et où il y a dissipation de l'énergie dans ce continuum : c'est alors la Règle d'Or de Fermi qui décrit la transition. Cette situation est, entre autres, celle de la recombinaison excitonique d'un puits quantique placé dans un environnement quelconque (Cf. fig. 4.7 au milieu).

Le polariton excitonique a de nombreux analogues en physique. Cette situation, dite de *couplage fort*, se retrouve depuis l'expérience d'amphithéâtre des deux pendules couplés, jusqu'au polariton-phonon, qui décrit le couplage entre la lumière (infrarouge) et les oscillateurs mécaniques que sont les phonons optiques. En l'absence d'interaction dissipative supplémentaire (diffusion, collisions inélastiques avec les phonons,...), il n'y a plus d'absorption. La réflectivité, la transmission, la luminescence sont décrites comme propagation de polaritons à travers la surface de l'échantillon.

Comme dans le cas des polaritons-phonons [52], nous sommes dans de la matière dense, donc douée d'une « constante » diélectrique dépendant de la fréquence et, secondairement, du

### Matériau massif

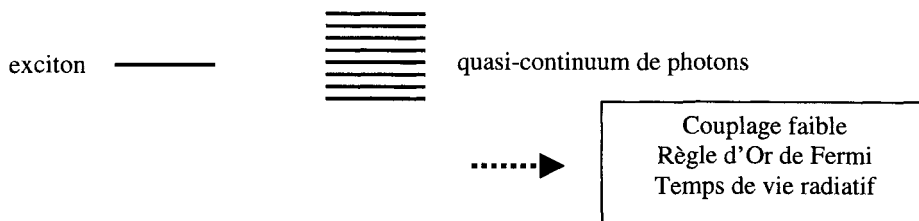
Vecteur d'onde du centre de masse de l'exciton :  $\vec{k}_{exciton}$



### Puits quantique dans un matériau massif

Invariance par translation 2D  $\longrightarrow \vec{k}_{//exciton} = \vec{k}_{//photon}$

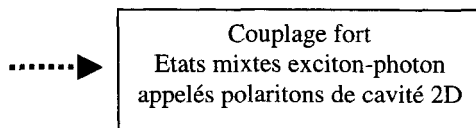
Pas de règle de sélection pour  $k_{z,photon}$



### Puits quantique dans une microcavité

Invariance par translation 2D  $\longrightarrow \vec{k}_{//exciton} = \vec{k}_{//photon}$

$k_{z,photon}$  fixé par la cavité



**Figure 4.7** : Schéma des trois situations induites par le couplage exciton-photon. Couplage fort (en haut et en bas) lorsque les deux objets sont de même dimensionnalité : la conservation du moment induit un couplage un pour un, sans nécessiter la conservation de l'énergie. Couplage faible (au milieu) lorsque ce n'est pas le cas : la conservation de l'énergie est alors imposée par la Règle d'Or de Fermi.

vecteur d'onde. La manipulation des équations de Maxwell permet de distinguer des ondes longitudinales et transverses. Les premières correspondent à un zéro de la fonction diélectrique et ne sont pas couplées à la lumière :  $\epsilon(\omega_L) = 0$ . Les secondes correspondent à un pôle de la fonction diélectrique et se couplent à la lumière :  $c^2k^2 = \omega_T^2\epsilon(\omega_T)$ . Ce couplage est intimement lié à la différence d'énergie  $\Delta_{LT}$  entre les ondes longitudinales et transverses. Il est donc commode d'exprimer la fonction diélectrique du système sous la forme :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{bf} \left( 1 - \frac{\Delta_{LT}/\hbar}{\omega - \omega_X(k) - i\gamma} \right) \quad (4.11)$$

où  $\epsilon_{bf}$  est la constante diélectrique basse fréquence, c'est-à-dire aux énergies juste inférieures à la transition considérée (elle est souvent notée  $\epsilon_0$ , ce qui peut prêter à confusion ; dans notre cas, c'est généralement la constante diélectrique statique diminuée de la contribution des phonons optiques).  $\Delta_{LT}$  contient pour l'essentiel la force d'oscillateur (par unité de volume) du niveau d'exciton, d'énergie  $\omega_X(k)$ . Enfin, particularité remarquable, l'énergie du pôle dépend du vecteur d'onde. C'est la "dispersion spatiale".

On tire de ces équations implicites les courbes de dispersion des ondes longitudinales et transverses, ces dernières présentant l'anticroisement qui signe le couplage fort exciton-photon. À cause de la dispersion spatiale, on trouve deux modes de  $k$  différents pour une même énergie au dessus de  $E_L$ . Il en résulte que les équations de Maxwell ne suffisent pas à décrire la transmission des polaritons à la surface du cristal. Il faut y ajouter des "Conditions aux Limites Additionnelles" (ABC), qui ont été l'objet de très nombreux débats et, en pratique, dépendent de l'état de surface [53].

En résumé, la courbe de dispersion des polaritons peut n'être vue que comme la description du saut d'indice de réfraction au passage d'une transition. L'existence d'un niveau discret, lié à l'interaction excitonique, est donc vraiment essentielle, comme l'est l'aspect propagatif qui permet un couplage avec les photons.

#### 4.7.2 dans les hétérostructures.

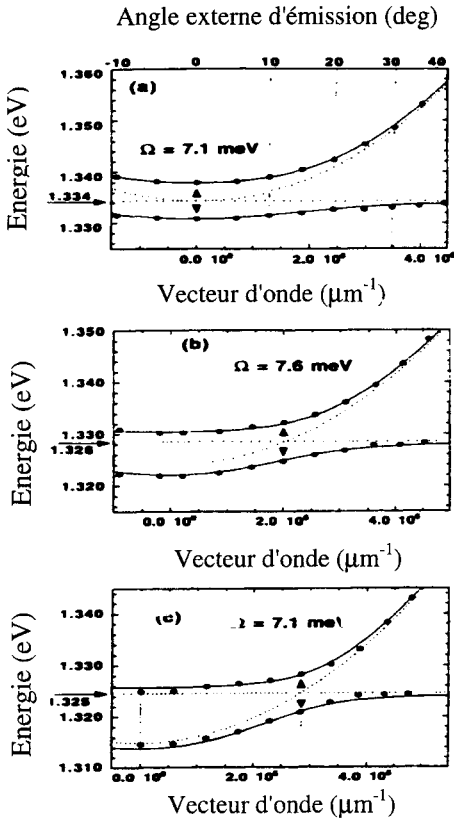
Dans les hétérostructures bidimensionnelles classiques, il faut distinguer deux situations très différentes. Imaginons pour fixer les idées un puits quantique entouré de barrières.

- il est possible d'envisager une situation analogue de couplage fort entre excitons et photons éventuellement guidés dans le plan des couches, car on y trouve un couplage un pour un. Cependant, l'interaction est nettement plus faible que dans les massifs à cause du mauvais recouvrement du champ avec l'onde de polarisation. Si l'on y ajoute les effets de désordre inévitables dans les hétérostructures, on comprend que les démonstrations expérimentales soient rares, résultant d'expériences délicates et pointues.

- par contre, pour une propagation de la lumière sortant par la surface de la structure, seule subsiste la conservation du  $k_{//}$  de l'exciton (parallèle aux couches). Il n'y a donc plus de couplage un pour un et c'est la Règle d'Or de Fermi qui fixe l'énergie des photons émis. Cela vient de ce que l'espace des excitons et celui des photons n'ont plus la même dimension.

Mais on peut restaurer le couplage fort en entourant le puits d'une microstructure optique : en l'occurrence, il s'agit de réduire l'espace des photons à  $D = 2$ , ce qu'on peut faire dans une *microcavité plane* (Cf. fig. 4.7 en bas)

Il s'agit d'un microrésonateur Fabry-Perot. Une telle structure présente de nombreuses



**Figure 4.8** : Courbes de dispersion de polaritons de cavité mesurées par R. Houdré [54]. L'expérience consiste à mesurer l'énergie des résonances en fonction de l'angle d'émission, associé au vecteur d'onde dans le plan. Les pointillés représentent les courbes de dispersion des photons et excitons non couplés.  $\Omega$  est le « splitting de Rabi » mesuré pour chaque condition de résonance (a, b, et c).

analogies avec un « puits quantique à lumière ». Ses modes propres optiques sont caractérisés par :

- un  $k_z$ , fixé par la condition de résonance,  $k_z = k_0 = N\pi n/L$ , où  $N$  est un entier,  $n$  l'indice de réfraction moyen et  $L/n$  la longueur optique de la cavité.
- un  $k_\perp$ , le rapport  $k_\perp/k_0$  mesurant l'inclinaison du mode par rapport à la normale.

Leur énergie est  $E = \frac{\hbar c}{n} \sqrt{k_0^2 + k_\perp^2}$  ce

qui donne en première approximation une courbe de dispersion dans le plan  $E(k_\perp)$  de forme parabolique.

Si l'on a maintenant inclus un puits quantique dans la cavité, la résonance avec l'état d'exciton, qui est facilement accordable, provoque un anticroisement analogue au cas tridimensionnel. Ces excitations mixtes ont été récemment découvertes et nommées « Polaritons de Cavité » [54] (Cf. fig. 4.8). Ce dédoublement (de Rabi) obtenu à la résonance peut être vu comme l'effet du saut d'indice lié à la transition sur la résonance Fabry-Perot. Il est proportionnel, typiquement, à  $(f/L)^{1/2}$  où  $f$  est la force d'oscillateur de l'exciton et  $L$  la longueur de cavité.

Plus généralement, ces structures offrent en optique non linéaire une exaltation des effets liée au renforcement du champ dans la cavité [55]. Elles peuvent aussi présenter des solutions élégantes au problème de l'accord de phase [56].

#### 4.8 Orientation et alignement par pompage optique

Nous revenons maintenant à l'exploitation des règles de sélection interbande dues à l'élément de matrice de  $p$ , pour considérer l'influence de la polarisation sur la nature des transitions. On s'en doute, la bonne base de départ pour les états électroniques est celle des états propres du moment total, telle que représentée sur la figure 2.2. La direction  $z$  sera choisie parallèlement à la propagation et, s'il y a lieu, de la direction de confinement. À partir des combinaisons linéaires *ad hoc* d'états du champ de polarisation  $x$  et  $y$ , et des opérateurs  $p_x$  et  $p_y$ , il est facile de définir les opérateurs  $p_+$  ou  $p_-$ , de les appliquer à ces états électroniques, et d'établir les probabilités de transitions résumées sur la figure 4.9. On constate que l'absorption d'un photon

$\sigma_+$ , d'énergie par exemple résonante avec la transition trous-lourds  $\Rightarrow$  conduction et avec elle seule, transfère effectivement tout son moment angulaire à la population des électrons, en orientant le spin électronique. Bien entendu, le champ électromagnétique, à ces énergies, n'agit pas directement sur le spin. Mais l'orientation s'effectue par l'intermédiaire du couplage spin orbite. On peut par exemple vérifier que pour une excitation de grande énergie, qui rend équiprobables les transitions des trois bandes de valence, il n'y a plus de polarisation de spin de la bande de conduction. L'ensemble des sujets relatifs à l'orientation optique a fait l'objet d'articles de synthèse assez complets, mais écrits avant l'apparition des systèmes bidimensionnels [57-59].

On ne s'étonne pas que l'information portée par la polarisation de la lumière excitatrice soit, d'une façon ou d'une autre, transférée au système matériel. Ainsi des expériences non résonantes, ou bien aux temps très courts, doivent en garder trace. Mais on connaît deux circonstances où cette mémoire de polarisation est suffisamment stabilisée pour être détectée à la recombinaison, y compris en régime stationnaire (excitation quasi continue).

#### 4.8.1 L'orientation de spin par absorption de lumière circulairement polarisée

Il s'agit le plus souvent de l'orientation de spin des électrons de conduction, du moins dans les matériaux massifs où, pour les états de valence, le moment de rotation est fortement couplé au moment cinétique. La moindre diffusion de  $k$  est alors un facteur de dépolarisation très efficace pour les trous. Il suffit de lire les schémas 4.9 de haut en bas dans le sens de la recombinaison pour comprendre qu'à l'inverse, la mesure du taux de polarisation de la luminescence informe sur la polarisation résiduelle de la bande de conduction.

On peut exprimer de façon phénoménologique la polarisation d'équilibre (en excitation quasi continue) par :

$$P = P_0 T_1 / (T_1 + \tau) \quad (4.12)$$

où  $P_0$  est la polarisation de création,  $T_1$  la durée de relaxation de spin et  $\tau$  la durée de vie des porteurs. En appliquant un champ magnétique transverse  $H$ , on provoque la précession des spins, et donc une dépolarisation sous champ de la luminescence (effet Hanle) :

$$P(H) = P(0)(1 + \omega^2 T_1^{*2}) \quad (4.13)$$

où  $\omega$  est la fréquence angulaire de précession des spins, et  $T_1^*$  la durée de vie de polarisation :  $T_1^{*-1} = T_1^{-1} + \tau$ . Selon une formule fameuse [60], on peut avec cette expérience mesurer en excitation continue la durée de vie des électrons en utilisant la précession de Larmor comme une horloge.

Donnons quelques valeurs typiques de polarisation de spin qu'il est possible d'obtenir :

- L'excitation d'un matériau cubique massif au gap, avec donc trous lourds et trous légers pondérés uniquement par les probabilités d'absorption, donne une polarisation de spin, avant relaxation  $P_0 = 0,5$ . En supposant, ce qui est réaliste dans les matériaux massifs, que la bande de valence est complètement dépolarisée, le taux de polarisation de la luminescence est moitié de celui de la population électronique ; on se trouve donc dans le cas d'une polarisation maximum de la luminescence  $P_0^2 = 0,25$ . Ce type d'expérience a été beaucoup utilisée pour étudier, précisément, la relaxation du spin et aussi de l'énergie.

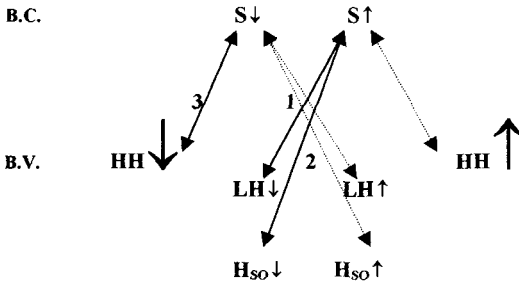
- Dans un matériau uniaxe (CdS) ou bien dans une hétérostructure bidimensionnelle, il est possible d'espérer, et d'observer,  $P_0 = 1$ . La mémoire de polarisation de la luminescence peut donc atteindre 100% si la relaxation et la recombinaison sont rapides.

**POLARISATION CIRCULAIRE**

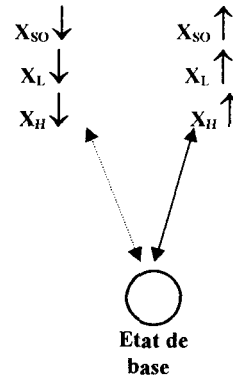
→ excitation  $\sigma^-$  (vers la droite)  
 → excitation  $\sigma^+$  (vers la gauche)

**Schéma à une particule**

Moment total : -3/2      -1/2      +1/2      +3/2



**Schéma à deux particules**



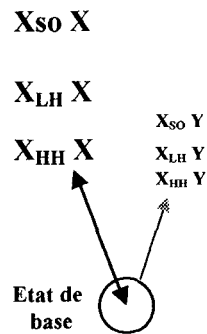
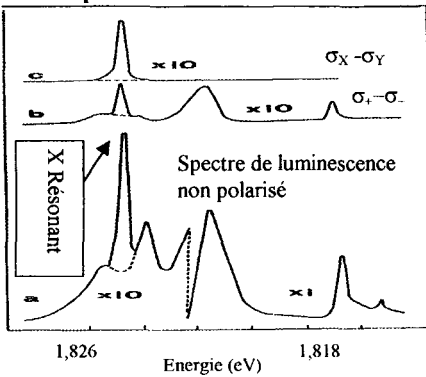
**POLARISATION LINEAIRE**

→ excitation  $\sigma_x$  (vers nous)  
 → excitation  $\sigma_y$  (vers le fond)

**Pas de Schéma à une particule**

**Schéma à deux particules**

**Insert expérimental :**



**Figure 4.9 :** Schémas des transitions possibles en polarisation à partir des bandes de trous lourds, des trous légers, et des trous SO. Dans un matériau cubique (Cf. fig. 2.2), les probabilités de transitions sont proportionnelles respectivement à 3, 1 et 2. Dans un hexagonal ou une hétérostructure, avec l'axe de symétrie parallèle à la propagation, c'est à peine plus compliqué. En tout cas, notez que  $3=1+2$  !. On comprend la différence entre la base circulaire ( $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  sont conjugués par renversement du temps) et la base linéaire ( $\sigma^x$  et  $\sigma^y$  ne le sont pas). Dans l'insert expérimental, seule la création résonante d'excitons (ici par une cascade de phonons) conserve la polarisation linéaire. (D'après R. Planel [57])



- L'excitation préférentielle des bandes de valence légères, de moment angulaire  $m = \pm 1/2$ , donnera une polarisation négative. Après relaxation du trou, la luminescence présentera donc un taux de polarisation circulaire de signe opposé à l'excitation. Cette expérience simple est devenue un moyen d'identification des trous légers dans les systèmes d'hétérostructures encore mal maîtrisées.

#### 4.8.2 La création résonante d'excitons

Naturellement, la création d'une paire électron-trou corrélée (sous forme d'exciton) n'est pas incompatible avec l'orientation de spin. En utilisant les notations de la figure 2.2, on pourra ainsi définir un exciton lourd :  $|\sigma_+\rangle = |S\downarrow \otimes X_+\uparrow\rangle$ , où le premier terme représente un électron de conduction  $S$  de spin  $\downarrow$ , créé à partir d'un électron de valence  $X_-\downarrow$  (car la transition ne retourne pas le spin), laissant un trou  $X_+\uparrow$ . Symétriquement, on pourra définir l'exciton  $|\sigma_-\rangle$ , mettant en évidence une sorte d'isomorphisme entre l'espace des polarisations de photons et d'excitons. Il est donc légitime de définir par combinaison linéaire des excitons  $|\sigma_x\rangle$  et  $|\sigma_y\rangle$ , polarisés linéairement, et qui ne portent aucune orientation de spin particulière. On peut se convaincre [61] que ces états sont stabilisés parce que les états de type  $|\sigma_+\rangle = |S\downarrow \otimes X_+\uparrow\rangle$  et  $|S\uparrow \otimes X_+\uparrow\rangle$  n'ont pas la même énergie.

La raison en est assez subtile. Notons au passage que le deuxième état écrit plus haut est interdit optiquement, précisément parce que la lumière ne retourne pas le spin. En fait, à cause de la dégénérescence de spin, on peut construire  $2 \times 2 = 4$  états ; deux sont permis optiquement (de moment total  $J = 1$ ) et deux sont interdits ( $J = 2$ ). La levée de dégénérescence entre ces deux doublets est une réminiscence du fait que le trou est formé de  $N-1$  électrons, ce qui permet de parler paradoxalement d'interaction d'échange électron-trou. Sa valeur est proportionnée à la probabilité de présence de l'électron sur le trou, donc intimement liée au couplage avec la lumière. Elle varie, typiquement, de quelques 0,1 meV dans les III-V, à un ordre de grandeur supérieure dans les II-VI.

Au plan expérimental, on comprend donc que la mise en évidence d'une mémoire de polarisation linéaire nécessite de traiter avec des excitons tout au long du processus de relaxation entre excitation et luminescence. C'est ce qu'illustrent les spectres de polarisation de la figure 4.9.

### 4.9 Transitions intrabandes

Je reviens maintenant aux transitions optiques induites par le couplage  $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$  entre fonctions enveloppes. Comme on l'a vu plus haut, elles sont nécessairement intrabandes. Ce sujet, qui est né avec les hétérostructures, est encore en plein développement mais certaines applications, les détecteurs "infrarouge", sont déjà sur le marché. Plutôt qu'à un article de revue, on peut renvoyer à un compte rendu de conférence récent, qui lui est entièrement dédié [62]. Je discuterai plus avant en m'appuyant sur l'exemple des transitions à l'intérieur de la bande de conduction, les plus étudiées et utilisées jusqu'à présent.

Dans les puits quantiques, où donc la fonction enveloppe en  $z$  n'a pas la forme d'une onde plane, l'élément de matrice de  $p_z$  (parallèle à l'axe de croissance) ne se réduit pas à une distribution de Dirac exprimant la conservation du moment. Ces transitions intrabandes

"directes", c'est-à-dire non-assistées par phonons, n'ont pas d'équivalent dans les semi-conducteurs massifs. L'élément de matrice de  $\mathbf{p}$  est donc :

$$\langle F_f | \mathbf{p} | F_i \rangle = \langle \varphi_f(z) | p_z | \varphi_i(z) \rangle \delta(\mathbf{k}_\perp - \mathbf{q}) \quad (4.14)$$

où subsiste une condition de conservation du  $\mathbf{k}_\perp$  (dans le plan des couches). Comme les deux courbes de dispersion sont parallèles (aux effets de non parabolicité près), tous les états de différents  $\mathbf{k}_\perp$  participent à la transition à la même énergie (Cf. fig. 4.10). On a donc une raie et non un bord d'absorption, comme dans le cas interbande.

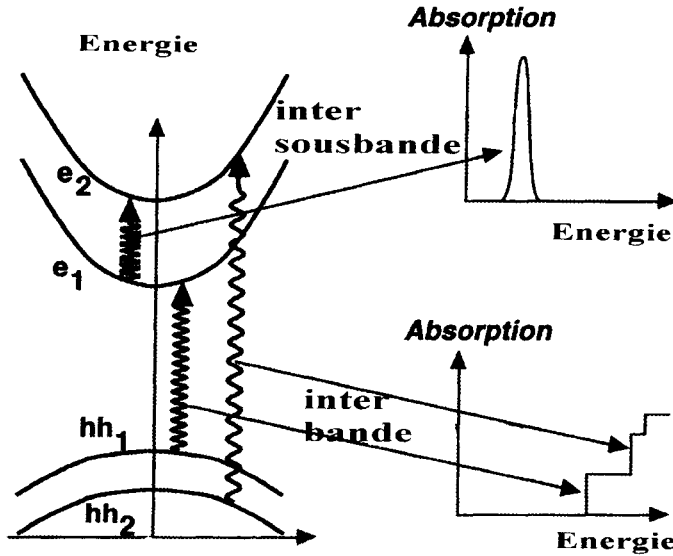


Figure 4.10 : Schéma des transitions interbandes et inter-sous-bandes (intra-bandes) dans un puits quantique. (Emprunté à V. Berger[63])

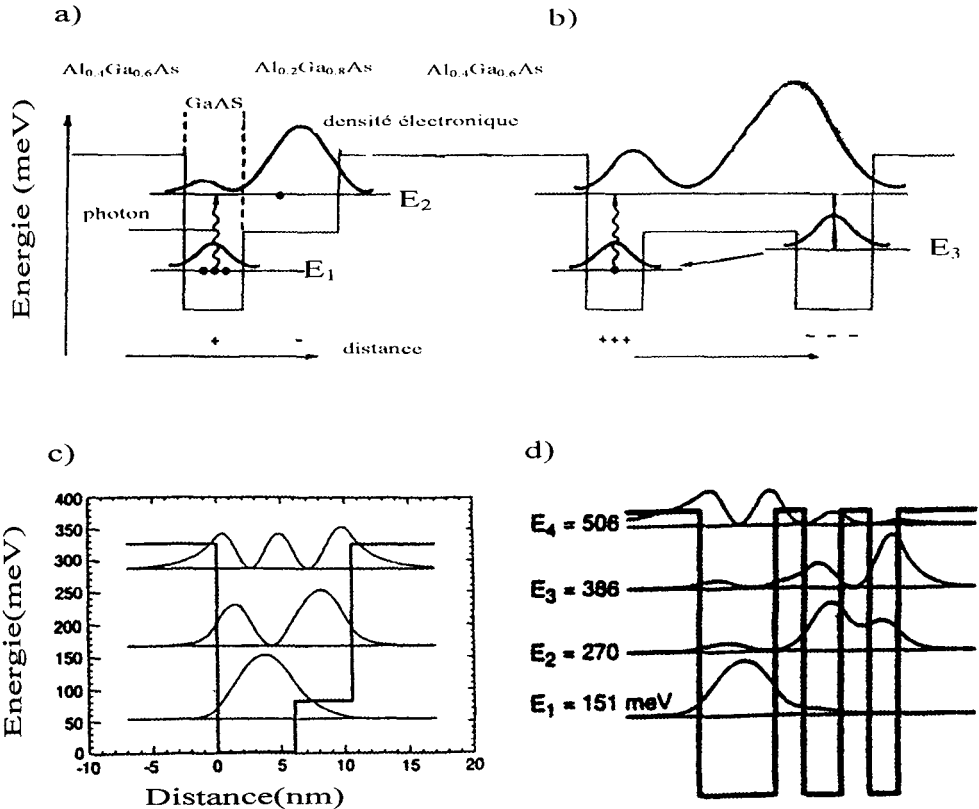
D'autre part, l'élément en  $p_z$  induit une transition si la lumière est polarisée le long de  $z$ , ce qui exclut par exemple de travailler en incidence normale. Il y est associé un ensemble de règles de sélection inverses de celles des transitions interbandes. Ainsi, dans un puits symétrique, seuls les états de parité différente seront couplés. Il va de soi aussi que l'absorption nécessite la présence d'électrons dans la bande de conduction, obtenus par dopage ou bien par illumination.

Les énergies typiques de ces transitions, compte tenu des possibilités technologiques et des masses effectives, se situent entre 0.01 et 1 eV, un intérêt particulier étant porté à la région du moyen infrarouge (avec la bande des 10  $\mu\text{m}$ ), où les principales possibilités étaient auparavant offertes par les transitions interbandes dans les alliages HgCdTe.

Il est intéressant de discuter de l'intensité de ces transitions en termes de force d'oscillateur, exprimé plutôt par les éléments de matrice de  $\mathbf{r}$ . En procédant par identification comme dans le cas des transitions atomiques ou moléculaires, on peut définir une force d'oscillateur par électron, associée à la transition entre les états  $i$  et  $f$  d'énergie  $E_{if}$  :

$$f_{if} = \frac{2m}{\hbar^2} E_{if} \left| \langle \varphi_f(z) | p_z | \varphi_i(z) \rangle \right|^2 \quad (4.15)$$

où  $m$  est la masse effective, et non la masse de l'électron libre comme on l'introduit usuellement dans la force d'oscillateur. Or les fonctions enveloppes sont fonctions propres



**Figure 4.11 :** Structures dessinées pour des transitions intrabandes induisant: a) la rectification optique. b) la rectification optique à meilleur rendement, mais à retour à l'équilibre plus lent. c) le doublement de fréquence résonant. d) le triplement de fréquence résonant. ( D'après V. Berger [63] et références citées)

d'un hamiltonien effectif  $H$  qui satisfait aux relations de commutation usuelles :  $[z, p_z] = i\hbar$  et

$$[H, z] = -i\hbar p_z / m. \text{ On peut donc [64] en déduire la règle de somme classique : } \sum_{n=2}^{\infty} f_{1n} = 1,$$

qui s'applique donc aux transitions intrabandes entre le niveau fondamental  $n = 1$  et les niveaux excités.

Cette relation valide la définition d'une force d'oscillateur "effective". Il est facile et instructif de la calculer pour la transition  $1 \Rightarrow 2$  dans l'approximation du puits infini, de largeur  $L$ . Les fonctions enveloppes et les énergies des deux premiers états confinés sont :

$$n=1 \quad (2/L)^{1/2} \cos z\pi/L \quad \text{d'énergie } h^2\pi^2/2mL^2$$

$$n=2 \quad (2/L)^{1/2} \sin 2z\pi/L \quad \text{d'énergie } 4h^2\pi^2/2mL^2$$

Entre ces deux états, l'élément de matrice de l'opérateur  $z$  est :

$$\langle z \rangle = \langle n=1 | z | n=2 \rangle = 2/L \int_{-L/2}^{+L/2} \cos(z\pi/L) \sin(2z\pi/L) z \delta z = 16L/9\pi^2$$

qui est de l'ordre de grandeur de la largeur du puits, la dizaine de nm, et non, comme dans une molécule, le dixième de nm. La force d'oscillateur est donc :  $f_{12} = 2mE_{12}\langle z \rangle^2/h^2 = 0,96$ , valeur très proche du maximum, l'unité. Si l'on veut comparer ces structures aux systèmes atomiques et moléculaires, on peut noter que pour une énergie de transition donnée, le carré du dipôle sera ici beaucoup plus grand, en raison inverse de la masse effective.

Un puits quantique carré infini est donc très proche de l'oscillateur harmonique idéal où la force des transitions  $1 \Rightarrow 3, 4, \dots$  est négligeable. Mais on voit combien ces forces d'oscillateur sont dépendantes de la forme précise du puits, comme d'ailleurs les énergies de transitions vers les divers états excités. On dispose là d'un nouvel outil pour l'ingénieur, qui permet de distribuer la force d'oscillateur au mieux de son intérêt, et, plus généralement, de dessiner les fonctions enveloppes les plus adéquates, par exemple pour optimiser des non-linéarités. J'en donnerai deux exemples particulièrement représentatifs de la démarche.

*4.9.1* Il est d'abord possible d'introduire volontairement de l'asymétrie dans le système, pour obtenir des non-linéarités d'ordre 2. La figure 4.11 a, b représente des structures réalisées pour la rectification optique, c'est-à-dire l'apparition d'une tension continue sous éclairage. On ne peut mieux faire comprendre l'origine microscopique de ce genre d'effet qu'en imaginant ce qui se passe à la résonance, c'est-à-dire lors d'une transition intrabande réelle. Le centre de gravité de la charge est déplacé d'autant plus que l'asymétrie est violente. Mais, à l'inverse, la force d'oscillateur de la transition diminuera avec l'asymétrie, comme le recouvrement des probabilités de présence des deux états. Il y a donc un compromis à effectuer pour optimiser l'effet.

La structure b, qui comporte un second puits, permet d'accroître considérablement le temps de retour à l'équilibre, et donc la charge moyenne déplacée en régime permanent, au dépend de la rapidité du système. Là aussi, le meilleur compromis pour l'application visée est accessible à l'ingénieur.

*4.9.2* Dans le cas de la génération de seconde harmonique, il est intéressant aussi d'optimiser les résonances (structure 4.11 c). Le choix d'un potentiel en créneau permet d'égaliser les énergies des transitions  $1 \Rightarrow 2$  et  $2 \Rightarrow 3$ . Le terme doublement résonant de la susceptibilité d'ordre 2 correspond donc à la succession des transitions  $1 \Rightarrow 2 \Rightarrow 3 \Rightarrow 1$ . L'interprétation *pas à pas* de cette succession, qui ignore les autres termes non résonants et les interférences possibles avec eux, est la suivante : deux absorptions successives d'un photon, associées à deux promotions successives de l'électron puis suivies d'une relaxation radiative émettant un photon d'énergie double. Mais en tout cas, il est essentiel qu'aucune de ces transitions ne soit interdite, ce qui serait le cas pour  $3 \Rightarrow 1$  dans une structure symétrique. La figure 4.11c, d donne deux exemples d'optimisation de structures pour ce type d'application, et qui sont à la portée du "mécanicien quantique".

## 5. CONCLUSION

J'espère avoir contribué dans ce cours à présenter au non-spécialiste l'essentiel de ce qu'il faut avoir compris pour utiliser au mieux les matériaux semi-conducteurs en optique. J'ai été volontairement discret sur ce que peuvent apporter les arguments de symétrie dans ces matériaux très généralement cristallins. Il me semble que cet aspect des choses, bien compris depuis les années 60, n'est pas spécifique aux semi-conducteurs. Par contre, avec de longs développements sur les excitons et les effets de confinement, j'ai insisté sur les expériences quasi résonantes, où donc une au moins des énergies optiques en jeu est proche du bord de bande interdite. C'est en effet dans cette direction, me semble-t-il, que peuvent apporter du nouveau à l'optique les derniers développements de la physique des semi-conducteurs, en particulier ceux rendus possibles par les formidables progrès de la technologie des micro- et nanostructures.

J'espère aussi avoir transmis, au-delà des développements mathématiques, une part importante de ma « culture » dans le domaine, qui s'exprime par des impressions qualitatives, des priorités dans l'exposé, sans doute des insuffisances. Elle s'est faite au contact de maîtres et de collègues, principalement du Groupe de Physique des Solides de l'ENS, du laboratoire de Physique de la Matière Condensée de l'École Polytechnique, et du Groupement Scientifique CNET-CNRS de Bagnex. Ils sont nombreux, mais parmi les maîtres, je dois citer C. Benoit à la Guillaume et G. Lampel ; parmi les collègues, G. Bastard, F. Julien, F. Molloy, J.L. Oudar et C. Weisbuch.

Enfin, je tiens à remercier particulièrement ceux qui m'ont soutenu de près dans la rédaction de ce cours, par leur aide pratique, leurs encouragements et leurs critiques stimulantes. Ce sont G. Fishman, P. Sénellart et V. Thierry-Mieg.

## Références

- [1] Kittel Ch., Introduction to Solid State Physics, 7<sup>th</sup> edn. (Wiley, New York, 1995).
- [2] Ascroft N.W. et Mermin N.D, Solid State Physics (Holt-Saunders Int.Ed., Philadelphie 1976).
- [3] Mathieu H., Physique des Semi-conducteurs et des Composants Electroniques (Masson, Paris, 1996).
- [4] Haug H. et Koch S. Quantum theory of the Optical and Electronic properties of Semiconductors (World Scientific, Singapour, 1990).
- [5] Klingshirn C.F., Semiconductor Optics (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1997).
- [6]...Yu P. et Cardona M., Fundamental of Semiconductors, (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1996).
- [7] Effets radiatifs dans les semi-conducteurs, éditeurs scientifiques J. Cernogora et R. Panel (Annales de Physique, **20C2**, 1995).
- [8] Zangwill A., Physics at Surfaces (Cambridge University Press, Cambridge).
- [9] Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales, éditeurs scientifiques C. Fabre et J.P. Pocholle, Collection de la Société Française d'Optique, (EDP Sciences, Paris, 1996).
- [10] Weisbuch Cl., Physique des lasers à semi-conducteurs in réf.7, p.353.
- [11] Cf. par exemple réf.1 p.432 ou réf.2 p.655.
- [12] Gaj J. thèse d'habilitation, Université de Varsovie (1981).

- [13] Bastard G., Wave mechanics applied to Semiconductor Heterostructures (Editions de Physique, Paris, 1988).
- [14] Heterojunctions and Semiconductor Superlattices, Editors G. Allan, G. Bastard, N. Boccara, M. Lannoo et M. Voos (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1986).
- [15] Weisbuch C., Miller R.C., Dingle R., Gossard A.C. et Wiegmann W., *Sol. St. Comm.* **37**(1981) 219.
- [16] Goldstein L., Horikoshi Y., Tarucha S. et Okamoto H., *Jpn.J.Appl.Phys.***22** (1983) 1489 ; Deveaud B., Emery J.Y., Chomette A., Lambert B. et Baudet M., *Appl.Phys. Lett.* **45** (1984) 1078.
- [17] Paquet D., *Superlatt. and Microstr.* **2** (1986) 429.
- [18] Jusserand B., Mollot F., Moison J.M. et Le Roux G., *Appl. Phys. Lett.* **57** (1990) 560.
- [19] Gammon D., Shanabrook B.V et Katzer D.S., *Appl. Phys. Lett.* **57**(1990) 2710 ; *Phys Rev. Lett.* **67** (1991) 1547.
- [20] Gammon D., Snow E.S. et Katzer D.S., *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 2391.
- [21] Altarelli M., Band Structures, Impurities and Excitons in Superlattices, dans réf.14, p.16.
- [22] Marzin J.Y., Strained Superlattices dans réf.14, p.161.
- [24] Gershoni D., Weiner J.S., Chu S.N.G., Baraf G.A., Vandenberg J.M., Pfeiffer L.N., West K., Logan R.A. et Tanbun-Ek T., *Phys. Rev. Lett.* **65**, (1990) 1631 *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993) 4071.
- [25] Etienne B., Laruelle F., Bloch J., Sfaxi L. et Lelarge F., *J.Cryst. Growth* **150** (1995) 336.
- [26] Goldstein L., Glas F., Marzin J.Y., Charasse M.N. et Le Roux G., *Appl.Phys.Lett.* **47** (1985) 1099 ; pour une revue récente, cf. Gérard J.M. dans réf.27 p.357.
- [27] Confined Electrons and Photons, New Physics and Applications, éd. E. Burstein et Cl. Weisbuch (Plenum Press, New York, 1995).
- [28] Laruelle F. Thèse, Université Paris 7, (1988) ; Pern-Fei Yuh et Wand K.L., *Phys. Rev.* **B38** (1988) 13307.
- [29] Kane E.O. *J.Phys. Chem. Solids* **1** (1957) 249.
- [30] Luttinger J.M., *Phys. Rev.* **102** (1956) 1030.
- [31] Donner de telles listes de paramètres est toujours un casse-tête. Celle-ci, assez ancienne, se trouve dans YC. p.165, où des réserves sont émises. De façon générale, il faut connaître l'existence des Tables de Landoldt et Börnstein, (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg) tout en gardant si possible un certain sens critique.
- [32] Butcher P.N. et Cotter D., The elements of Non Linear Optics (Cambridge University Press, 1990) p.109.
- [33] Charfi F. Thèse, Faculté des Sciences de Tunis (1984) ; *Phys. Rev* **B33** (1986) 5623.
- [34] Zhakharchenya B.P., Mirlin D.N., Perel V.I. et Reshina I.I., *Sov. Phys. Solid State* **20** (1978) 1250 ; *Sov.Phys. Usp.* **25** (1982) 143.
- [35] Knox R.S., Theory of Excitons, Solid State Physics, Suppl.5 (Academic, New York, 1965).
- [36] Excitons éd. E.I. Rashba et M.D. Sturge (North Holland, Amsterdam, 1982).
- [37] Combescot M., On Wannier Excitons, dans réf.7 p.395.
- [38] Baldereschi A. et Lipari N.O., *Phys. Rev.* **B3** (1971) 439 ; Altarelli M. and Lipari N.O., *Phys. Rev.* **B15** (1977) 4898.
- [39] par exemple Haug H. et Koch S., dans réf.4, appendice A.
- [40] Ce calcul est présenté pour le cas assez restrictif  $m_c = m_h$  dans : Haug H. et Koch S., dans réf.4, p.211.

- [41] Il n'y a pas de meilleure illustration expérimentale de la délocalisation de l'exciton que la transmission du polariton-excitonique, par exemple : Itoh T., Lavallard Ph., Reydellet J., et Benoit à la Guillaume B., *Sol.St. Comm.* **37** (1981).
- [42] Ce sujet « garde une part de mystère », comme l'avoue récemment Ph. Nozières dans : Some Comments on the Mott Transition in Metals and Semiconductors, dans réf.7, p 417.
- [43] Ma présentation doit beaucoup à celle de C.F. Klingshirn dans réf.5 chap.20., qui renvoie à de nombreuses références. Une présentation théorique plus autonome se trouve dans Haug H. et Koch S., dans réf.4 chap. 8.
- [44] par exemple par C.F. Klingshirn dans réf.5, p.259 pour le QCSE, p.366 pour l'effet Wannier Stark et l'oscillateur de Bloch.
- [45] Miller D.A.B., Chemla D.S., Damen T.C., Koren U., Gossard A.C., Wiegmann W., Wood T.H. et Burrus C.A., *Phys.Rev* **B32** (1985) 1043 ; *Phys.Rev.***B33** (1986) 6976.
- [46] Bleuse J., Bastard G. et Voisin P., *Phys.Rev.Lett.* **60** (1988) 220.
- [47] Le premier article d'Ezaki et Tsu (*IBM J.Res.Develop.* **14** (1970) 61) suggérant l'observation des Oscillations de Bloch dans des microstructures artificielles a été refusé à la Physical Review parce que « trop spéculatif », en 1969 ; à défaut, on pourra voir Sibille A., Palmier J.F. et Mollot F, *Appl.Phys;Lett.* **60** (1990) 457 ; pour une revue plus récente cf. Palmier J.F., Minot Ch., Harmand J.C., Sibille A., Tanguy D. et Penard E., à paraître dans Superlatt. and Microstr., 1999.
- [48] par exemple Bastard G., Mendez E.E., Chang L.L. et Ezaki L., *Phys.Rev.* **B26** (1982) 1974.
- [49] Lefèbvre P., Christol Ph. et Mathieu H., *Phys.Rev.* **B48** (1993) 17308.
- [50] Elliott R.J., *Phys.Rev.***108** (1957) 1384.
- [51] Hopfield J.J. *Phys.Rev.* **112** (1958) 1555 ; Proc.Int. Conf. Phys. Semicond. (Kyoto,1966) p.77. Ce dernier article a été reproduit et replacé dans le contexte d'aujourd'hui dans la référence 27.
- [52] Cf. réf. 1 p.150 ; réf. 2 p.551 ; réf.5 chap.5.
- [53] Pour une revue sur les ABC's, cf. Ivchenko E.L. dans réf. 36 chap.4.
- [54] Houdré R., Stanley R.P., Oesterle U., Ilegems M. et Weisbuch C., *Phys.Rev.***B49** (1994) 16761.
- [55] Fainstein A., Jusserand B. et Thierry-Mieg V., *Phys. Rev.* **B53** (1996) R13287.
- [56] Lovering D.J., Fino G. Simmonneau C. Kuszelewicz R. Azoulay R. Levenson J.A. *Electr. Lett.* **32** (1996) 1782.
- [57] Planel R., *Sol. State Electr.* **21** (1978) 1437.
- [58] Optical Orientation, ed. Meyer et Zhakharchenya B.P. (North Holland, Amsterdam, 1983).
- [59] Pikus G.E. et Ivchenko E.I., Optical Orientation and Polarized Luminescence of Excitons in Semiconductors dans réf. 36, chap.6.
- [60] Weisbuch C., communication privée.
- [61] Planel R. et Benoit à la Guillaume C, Optical Orientation of Exciton, in réf.58 chap.8. Pour une expérience récente et lumineuse mettant en évidence le rôle de l'interaction d'échange électron-trou, cf. Amand Th., Dareys B., Baylac B., Marie X., Barrau J., Brousseau M., Dunstan D.J. et Planel R., *Phys Rev.* **B50** (1994) 11624
- [62] Intersubband Transitions in Quantum Wells, Ed.S.Li et Y.K.Su, (Kluwer Academic Publishers, Boston, 1998).

- [63] Berger V., Frequency Conversion with semiconductor heterostructures, in *Advanced Photonics with second-order Optical Non Linear processes*, éd. A.Boardman, (NATO proceedings, Kluwer Academic Publishers, Boston,1999).
- [64] Cette discussion est inspirée par : Rosencher E. et Bois Ph., *Phys. Rev.* **B44** (1991) 11315.



## **Les nanocristaux semi-conducteurs ou boîtes quantiques**

D. Ricard<sup>1</sup>

*Laboratoire d'Optique Quantique, École Polytechnique, 91128 Palaiseau cedex,  
France*

**Résumé :** Nous discutons ici des propriétés optiques linéaires et non linéaires de colloïdes ou de verres contenant des nanocristaux semi-conducteurs, l'exemple choisi étant CdSe. Le confinement des porteurs conduit à un spectre de raies élargies surtout par la grande dispersion de taille des nanocristaux. La non-linéarité qui intéresse les applications est l'effet Kerr statique ou optique. Dans ce dernier cas, il faut distinguer le régime résonant où l'effet dominant est un effet de population et le régime non résonant où le déplacement radiatif est à l'origine de l'indice non linéaire. L'absorption à deux photons est également considérée.

### **1. INTRODUCTION**

Bien que les colloïdes métalliques par exemple soient connus depuis fort longtemps, l'étude systématique des systèmes mésoscopiques a commencé il y a une vingtaine d'années. Dans ces systèmes, de taille intermédiaire entre le microscopique et le macroscopique, le mouvement des porteurs, électrons ou trous, est limité par des barrières de potentiel. Il en résulte une quantification de l'énergie cinétique selon le schéma bien connu du puits de potentiel. Ce genre d'étude a d'abord porté sur les puits quantiques formés d'un matériau semi-conducteur de bande interdite plus faible et d'épaisseur de quelques nanomètres pris en sandwich entre deux « barrières » formées d'un autre matériau semi-conducteur de bande interdite plus grande. L'exemple le plus classique est formé à partir du couple GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As. Ces puits quantiques possèdent des propriétés remarquables telles que la présence de pics excitoniques même à température ambiante. Cela leur confère des propriétés optiques non linéaires très intéressantes.

Dans un puits quantique, le mouvement des porteurs est confiné dans une dimension mais reste libre dans les deux autres dimensions. C'est pourquoi on les appelle parfois des matériaux quasi 2D. Étant données les propriétés de ces matériaux quasi 2D, on s'est demandé ce qu'il en serait des fils quantiques avec confinement dans deux dimensions, matériaux quasi 1D, ou des points ou boîtes quantiques, matériaux quasi 0D. Pour des raisons technologiques de fabrication, les boîtes quantiques, qui sont donc de petits cristaux métalliques ou semi-conducteurs, ont été étudiées en premier. Il est en effet facile de préparer des colloïdes d'or ou d'argent par réaction chimique en milieu aqueux et les verres contenant des nanoparticules de

<sup>1</sup> *Nouvelle adresse :* Laboratoire Aimé Cotton, UPR 3321 du CNRS, Centre Scientifique d'Orsay, bâtiment 505, 91405 Orsay cedex, France.

ces métaux sont utilisés depuis des siècles dans l'art du vitrail. On sait également fabriquer des colloïdes de matériaux II-VI tels que CdS, toujours par réaction chimique. Les techniques s'étant affinées, on sait maintenant contrôler la taille de ces nanocristaux et aussi préparer des colloïdes de matériaux III-V. On sait également protéger la surface des particules en y attachant des molécules organiques. On peut enfin préparer des verres contenant des particules de matériaux II-VI ou I-VII en mélangeant les composants du semi-conducteur (Cd et Se par exemple) au verre à haute température. Le verre en fusion est alors refroidi rapidement. On procède enfin à la croissance des cristaux par traitement thermique à une température de 500 à 700 °C. La taille moyenne est déterminée par la température et la durée du traitement.

## 2. MATÉRIAUX COMPOSITES ET EFFET DE CHAMP LOCAL

Nous discutons donc ici les propriétés de nanocristaux métalliques ou (et surtout) semi-conducteurs, en particulier leurs propriétés optiques non linéaires. Ces nanocristaux sont nécessairement dispersés dans un milieu diélectrique (verre, eau...) et l'ensemble forme un matériau dit composite. De par la présence de l'interface entre nanocristaux et milieu hôte, un matériau composite possède des propriétés différentes de celles de ses composants. Par exemple, un verre dopé par des nanoparticules d'or présente un pic d'absorption dans le vert.

Ceci est dû à un effet de champ local. Les deux composants ont des permittivités différentes,  $\epsilon$  pour les cristallites et  $\epsilon_d$  pour la matrice diélectrique. Il en résulte une différence entre le champ électrique à l'intérieur d'une particule  $E_{in}$  et le champ électrique régnant dans le milieu environnant  $E$ . Pour des particules sphériques de taille petite devant la longueur d'onde laser, on a la relation simple [1]

$$E_{in} = \frac{3\epsilon_d}{\epsilon + 2\epsilon_d} E \quad (1)$$

Le facteur  $f = 3\epsilon_d/(\epsilon + 2\epsilon_d)$  joue le rôle d'un facteur de champ local macroscopique. Il dépend en général de la fréquence puisque  $\epsilon$  en dépend (alors que  $\epsilon_d$  est constant en bonne approximation). En particulier, s'il existe une fréquence pour laquelle la partie réelle du dénominateur s'annule, alors le facteur  $f$  présente une résonance appelée résonance plasma de surface. Le coefficient d'absorption contient le facteur  $f$  en module au carré et présente donc lui aussi une résonance. Ainsi s'explique le pic d'absorption vers 530 nm pour un verre dopé par des particules d'or [2]. Pour cette fréquence, les lignes de champ semblent attirées vers l'intérieur de la sphère. On parle de confinement diélectrique.

Mais cet effet n'est réellement important que pour les métaux comme l'or ou l'argent. Il peut néanmoins avoir une conséquence importante. En effet, le champ interne  $E_{in}$  dépend de  $\epsilon$  selon l'équation (1). Mais, par l'effet Kerr optique,  $\epsilon_d$  dépend à son tour du champ interne. Cette inter-relation peut conduire au phénomène de bistabilité intrinsèque, c'est-à-dire sans cavité Fabry-Perot. Pour certaines valeurs de l'intensité incidente, donc de  $E$ , l'absorbance de l'échantillon (par l'intermédiaire du facteur de champ local) peut prendre deux valeurs différentes dépendant de l'histoire précédente de  $E$ . L'effet Kerr optique peut être très important pour un cristallite semi-conducteur de CdS par exemple. Mais le facteur de champ local reste faible pour une sphère de CdS et la bistabilité n'est alors pas observable. On peut contourner la difficulté en fabriquant des nanosphères de CdS enrobées d'une coquille d'argent. On combine alors la forte non-linéarité de CdS avec la résonance plasma de surface

de l'argent (le calcul du facteur de champ local est alors plus complexe) et on peut observer le phénomène de bistabilité intrinsèque [3].

Pour les semi-conducteurs cependant, même au voisinage des niveaux discrets dont nous parlerons ci-dessous, la dispersion de la permittivité reste négligeable et le facteur de champ local est pratiquement une constante d'ailleurs inférieure à un. Nous ne nous en soucierons donc que peu. Si l'on veut néanmoins comparer la non-linéarité d'un nanocristal à celle du cristal massif, il est nécessaire de savoir relier la susceptibilité  $\tilde{\chi}^{(3)}$  du composite à celle de ses constituants. L'expression est la suivante :

$$\tilde{\chi}^{(3)} \approx \chi_d^{(3)} + pf^4 \chi^{(3)} \quad (2)$$

expression valable lorsque la fraction volumique  $p$  occupée par les nanocristaux est petite devant 1.  $\chi^{(3)}$  est la susceptibilité du nanocristal et  $\chi_d^{(3)}$  celle du matériau hôte. En régime résonant, i.e. quand la fréquence laser correspond à une fréquence de transition des nanocristaux, la contribution de la matrice hôte est négligeable. Il n'en est plus de même hors résonance.

### 3. LE CONFINEMENT ÉLECTRONIQUE

L'effet de champ local étant relativement peu important pour les nanocristaux semi-conducteurs sur lesquels nous nous concentrons, l'effet dominant dans la différence de comportement entre boîtes quantiques et matériaux massifs provient du confinement (du mouvement) électronique. Nous commençons par discuter les conséquences de ce confinement électronique sur le spectre des niveaux d'énergie qu'un électron peut occuper dans un tel nanocristal.

#### 3.1 Les différents régimes de confinement

Pour un semi-conducteur intrinsèque, l'état fondamental correspond à une bande de valence pleine et à une bande de conduction vide. Les premiers états excités s'obtiennent en faisant passer un électron du haut de la bande de valence au bas de la bande de conduction. On crée ainsi une paire électron-trou. En se limitant à deux bandes paraboliques et en utilisant l'approximation de la masse effective, l'équation aux valeurs propres pour une telle paire s'écrit

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_e + V(\mathbf{r}_e) - \frac{\hbar^2}{2m_h} \Delta_h + V(\mathbf{r}_h) - \frac{e^2}{\epsilon r_{e-h}} \right) \phi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = E^{e-h} \phi(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) \quad (3)$$

où  $\Delta$  est le Laplacien,  $m_e$  et  $m_h$  les masses effectives de l'électron et du trou,  $e^2 = q^2/4\pi\epsilon_0$  ( $q$  étant la charge élémentaire et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide).  $V$  est le potentiel de confinement supposé constant à l'intérieur de la particule et infini à l'extérieur,  $\phi$  est la fonction d'onde enveloppe et  $E^{e-h}$  l'énergie propre. Le dernier terme dans le Hamiltonien représente l'énergie d'interaction coulombienne entre électron et trou,  $r_{e-h}$  étant la distance électron-trou.

L'équation (3) n'est pas soluble analytiquement mais elle se simplifie dans deux cas limites définis par rapport aux échelles de taille pertinentes [4]. Deux énergies apparaissent

naturellement, l'énergie cinétique de confinement qui varie en  $1/R^2$  si on suppose les particules sphériques de rayon  $R$  et l'énergie d'interaction coulombienne qui varie en  $1/R$ . Les échelles de taille pertinentes sont le rayon  $R$  du nanocristal et le rayon de Bohr de l'exciton  $a_B = \epsilon \hbar^2 / \mu e^2$  où  $\mu$  est la masse réduite  $\mu = m_e m_h / (m_e + m_h)$ . On montre que, si  $R \gg a_B$ , l'énergie d'interaction coulombienne domine et on peut négliger, en première approximation, les termes en  $V$  dans le Hamiltonien de l'équation (3). On retrouve alors le cas d'un système hydrogénoïde, l'exciton de Wannier, qui existe comme dans le semi-conducteur massif. On peut ensuite, en deuxième approximation, tenir compte de la taille finie de la particule. L'exciton est confiné avec une énergie de confinement faible de l'ordre de  $\hbar^2 / MR^2$  où  $M$  est la masse totale  $m_e + m_h$ . On est dans le régime dit de confinement faible.

Dans le cas limite inverse où  $R \ll a_B$ , c'est l'énergie cinétique de confinement qui domine. On peut alors négliger, en première approximation, le dernier terme du Hamiltonien de l'équation (3). Ce Hamiltonien se réduit alors à la somme de deux Hamiltoniens indépendants, l'un pour l'électron, l'autre pour le trou ; le mouvement des deux particules est alors découplé. Ce régime est celui du confinement fort. L'expérience montre que les conditions requises pour être dans l'un de ces deux régimes sont moins draconiennes qu'indiqué ci-dessus [5]. Si  $R > 3a_B$ , on est en régime de confinement faible. C'est en général le cas pour les nanocristaux de CuCl pour lequel  $a_B \approx 0,7$  nm. Si  $R < a_B$ , on est en régime de confinement fort, situation assez facile à obtenir pour CdSe pour lequel  $a_B \approx 5,6$  nm. Nous nous limitons dans la suite à ce régime de confinement fort en prenant le plus souvent pour exemple les nanocristaux de CdSe. Ce cas s'appliquerait aussi aux matériaux III-V.

### 3.2 Le confinement fort

En régime de confinement fort, l'électron et le trou sont donc confinés indépendamment. La fonction d'onde enveloppe de l'électron  $\varphi^e(\mathbf{r})$  par exemple obéit à l'équation aux valeurs propres

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta + V(\mathbf{r}) \right) \varphi^e(\mathbf{r}) = E^e \varphi^e(\mathbf{r}) \quad (4)$$

C'est le problème simple de la particule libre dans une boîte. Pour une boîte sphérique, les solutions sont de la forme

$$\varphi_{lmn}(\mathbf{r}) = B_{ln} j_l(\alpha_{ln} \frac{r}{R}) Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (5)$$

où les  $Y_l^m$  sont les harmoniques sphériques,  $j_l(x)$  est la fonction de Bessel sphérique d'ordre  $l$ ,  $\alpha_{ln}$  son  $n$ ième zéro et  $B_{ln}$  une constante de normalisation.  $r$ ,  $\theta$  et  $\varphi$  sont les coordonnées sphériques de  $\mathbf{r}$ . Prenant l'origine des énergies au sommet de la bande de valence, l'énergie propre correspondante est

$$E_{ln}^c = E_g + \frac{\hbar^2 \alpha_{ln}^2}{2m_c R^2} \quad (6)$$

où  $E_g$  est la largeur de la bande interdite du semi-conducteur massif. Au lieu d'avoir un quasi-continuum de niveaux comme dans le cas du matériau massif (cas que l'on retrouve en faisant tendre  $R$  vers l'infini), on a maintenant un ensemble de niveaux discrets. Les premiers niveaux sont  $1s$  avec  $l=0$ ,  $n=1$  et  $\alpha_{01} = \pi$ , puis  $1p$  avec  $l=1$ ,  $n=1$  et  $\alpha_{11} = 4,49$ , puis  $1d$ ,  $2s$ , etc. Rappelons que la fonction d'onde totale de l'électron est

$$\Psi_{lmn}^c(\mathbf{r}_e) = \varphi_{lmn}(\mathbf{r}_e) u_c(\mathbf{r}_e) \quad (7)$$

où  $u_c$  est la partie périodique correspondant à la bande de conduction.

Si nous supposons que la bande de valence est non dégénérée, la fonction d'onde enveloppe pour le trou obéit à une équation similaire dont les fonctions propres sont les mêmes que pour l'électron. L'énergie propre correspondante s'écrit

$$E_{ln}^h = \frac{\hbar^2 \alpha_{ln}^2}{2m_h R^2} \quad (8)$$

Là encore, la fonction d'onde totale est le produit de la fonction enveloppe par une partie périodique  $u_v(\mathbf{r}_h)$ .

Après avoir traité séparément le mouvement de l'électron et du trou, on peut ensuite, en deuxième approximation, tenir compte de l'interaction coulombienne par la théorie des perturbations.

### 3.3 Discussion des approximations

Dans le traitement précédent, un certain nombre d'hypothèses ont été faites. D'abord, la boîte a été supposée sphérique. Le calcul est également faisable pour une boîte parallélépipédique. Le cas de particules ellipsoïdales s'écartant peu de la forme sphérique a aussi été considéré [6]. Les conclusions générales, niveaux discrets et énergie de confinement, dépendent peu de la forme des nanocristaux. La non-sphéricité peut par contre avoir des conséquences sur la structure fine des niveaux. Nous y reviendrons dans la section 4.3. Nous avons ensuite supposé les bandes paraboliques. L'énergie de confinement étant inversement proportionnelle à la masse effective, cf. équations (6) et (8), et la masse effective de l'électron étant plus petite, la non-parabolicité se manifeste surtout pour la bande de conduction. On peut en tenir compte [7] ce qui a pour effet de diminuer l'énergie de confinement.

Nous avons aussi supposé une barrière de confinement infiniment haute qui impose à la fonction d'onde enveloppe de s'annuler à l'interface. En réalité, la barrière de potentiel est d'environ 2 eV. Avec une barrière finie, la fonction d'onde est légèrement plus étendue et l'énergie de confinement par conséquent plus faible. Pour écrire l'expression de l'énergie d'interaction coulombienne entre électron et trou, dernier terme du Hamiltonien dans l'équation (3), nous avons encore supposé que nanocristal et matrice hôte ont la même permittivité. En réalité, cette énergie d'interaction coulombienne est la somme du dernier terme de notre

Hamiltonien et d'une énergie dite de polarisation. Le problème a été traité par une méthode variationnelle [8] et par perturbation [9]. Il a pour effet de déformer légèrement les fonctions d'onde enveloppes.

Nous avons aussi utilisé l'approximation de la masse effective qui est valable lorsque la fonction d'onde enveloppe varie peu à l'échelle de la cellule élémentaire. Cette approche de type physique des solides revient donc à supposer que le nanocristal est assez « gros », que le nombre d'atomes internes l'emporte largement sur celui des atomes en surface. Cela demande des nanocristaux contenant plusieurs centaines d'atomes. En fait, un nanocristal est un objet intermédiaire entre une molécule et un cristal. Si le nanocristal est assez « gros », l'approche précédente doit être valable. S'il est très petit, une approche du type orbitales moléculaires (par exemple LCAO) doit être utilisée. De tels calculs ont été faits, en général en supposant une hybridation  $sp^3$  [10]. On peut voir ainsi se former progressivement les bords des bandes de valence et de conduction.

Nous avons enfin supposé que les bandes sont non dégénérées. Pour la bande de conduction issue d'orbitales atomiques de type s, hormis la dégénérescence de spin, l'hypothèse est justifiée. La bande de valence est issue d'orbitales atomiques de type p et est donc, si l'on tient compte du spin, dégénérée 6 fois. Le couplage spin-orbite lève en partie la dégénérescence en conduisant à un moment cinétique atomique  $J$  égal à  $3/2$  pour les bandes de trous lourds et de trous légers ou à  $1/2$  pour la bande décalée. Ceci est valable pour le cristal massif et le reste pour les puits quantiques. Pour une particule sphérique par contre, à cause de la géométrie sphérique du potentiel de confinement, il y a couplage entre le moment cinétique  $J$  et celui  $L$  de la fonction d'onde enveloppe. Le problème a été traité par analogie avec celui des états accepteurs [11]. Le bon nombre quantique est le moment cinétique total  $F$ . Il y a mélange des bandes de valence et mélange des fonctions d'onde enveloppes [7]. Considérant les premiers niveaux pour lesquels  $F = 3/2$ , on peut avoir des fonctions enveloppes paires impliquant  $l = 0$  et  $l = 2$  ou impaires impliquant  $l = 1$  et  $l = 3$ . Les niveaux correspondants sont notés  $nS_{3/2}$  et  $nP_{3/2}$ . Les états de l'électron sont inchangés mais sont en général notés  $1S_e$ ,  $1P_e$ ... au lieu de  $1s$ ,  $1p$ ...

#### 4. PROPRIÉTÉS LINÉAIRES

Les transitions permises sont celles pour lesquelles l'élément de matrice de transition est non nul. Nous nous plaçons d'abord dans le cadre de l'approche simplifiée de la section 3.2 et nous nous demandons quelle est la probabilité de faire passer un électron de l'état  $(l, m, n)$  de la bande de valence à l'état  $(l', m', n')$  de la bande de conduction. Les fonctions d'onde étant composées d'une partie lentement variable  $\varphi_{lmn}$  et d'une partie plus rapidement variable  $u_c$  ou  $u_v$  et l'opérateur quantité de mouvement  $p$  étant  $\hbar/i$  fois l'opérateur gradient, l'élément de matrice se simplifie

$$\langle \psi_{l'm'n'}^e | p | \psi_{lmn}^h \rangle \approx \langle u_c | p | u_v \rangle \int_{\text{sphère}} \varphi_{l'm'n'}^*(\mathbf{r}) \varphi_{lmn}(\mathbf{r}) d^3r \quad (9)$$

Il est le produit de ce que l'on nomme habituellement  $p_{cv}$  par l'intégrale de recouvrement des fonctions d'onde enveloppes pour l'électron et le trou.

Or les  $\varphi_{lmn}$  forment une base orthonormée. L'intégrale de recouvrement est donc simplement  $\delta_{ll'} \delta_{mm'} \delta_{nn'}$  où  $\delta_{ij}$  est le symbole de Kronecker. Les seules transitions interbandes per-

prises sont celles qui conservent les nombres quantiques  $l$ ,  $m$  et  $n$ , c'est-à-dire les transitions  $1s-1s$ ,  $1p-1p$ ... Une telle transition se produit à la fréquence  $\omega_m$  donnée par

$$\hbar\omega_m = E_g + \frac{\hbar^2\alpha_m^2}{2\mu R^2} - \beta \frac{e^2}{\epsilon R} \quad (10)$$

Le deuxième terme est l'énergie cinétique de confinement et le troisième l'énergie d'interaction coulombienne.  $\beta$  est un nombre voisin de 1,8 pour la transition  $1s-1s$ . La dégénérescence de la bande de valence modifie un peu ces résultats. Par exemple les transitions sont permises de tous les  $nS_{3/2}$  vers  $1S_e$  mais la plus intense est la transition  $1S_{3/2}-1S_e$ .

#### 4.1 Spectres d'absorption et de luminescence

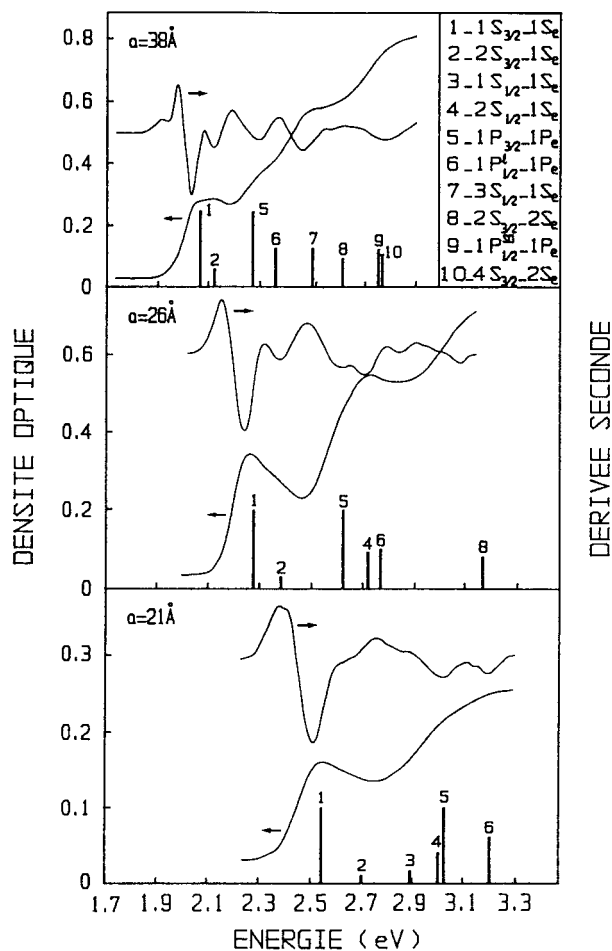
À partir des considérations précédentes, nous nous attendons à un spectre d'absorption fait de raies, la fréquence de la première transition étant d'autant plus décalée vers le bleu que le nanocristal est petit. La figure 1 montre les spectres d'absorption à basse température de trois verres dopés par nanocristaux de CdSe dont les rayons moyens sont de 3,8 nm, 2,6 nm et 2,1 nm. Le décalage vers le bleu est visible sur le spectre lui-même. La dérivée seconde du spectre fait plus clairement apparaître les raies attendues, même si elles sont élargies. Les deux premières sous-structures correspondent aux transitions  $1S_{3/2}-1S_e$  et  $2S_{3/2}-1S_e$ . Vient ensuite généralement la transition  $1P_{3/2}-1P_e$ , mais cela dépend de la taille des particules.

Les spectres de la figure 1 ont été obtenus pour des échantillons de très bonne qualité. En général, l'élargissement des raies fait que la sous-structure de la première bande n'est pas résolue, même à basse température. Lorsque nous traiterons des propriétés non linéaires en régime résonant, la résonance concernera cette bande. Nous la nommerons alors du terme vague de bande  $1s-1s$  ou de première bande.

La partie supérieure de la figure 2 montre une partie du spectre de luminescence d'un colloïde de CdSe [12]. On observe un pic relativement étroit légèrement décalé vers le rouge par rapport à la première bande d'absorption. Une bande plus large avec un décalage Stokes beaucoup plus important n'apparaît pas sur la figure 2. Si on excite l'échantillon avec une impulsion picoseconde et si on résout temporellement cette luminescence, on observe que le pic étroit est une composante rapide (avec une constante de temps de l'ordre de la nanoseconde) alors que la bande large est une composante lente (la constante de temps se compte en dizaines ou centaines de microsecondes). Le pic étroit est dû à la recombinaison directe d'un électron dans le niveau  $1S_e$  avec un trou dans le niveau  $1S_{3/2}$ . La bande large correspond à la recombinaison de porteurs piégés.

Ceci correspond à un point très important : la présence de pièges à la surface des nanocristaux. En fait, l'interface entre le nanocristal semi-conducteur et le diélectrique environnant est parfois assez mal contrôlée, surtout dans les verres. Dans ce dernier cas, le nombre de pièges est d'autant plus grand que le rayon des particules est plus petit. Les colloïdes permettent un meilleur contrôle de l'interface. En attachant des molécules organiques aux nanocristaux, on arrive à fortement réduire la bande large dans le spectre de luminescence et à obtenir un très bon rendement quantique de luminescence dans le pic étroit [13].

Autre point important : après excitation, le pic étroit et le bord « bleu » de la bande large apparaissent simultanément. On n'observe pas de croissance progressive de la bande large qui correspondrait au piégeage progressif des électrons. Ceci tend à montrer qu'il existe deux



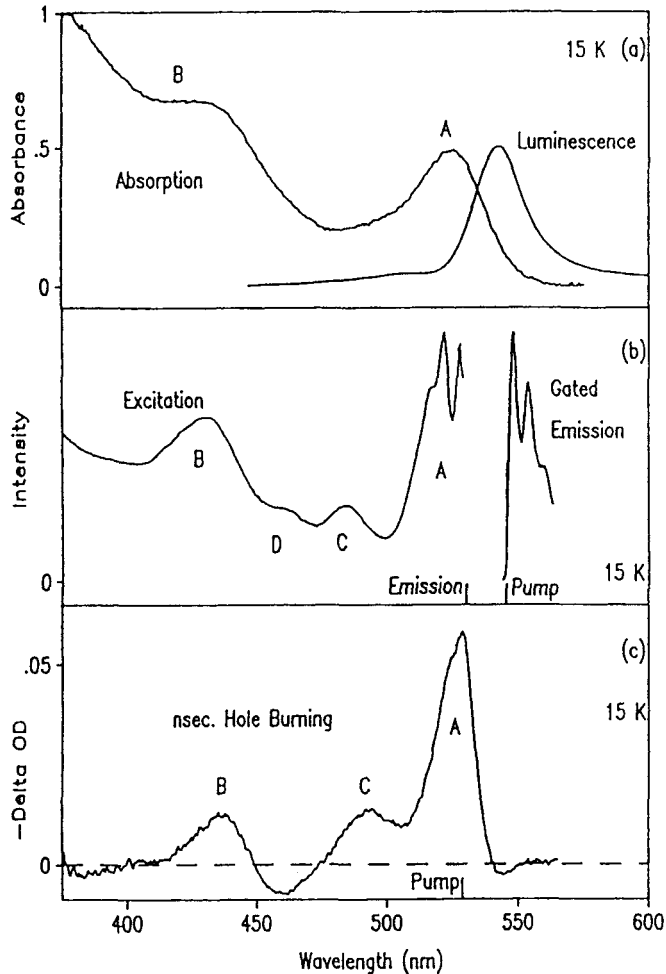
**Figure 1** : Spectres d'absorption et leur dérivée seconde pour trois verres dopés par nanocristaux de CdSe. Le rayon moyen des particules est (de haut en bas) de 3.8 nm, 2.6 nm et 2.1 nm.

classes de particules, des particules sans pièges qui donnent naissance au pic étroit et des particules avec pièges (dans lesquelles les électrons se piègent rapidement) à l'origine de la bande large [13].

#### 4.2 Photonoircisement

Lorsqu'on irradie un verre dopé par nanocristaux semi-conducteurs par un faisceau laser intense, celui-ci subit un phénomène appelé photonoircisement [14] car dans certains cas une coloration grise apparaît. Ce phénomène a plusieurs autres conséquences. Le spectre de luminescence est fortement modifié. Le pic étroit est un peu moins intense qu'avant noircissement alors que la bande large a presque totalement disparu. Le temps de recombinaison des





**Figure 2 :** Spectres d'absorption et de luminescence d'un colloïde de CdSe : a) spectres linéaires, b) spectres PLE et FLN et c) spectre de hole-burning (d'après la réf. [12])

porteurs libres est plus court, ce qui explique la perte d'intensité du pic étroit. Nous verrons aussi que la non-linéarité d'un verre noirci est plus faible que celle d'un verre frais.

Le degré de noircissement ne dépend que de la dose d'irradiation (le produit intensité  $\times$  durée) reçue. L'origine de l'effet a été élucidée par mesure de luminescence induite thermiquement [15]. Il s'agit d'une photo-ionisation ; un porteur photo-excité est éjecté du nanocristal et piégé dans la matrice de verre. Il s'agit d'un phénomène quasi permanent. Il peut être considéré comme permanent à température ambiante ou à basse température mais il est réversible par traitement thermique. En chauffant le verre à  $\sim 370$  °C pendant quelques heures, les porteurs piégés dans le verre diffusent vers leur nanocristal de départ et le verre retrouve ses propriétés originelles.

### 4.3 Largeur de raie et sous-structure

Les spectres d'absorption et de luminescence des figures 1 et 2a montrent clairement que les raies prévues par la théorie précédente sont fortement élargies. On connaît deux sortes d'élargissement : l'élargissement inhomogène et l'élargissement homogène. On devra aussi considérer la possibilité d'une sous-structure due à des degrés de liberté non encore pris en compte. Dans le cas des nanocristallites semi-conducteurs, l'élargissement inhomogène est surtout dû à la distribution de taille des particules. L'énergie des niveaux est fonction du rayon du nanocristal : un cristal plus petit absorbe plus vers le bleu, un cristal plus gros absorbe plus vers le rouge. Or, quelle que soit la méthode de préparation, tous les cristaux n'ont pas la même taille. Il en résulte donc une distribution des fréquences de transition. Cet élargissement inhomogène masque la largeur intrinsèque des raies.

Pour accéder à la largeur homogène, il faut avoir recours à des techniques de spectroscopie non linéaire. On peut par exemple exciter l'échantillon avec un rayonnement monochromatique (on excite alors sélectivement une classe de particules) et 1) regarder comment le spectre d'absorption a été modifié (c'est la technique du « hole burning ») ou 2) mesurer le spectre de luminescence (c'est la technique du « fluorescence line narrowing » ou FLN). Des exemples de résultats obtenus par les techniques 1) et 2) sont donnés au bas et au milieu de la figure 2 respectivement. Symétriquement au cas 2) ci-dessus, on peut sélectionner une tranche de fluorescence et mesurer son intensité en balayant la longueur d'onde d'excitation (c'est la technique de « photoluminescence excitation spectroscopy » ou PLE). Un exemple de spectre PLE est donné dans la partie intermédiaire de la figure 2. Pour tirer le maximum de la technique FLN, il faut exciter dans la queue rouge du spectre d'absorption. De même, pour tirer le maximum de la technique PLE, il faut regarder dans la queue bleue du spectre de luminescence.

En effet, la partie intermédiaire de la figure 2 montre que les spectres intrinsèques d'absorption ou d'émission ont une structure vibronique. Cette structure est due au couplage entre électrons et phonons LO dont la fréquence est de  $210 \text{ cm}^{-1}$  pour CdSe (nous n'avons pas tenu compte de ce degré de liberté de vibration) et est, elle aussi, masquée par l'élargissement inhomogène. Utilisée sur des colloïdes de CdSe, la technique PLE a permis de suivre en fonction de la taille 10 transitions électroniques et d'identifier les 6 premières [16]. Elle a aussi permis de mettre en évidence la structure fine du niveau  $1S_{3/2}-1S_e$  qui est 8 fois dégénéré. La dégénérescence est en partie levée par la non-sphéricité des particules, par la structure cristalline et par l'interaction d'échange [17].

On peut également obtenir la largeur intrinsèque par des techniques d'écho de photons ou encore, travaillant sur un colloïde dilué et focalisant fortement le laser, isoler le spectre d'émission d'un seul nanocristal [18].

## 5. PROPRIÉTÉS NON LINÉAIRES

Les verres et les colloïdes étant isotropes, la non-linéarité qui nous intéresse est la non-linéarité d'ordre trois, essentiellement l'effet Kerr optique ou statique. L'effet Kerr statique correspond à la modification de la susceptibilité du milieu, proportionnellement au carré du champ électrique appliqué. L'effet Kerr optique généralise l'effet Kerr statique au cas d'un champ oscillant, la modification étant proportionnelle au module carré du champ laser. Ces propriétés peuvent être utiles pour les applications comme la commutation tout-optique ou dans des modulateurs dans le cas statique.

### 5.1 Effet Kerr statique

On mesure en général le changement du spectre d'absorption induit par un champ statique ou basse fréquence. Ce changement est proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité  $\tilde{\chi}^{(3)}(0,0,\omega)$ . Outre les applications potentielles, l'effet Kerr statique est intéressant en soi. Il est dû au déplacement des niveaux d'énergie et au mélange des fonctions d'onde non perturbées par le Hamiltonien de perturbation  $\pm q \mathbf{E} \cdot \mathbf{r}$ . Si l'espacement entre niveaux est grand devant la perturbation d'ordre  $qER$  comme c'est le cas pour les atomes, on peut traiter le problème par la théorie des perturbations. On parle alors d'effet Stark. Si au contraire les niveaux sont rapprochés, on doit diagonaliser le Hamiltonien total. On parle d'effet Franz-Keldysh. L'effet physique est le même, seule l'approche mathématique diffère.

L'expérience a été faite sur un verre contenant des nanocristaux de  $\text{CdS}_{0.5}\text{Se}_{0.5}$  [19]. Le champ électrique, avec  $E_{in} = 2 \cdot 10^4$  V/cm, était appliqué grâce à des électrodes transparentes. C'était un champ sinusoïdal oscillant à 1 kHz. Le changement d'absorption était mesuré grâce à un amplificateur à détection synchrone. On observe alors des oscillations au voisinage de la bande 1s-1s avec une réplique au voisinage de la bande décalée par couplage spin-orbite. La position des oscillations est indépendante de la valeur du champ et leur amplitude est proportionnelle au carré du champ. Les résultats sont en bon accord avec un calcul de perturbations. On est donc en présence d'un effet Stark, l'espacement entre niveaux étant induit par le confinement. En augmentant la taille des particules, on observe la transition vers l'effet Franz-Keldysh [20].

La partie imaginaire de  $\tilde{\chi}^{(3)}(0,0,\omega)$  est de l'ordre de  $10^{-20}$  (m/V)<sup>2</sup> pour une fraction volumique d'environ  $3 \cdot 10^{-3}$ . La susceptibilité de la matrice hôte étant réelle, elle ne contribue pas à cet effet d'électro-absorption. Un champ statique conduit à une diminution de l'absorption à la fréquence du pic 1s-1s et à une augmentation de part et d'autre.

### 5.2 Effet Kerr optique

Dans ce cas, la fréquence laser peut coïncider avec une fréquence de transition, en général celle de la transition 1s-1s. On est alors en régime résonant et l'effet dominant est un effet de population ; des porteurs sont réellement créés et c'est leur présence qui modifie les propriétés optiques. La non-linéarité est alors grande, mais il y a des pertes par absorption et le temps de réponse  $\tau$  est limité par la recombinaison des porteurs. Pour les applications, dans un tel cas, un matériau est caractérisé par le facteur de mérite  $\chi^{(3)}/\alpha\tau$  où  $\chi^{(3)}$  est la susceptibilité Kerr et  $\alpha$  le coefficient d'absorption. En régime non résonant, par exemple pour des fréquences inférieures à la largeur de la bande interdite, l'effet dominant est le déplacement radiatif des niveaux. Le temps de réponse est très bref et, si  $E_g/2 < \hbar\omega < E_g$ , les seules pertes par absorption sont dues à l'absorption à deux photons liée à la partie imaginaire de  $\chi^{(3)}$ . Le facteur de mérite caractérisant le matériau est alors le rapport de la partie réelle de  $\chi^{(3)}$  à sa partie imaginaire.

Différentes techniques ont été utilisées pour étudier l'effet Kerr optique : l'absorption non linéaire, la conjugaison de phase, le mélange de fréquence quasi dégénéré, la technique « Z-scan ». Ces techniques donnent accès soit au module de  $\tilde{\chi}^{(3)}(\omega_1, -\omega_1, \omega_2)$ , soit à ses parties réelle ou imaginaire. Un faisceau de fréquence  $\omega_1$  modifie les propriétés optiques à la fréquence  $\omega_2$ . Dans le cas dégénéré,  $\omega_1 = \omega_2$ .

### 5.2.1 Le régime résonant

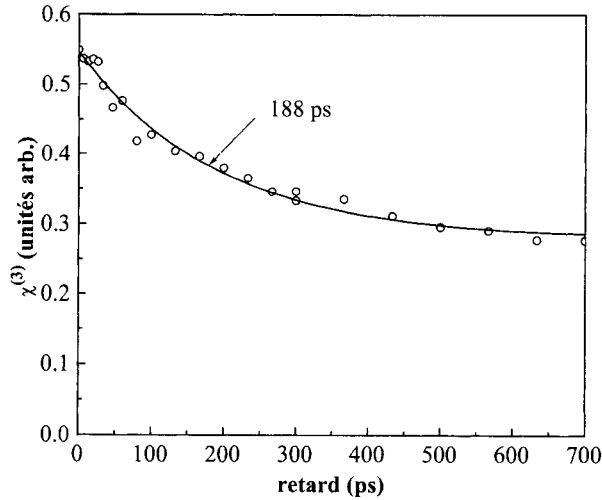
La population de l'état à une paire conduit à la saturation de la transition correspondante. Mais on peut créer une deuxième paire dans l'état 1s-1s et la même population conduit aussi à une absorption induite entre état à une paire et état à deux paires. Notons 0 l'état fondamental, 1 l'état à une paire et 2 l'état à deux paires. À cause de l'interaction coulombienne entre les paires, la fréquence de transition  $\omega_{21}$  est légèrement inférieure à la fréquence de transition  $\omega_{10}$  [21]. Supposant le même temps de déphasage  $T_2$  pour les deux transitions et conservant uniquement les termes triplement résonants, la polarisabilité Kerr dans le cas dégénéré s'écrit [22]

$$\begin{aligned} \gamma(\omega, -\omega, \omega) = & \frac{1}{\epsilon_0 \hbar^3} \left\{ d_{10}^4 \frac{T_1/T_2}{[(\omega - \omega_{10})^2 + 1/T_2^2](\omega - \omega_{10} + i/T_2)} - \right. \\ & - \frac{d_{21}^2 d_{10}^2}{2} \left[ \frac{T_1/T_2}{[(\omega - \omega_{10})^2 + 1/T_2^2](\omega - \omega_{21} + i/T_2)} - \right. \\ & \left. \left. - \frac{1/2}{(\omega - \omega_{10} + i/T_2)(2\omega - \omega_{20} + i/T_2)} \left( \frac{1}{\omega - \omega_{21} + i/T_2} - \frac{1}{\omega - \omega_{10} + i/T_2} \right) \right] \right\} \quad (11) \end{aligned}$$

où  $d$  est l'opérateur moment dipolaire électrique et  $T_1$  la durée de vie du niveau 1.  $\gamma$  est la somme de trois termes. Le premier correspond à la saturation de la transition  $0 \rightarrow 1$ , le second à l'absorption induite  $1 \rightarrow 2$ . Le troisième terme qui est une contribution cohérente est négligeable car  $T_2 \ll T_1$ . Les deux termes importants, saturation de l'absorption et absorption induite, constituent la contribution des porteurs libres.

Nous savons qu'il existe aussi des porteurs piégés à l'interface. Ces porteurs piégés, par l'intermédiaire du champ statique qu'ils créent, modifient les propriétés optiques par effet Kerr statique. Les expériences étant réalisées avec des impulsions picoseconde dont la durée est courte devant la durée de vie du niveau 1 ou des porteurs piégés, il faut également tenir compte de l'aspect transitoire de la réponse. On utilise pour cela le formalisme de la fonction réponse. On peut aussi introduire la notion de susceptibilité effective. Le calcul peut être fait simplement dans le cas d'impulsions rectangulaires [23].

Utilisant la technique pompe-sonde, la saturation de l'absorption a été observée de même que l'absorption induite. La réponse non linéaire peut être résolue temporellement. On observe qu'elle est en général faite d'une composante rapide et d'une composante lente comme le montre la figure 3. En travaillant sur un verre dopé par nanocristaux de  $\text{CdS}_{0.3}\text{Se}_{0.7}$  noirci à des degrés divers par un faisceau à profil gaussien, on constate que, pour la composante rapide, la constante de temps décroît avec le degré de noircissement alors que l'amplitude reste constante. L'amplitude de la composante lente décroît avec le degré de noircissement jusqu'à s'annuler. Ces résultats sont en accord avec le modèle précédent [23]. Ils confirment de plus l'hypothèse des deux classes de particules, les particules sans pièges donnant naissance à la composante rapide (contribution des porteurs libres) et les particules avec pièges à la composante lente. Tout se passe comme si les particules noircies ne contribuaient plus à la non-linéarité.



**Figure 3 :** Susceptibilité Kerr effective en fonction du retard de l'impulsion sonde pour un verre modérément noirci.

Pour un échantillon frais, la composante lente domine généralement alors que, pour un échantillon noirci, c'est la composante rapide qui domine. Le mécanisme dominant ne peut pas être prévu *a priori* ; il dépend de l'origine et de l'histoire de l'échantillon. Utilisant un milieu référence tel que  $\text{CS}_2$ , on peut mesurer la grandeur de la susceptibilité effective (composantes rapide et lente). La grandeur de la composante lente qui dépend bien sûr de la situation est de l'ordre de  $10^{-18} (\text{m/V})^2$  et en bon accord avec les prévisions théoriques. Celle de la composante rapide qui est du même ordre indique une certaine compensation entre les effets de saturation de l'absorption et d'absorption induite. Le facteur de mérite défini ci-dessus est inférieur à celui de la non-linéarité excitonique des puits quantiques. Cela est dû à la grande largeur inhomogène de la bande 1s-1s. Il serait intéressant d'étudier des échantillons pour lesquels la distribution de taille est plus étroite.

Pour un échantillon noirci, ne subsiste que la composante rapide. On observe alors que le facteur de mérite diminue lorsque la taille des nanocristaux diminue [24]. Rappelons qu'il fait intervenir le temps de recombinaison des porteurs libres qui peut être fortement réduit par le noirissement. C'est ainsi qu'un dispositif bistable avec un temps de réponse de 25 picosecondes a pu être fabriqué avec ce genre de matériau [25].

### 5.2.2 Le régime non résonant

Nous considérons maintenant le cas où le faisceau laser n'est pas absorbé. Pour le semi-conducteur massif, nous dirions  $\hbar\omega < E_g$ . Certains auteurs définissent une largeur de bande interdite  $E_g$  effective qui tient compte du confinement.  $\chi^{(3)}(\omega, -\omega, \omega)$  n'est plus triplement résonant mais, si  $E_g/2 < \hbar\omega < E_g$ , il existe encore une résonance à deux photons  $\omega + \omega$  qui conduit au phénomène d'absorption à deux photons. En régime non résonant, c'est cette

absorption à deux photons qui a d'abord été étudiée. Dans ce cas, l'intensité  $I$  du faisceau laser est atténuée selon l'équation

$$\frac{dI}{dz} = -\beta I^2 - N\sigma I \quad (12)$$

où  $\beta$ , proportionnel à la partie imaginaire de  $\tilde{\chi}^{(3)}(\omega, -\omega, \omega)$ , est le coefficient d'absorption à deux photons du verre dopé. Le deuxième terme correspond à l'absorption des porteurs libres créés par absorption à deux photons.  $N$  est le nombre de porteurs libres par unité de volume et est donné par

$$N(t) = \int_{-\infty}^t \frac{\beta I^2(t')}{2\hbar\omega} dt' \quad (13)$$

en négligeant la recombinaison des porteurs à l'échelle de la picoseconde.  $\sigma$  est la section efficace d'absorption des porteurs libres.

Les règles de sélection sont différentes pour l'absorption à deux photons et pour l'absorption linéaire [26]. Les valeurs des paramètres  $\beta$  et  $\sigma$  ont été déduites de mesures de la transmission en fonction de l'intensité incidente. Pour des impulsions picoseconde, l'absorption des porteurs libres est non négligeable. La matrice ne contribue pas à l'absorption à deux photons. À partir de la susceptibilité  $\tilde{\chi}^{(3)}$  du composite, connaissant la fraction volumique  $p$ , on peut en déduire la partie imaginaire de la susceptibilité  $\chi^{(3)}$  d'un nanocristal.

La réfraction non linéaire a aussi été étudiée dans ce régime de fréquence. Pour éviter la contribution des porteurs libres, la technique du mélange de fréquence a été utilisée. On en déduit la valeur de la partie réelle de  $\tilde{\chi}^{(3)}$ . Ici, la contribution de la matrice  $\chi_d^{(3)}$  est importante. En tenant compte, on peut obtenir la partie réelle de  $\chi^{(3)}$ . Certains auteurs observent que la susceptibilité du nanocristal, partie imaginaire et partie réelle, n'est pas très différente de celle du semi-conducteur massif [27,28]. Mais les échantillons étudiés n'avaient pas un spectre d'absorption très structuré et le rôle du confinement n'est pas encore clair.

## 6. CONCLUSION

Le confinement électronique conduit à un spectre de raies pour un nanocristal semi-conducteur. Mais ces raies sont souvent fortement élargies à cause en particulier de la distribution de taille. Les propriétés non linéaires ont été étudiées en assez grand détail, surtout en régime résonant. Le facteur de mérite est dans ce cas inférieur à celui des puits quantiques. Ceci est en grande partie dû à la polydispersité des échantillons étudiés. Prenant l'exemple de l'action d'un champ statique, le pic  $1S_{3/2}-1S_e$  est l'analogue d'un pic excitonique tel qu'on en trouve dans les puits quantiques, mais l'élargissement inhomogène est beaucoup plus important. Pour ce qui concerne le régime non résonant, les études doivent être poursuivies sur des particules à confinement plus fortement marqué.

L'avenir des boîtes quantiques dépend donc de notre capacité à mieux contrôler leur fabrication du point de vue de la monodispersité mais aussi du point de vue du nombre de pièges. Des progrès ont déjà été réalisés. Les nanocristaux de semi-conducteurs III-V pour lesquels il

est plus facile d'atteindre le régime de confinement fort devraient aussi s'avérer extrêmement prometteurs.

## Références

- [1] Böttcher C.J., Theory of Electric Polarization, (Elsevier, Amsterdam, 1973) p. 78.
- [2] Kreibig U. and Zacharias P., *Z. Phys.*, **231** (1970) 128-143.
- [3] Neuendorf R., Quinten M. and Kreibig U., *J. Chem. Phys.*, **104** (1996) 6348-6354.
- [4] Efros Al.L. and Efros A.L., *Sov. Phys. Semicond.*, **16** (1982) 772-775.
- [5] Ekimov A.I. and Efros Al.L., *phys. stat. sol. (b)*, **150** (1988) 627-633.
- [6] Efros Al.L. and Rodina A.V., *Phys. Rev. B*, **47** (1993) 10005-10007.
- [7] Ekimov A.I., Hache F., Schanne-Klein M.C., Ricard D., Flytzanis C., Kudryavtsev I.A., Yazeva T.V., Rodina A.V. and Efros Al.L., *J. Opt. Soc. Am. B*, **10** (1993) 100-107.
- [8] Brus L.E., *J. Chem. Phys.*, **80** (1984) 4403-4409.
- [9] Banyai L., Gilliot P., Hu Y.Z. and Koch S.W., *Phys. Rev. B*, **45** (1992) 14136-14142.
- [10] Lippens P.E. and Lannoo M., *Phys. Rev. B*, **41** (1990) 6079-6081.
- [11] Luttinger J.M. and Kohn W., *Phys. Rev.*, **97** (1955) 869-883.
- [12] Bawendi M.G., Wilson W.L., Rothberg L., Carroll P.J., Jedju T.M., Steigerwald M.L. and Brus L.E., *Phys. Rev. Lett.*, **65** (1990) 1623-1626.
- [13] Bawendi M.G., Carroll P.J., Wilson W.L. and Brus L.E., *J. Chem. Phys.*, **96** (1992) 946-954.
- [14] Roussignol P., Ricard D., Lukasik J. and Flytzanis C., *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 5-13.
- [15] Grabovskis V.Ya., Dzenis Ya.Ya., Ekimov A.I., Kudryavtsev I.A., Tolstoy M.N. and Rogulis U.T., *Sov. Phys. Solid State*, **31** (1989) 149-151.
- [16] Norris D.J. and Bawendi M.G., *Phys. Rev. B*, **53** (1996) 16338-16346.
- [17] Efros Al.L., Rosen M., Kuno M., Nirmal M., Norris D.J. and Bawendi M.G., *Phys Rev B*, **54** (1996) 4843-4856.
- [18] Empedocles S.A., Norris D.J. and Bawendi M.G., *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996) 3873-3876
- [19] Hache F., Ricard D. and Flytzanis C., *Appl. Phys. Lett.*, **55** (1989) 1504-1506.
- [20] Cotter D., Girdlestone H.P. and Moulding K., *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) 1455-1457.
- [21] Hu Y.Z., Koch S.W., Lindberg M., Peyghambarian N., Pollock E.L. and Abraham F.F., *Phys. Rev. Lett.*, **64** (1990) 1805-1807.
- [22] Banyai L., Hu Y.Z., Lindberg M. and Koch S.W., *Phys. Rev. B*, **38** (1988) 8142-8153.
- [23] Ghanassi M., Piveteau L., Saviot L., Schanne-Klein M.C., Ricard D. and Flytzanis C., *Appl. Phys. B*, **61** (1995) 17-26.
- [24] Schanne-Klein M.C., Piveteau L., Ghanassi M. and Ricard D., *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 579-581.
- [25] Yumoto J., Fukushima S. and Kubodera K., *Optics Lett.*, **12** (1987) 832-834.
- [26] Kang K.I., McGinnis B.P., Sandalphon, Hu Y.Z., Koch S.W., Peyghambarian N., Mysyrowicz A., Liu L.C. and Risbud S.H., *Phys. Rev. B*, **45** (1992) 3465-3468.
- [27] Banfi G.P., Degiorgio V., Ghigliazza M., Tan H.M. and Tomaselli A., *Phys. Rev. B*, **50** (1994) 5699-5702.
- [28] Banfi G.P., Degiorgio V., Fortusini D. and Tan H.M., *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 13-15





## Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire

B. Hönerlage

*Groupe d'Optique Non Linéaire et d'Optoélectronique, Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, UMR 7504 du CNRS, ULP, 23 rue du Loess, BP. 20 CR, 67037 Strasbourg cedex, France*

**Résumé :** Dans cet article, nous discutons les différentes techniques et méthodes expérimentales utilisées en spectroscopie optique non linéaire. En particulier, nous considérons les changements d'absorption et de dispersion des matériaux soumis à une forte intensité d'excitation, des mesures de photoluminescence et de gain optique ainsi que du mélange à quatre ondes dans différentes configurations. Dans nos exemples, nous appliquons principalement ces méthodes à des semi-conducteurs possédant des zones interdites directes et dipôles actifs où des quasi-particules électroniques peuvent être excitées en résonance. Nous obtenons ainsi des informations sur leur durée de vie et de cohérence, les processus de collision et de relaxation d'énergie ainsi que sur les propriétés de transport de ces matériaux.

### I. INTRODUCTION : LE CONCEPT DES POLARITONS EXCITONIQUES DANS DES SEMI-CONDUCTEURS MASSIFS

Dans ce cours, nous discutons principalement la spectroscopie optique des semi-conducteurs soumis à une forte intensité d'excitation lumineuse résonante. Nous introduisons donc tout d'abord le concept du polariton excitonique. Il décrit la relation de dispersion du champ électromagnétique et le lie avec la fonction diélectrique complexe.

Nous considérons l'équation de Maxwell macroscopique qui relie le champ électrique  $\vec{E}$  (qui dépend de sa coordonnée dans l'espace  $\vec{r}$  et du temps  $t$ ) et la polarisation  $\vec{P}$  avec le déplacement électrique  $\vec{D}$  :

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}(\vec{r}, t) \quad (1)$$

$\epsilon_0$  est la permittivité du vide. Les composantes  $P_i$ ,  $i = (x, y, z)$  du vecteur  $\vec{P}$ , sont reliées à celles du champ électrique par le tenseur de la susceptibilité  $\chi(\vec{r}, \vec{r}', t, t')$  :

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_j \iint \chi_{ij}(\vec{r}, \vec{r}', t, t') E_j(\vec{r}', t') d^3 r' dt' \quad (2)$$

où  $\chi_{ij}$  sont les composantes du tenseur  $\underline{\chi}$ . Si le système est homogène dans l'espace et en temps, le tenseur de susceptibilité ne dépend que de la différence des coordonnées spatiales et temporelles, et il vient :

$$\underline{\chi}(\vec{r}, \vec{r}', t, t') = \underline{\chi}(\vec{r}' - \vec{r}, t' - t) \quad (3)$$

Dans la suite, nous nous limitons à cette situation, ce qui implique que nous ne pouvons pas décrire des effets dus aux surfaces ou à des variations temporelles très rapides.  $\vec{D}$ ,  $\vec{E}$  et  $\vec{P}$  possèdent une transformée de Fourier et on peut écrire l'équation (1) sous la forme :

$$D_i(\vec{r}, t) = \iint D_i(\vec{k}, \omega) e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} d^3k d\omega = \varepsilon_0 \iint \vec{E}_i(\vec{k}, \omega) e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} d^3k d\omega + \varepsilon_0 \sum_j \iint \chi_{ij}(\vec{r}' - \vec{r}, t' - t) E_j(\vec{k}, \omega) e^{i(\vec{k}\vec{r}' - \omega t')} d^3k d\omega d^3r' dt' \quad (4)$$

L'équation (4) étant valable à chaque instant  $t$  et en tout point  $\vec{r}$ , on peut appliquer le théorème de Fourier et écrire :

$$D_i(\vec{k}, \omega) e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} = \varepsilon_0 E_i(\vec{k}, \omega) e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} + \sum_j \varepsilon_0 E_j(\vec{k}, \omega) \iint \chi_{ij}(\vec{r}' - \vec{r}, t' - t) e^{i(\vec{k}\vec{r}' - \omega t')} d^3r' dt' \quad (5)$$

En divisant l'équation (5) par  $e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)}$  et en introduisant les nouvelles variables  $\vec{\rho} = \vec{r}' - \vec{r}$  et  $\tau = t' - t$ , on obtient finalement :

$$D_i(\vec{k}, \omega) = \varepsilon_0 E_i(\vec{k}, \omega) + \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}(\vec{k}, \omega) E_j(\vec{k}, \omega) \quad (6)$$

où  $\chi_{ij}(\vec{k}, \omega)$  est la transformée de Fourier de la susceptibilité :

$$\chi_{ij}(\vec{k}, \omega) = \iint \chi_{ij}(\vec{\rho}, \tau) e^{i(\vec{k}\vec{\rho} - \omega\tau)} d^3\rho d\tau \quad (7)$$

En utilisant la notation vectorielle, on peut écrire l'équation (6) sous la forme :

$$\vec{D}(\vec{k}, \omega) = \varepsilon_0 \left[ 1 + \underline{\chi}(\vec{k}, \omega) \right] \vec{E}(\vec{k}, \omega) \quad (8)$$

où la fonction diélectrique  $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$  est donnée par :

$$\varepsilon(\vec{k}, \omega) = 1 + \underline{\chi}(\vec{k}, \omega) \quad (9)$$

On peut remarquer que  $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$  est une constante si la réponse du milieu est locale, c'est-à-dire si  $\chi(\rho, \tau) = \delta(\rho)\delta(\tau)\chi_0$ . Dans notre cas, la réponse est non locale, mais comme nous le verrons dans la suite,  $\vec{k}$  et  $\omega$  ne sont pas des variables indépendantes l'une de l'autre. Elles sont connectées par la relation de dispersion due à la nature ondulatoire du champ électromagnétique.

Comme il a été discuté dans le chapitre "Introduction à l'optique non linéaire" de ce cours, le modèle le plus simple pour discuter la réponse linéaire d'un milieu diélectrique consiste à considérer les électrons comme des oscillateurs harmoniques, soumis à un champ électromagnétique. Ce champ induit la polarisation atomique macroscopique  $\vec{P}_A$  qui est gouvernée par l'équation différentielle :

$$\frac{\partial^2 \vec{P}_A(t)}{\partial t^2} + \omega_0^2 \vec{P}_A(t) = \frac{eN}{m} \vec{E}(t) \quad (10)$$

où  $\omega_0$ ,  $e$ ,  $m$ ,  $N$  sont respectivement la fréquence de résonance, la charge élémentaire, la masse et le nombre des électrons qui sont liés harmoniquement. À l'aide des équations de Maxwell, en éliminant le champ magnétique, on trouve, pour un système diélectrique sans sources (électrons libres), l'équation différentielle du champ électromagnétique propagatoire :

$$\Delta \vec{E} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_A}{\partial t^2} \quad (11)$$

où  $\mu_0$  est la perméabilité du vide.

Les deux équations différentielles (10) et (11) peuvent être résolues en termes d'ondes planes.

En éliminant  $\vec{P}_A$ ,  $\vec{E}$  prend la forme :

$$\vec{E} = (0, E_y, 0) \quad (12)$$

avec  $E_y(k, \omega) = A e^{i(kz - \omega t)}$  si on suppose que le champ  $\vec{E}$  est polarisé linéairement suivant  $y$  et que l'onde se propage parallèlement à  $z$ . De plus,  $\omega$  et  $k$  doivent obéir à la relation de dispersion :

$$\frac{k^2}{\mu_0 \varepsilon_0 \omega^2} = 1 + \frac{\alpha}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (13)$$

ainsi que :

$$\frac{k^2}{\mu_0 \varepsilon_0 \omega^2} = \varepsilon_{\perp}(k, \omega) \quad (14)$$

où  $\frac{1}{\sqrt{\mu_0 \varepsilon_0}} = c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $\varepsilon_{\perp}(k, \omega)$  est la fonction diélectrique transverse et  $\alpha = Ne^2/m$  est la polarisabilité macroscopique du système. D'autre part, les équations (11) et (12) donnent aussi la condition :

$$0 = \omega^2 \varepsilon_{\parallel}(k, \omega) \quad (15)$$

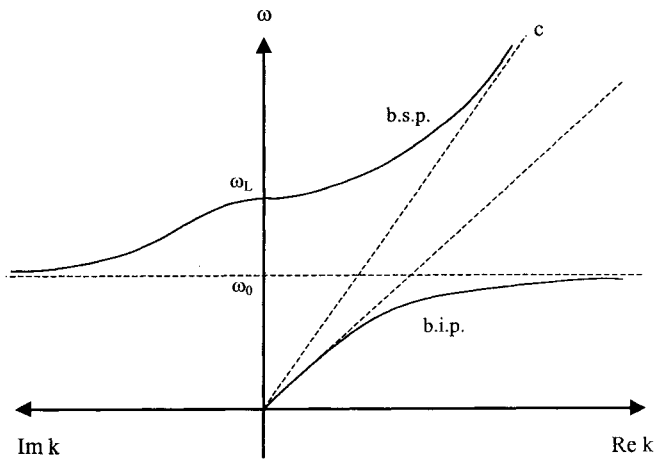
Pour  $\omega \neq 0$ , l'équation (15) définit la condition pour l'existence d'un état propre longitudinal à la fréquence  $\omega_L$  :

$$\varepsilon_{\parallel}(k, \omega_L) = 0 \quad (16)$$

Les plasmons ainsi que les excitons longitudinaux correspondent à une excitation

collective avec une polarisation d'un métal ou semi-conducteur parallèle à leur direction de propagation.

L'équation 13 veut dire que si nous excitons avec une onde électromagnétique des oscillateurs harmoniques (ici des électrons que nous déplaçons par rapport à leur barycentre de charge) c'est l'ensemble du champ et de l'onde de polarisation qui se propage. Nous introduisons donc la notation des polaritons pour ces nouvelles quasi-particules. La vitesse de groupe de ce paquet d'ondes (donné par  $d\omega/dk$ ) est plus petite que celle du champ électromagnétique dans le vide. Elle diminue d'autant plus que l'on s'approche de la fréquence propre des oscillateurs  $\omega_0$ . Ceci est bien visible sur la figure 1 qui montre la forme typique de la relation de dispersion (équation 13).



**Figure 1 :** Relation de dispersion  $E(k)$  pour des oscillateurs isolés.

On remarque bien que si des quasi-particules avec leur fréquence de résonance  $\omega_0$  sont excitées par le champ électromagnétique, la dispersion possède deux branches réelles que nous appelons branche "supérieure" et "inférieure de polariton" (b.s.p. et b.i.p.). Ces deux branches sont séparées par une zone interdite entre  $\omega_0$  et  $\omega_L$  où la solution de l'équation 13 est purement imaginaire. Entre  $\omega_L$  et  $\omega_0$  n'existe donc pas de solution propagatoire du système composé du champ électromagnétique couplé aux oscillateurs harmoniques. Cette situation est bien connue en physique : les solutions propres d'un Hamiltonien décrivant deux états qui possèdent la même symétrie qui sont couplés ne peuvent pas être dégénérés (level anticrossing). Ici, les deux états sont représentés par le champ électromagnétique et les oscillateurs qui peuvent être des phonons (phonons-polaritons) ou, dans notre cas, des excitons (excitons-polaritons).

La dispersion de la b.s.p. commence à  $k=0$  où  $\omega = \omega_L$ , c'est-à-dire que la branche transverse de polariton est ici dégénérée avec l'onde de polarisation longitudinale. Ceci est une conséquence de la symétrie du problème : pour  $k \neq 0$ , on peut définir une polarisation perpendiculaire à la direction de propagation. À  $k=0$  ceci n'est pas possible (il n'existe pas de direction préférentielle) et les fréquences des oscillateurs longitudinaux et transverses doivent être les mêmes.

Nous allons maintenant discuter la dispersion qualitativement, en introduisant quelques modifications au modèle simple.

Tout d'abord si l'on calcule la relation de dispersion en mécanique quantique à partir d'un modèle analogue de celui présenté ici, on obtient aussi le résultat donné par l'équation (13) Dans ce modèle, on élimine le couplage fort champ-matière par une transformation de Bogoliubov. La polarisabilité atomique macroscopique  $\alpha$  est dans ce cas remplacée par la force d'oscillateur  $\beta_j$  qui est proportionnelle au carré de l'élément de transition entre l'état fondamental "0" et l'état final "j" [1,2] sous l'action du champ périodique. Si le système possède plusieurs résonances dipolactives isolées, il faut sommer sur ces différentes contributions. De plus, on peut considérer le cas où les oscillateurs harmoniques sont couplés entre eux et sont amortis par un terme de forme  $-\gamma_j \dot{P}_A$  dans l'équation différentielle (10). Le résultat est donné par l'expression :

$$\varepsilon(k, \omega) = \frac{c^2 k^2}{\omega^2} = 1 + \sum_j \frac{\beta_j \omega_0^{j^2}(k=0)}{\omega_0^{j^2}(k) - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \quad (17)$$

où  $\varepsilon$  est une fonction complexe. De plus, dans le cas des excitons polaritons, on montre [1, 2] que :

$$\beta_j = \frac{\omega_l^j(k=0)^2 - \omega_0^j(k=0)^2}{\omega_0^j(k=0)^2} \quad (18)$$

est donné par l'interaction d'échange non analytique entre électron et trou.  $\omega_0^j(k)$  donne la dispersion des excitons qui est habituellement considérée dans l'approximation de la masse effective (donc avec "dispersion spatiale").

$$\omega_0^j(k) = \omega_0^j + \hbar^2 k^2 / 2M$$

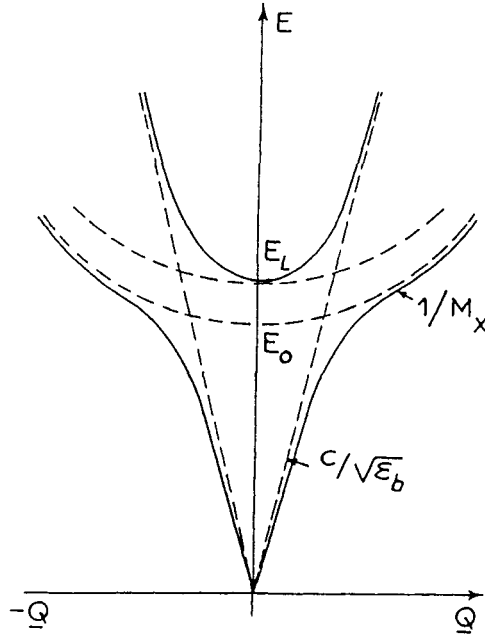
où M est la masse effective du mouvement du centre de masse de l'exciton et  $\hbar k$  sa quantité de mouvement. Si une des résonances "j" est très loin et bien isolée des autres, on peut simplifier l'équation (17) pour  $\omega$  autour de  $\omega_0^j$  et on obtient dans cette "approximation à un oscillateur" :

$$\varepsilon(k, \omega) = \frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \varepsilon_b \left( 1 + \frac{\beta \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right) \quad (19)$$

où nous avons considéré l'indice j comme étant muet et où  $\varepsilon_b$  désigne la constante diélectrique dit du "background", terme simulant l'influence de toutes les autres transitions qui sont permises et qui sont excitées virtuellement par le champ électromagnétique. Pour  $\gamma=0$ , l'équation (17) possède une solution analytique de forme :

$$E(Q) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( A \pm \sqrt{A^2 - 4B^2} \right)^{1/2} \quad (20)$$

avec  $A = \hbar^2 c^2 Q^2 / \varepsilon_b + \hbar^2 \omega_0^2(Q) (1 + \beta)$ ,  $B^2 = \hbar^4 c^2 Q^2 \omega_0^2(Q) / \varepsilon_b$ ,  $E_L = \hbar\omega_L$  et  $E_0 = \hbar\omega_0$  Q est la quantité de mouvement (dans ce cas réel) de l'exciton-polariton. Les solutions de l'équation (20) sont présentées sur la figure 2



**Figure 2** : Relation de dispersion des polaritons excitoniques dans l'approximation d'un oscillateur avec dispersion spatiale et sans amortissement.

Si l'on compare la figure 2 avec la figure 1, on remarque que pour  $E < \hbar\omega_L$  il existe toujours une solution réelle. Pour  $E > \hbar\omega_L$ , deux solutions réelles (propagatoires) sont présentes qui correspondent à des paquets d'ondes de caractère (excitonique ou photonique) et de vitesse de groupes différents. Hors de la résonance, la b.s.p. s'approche d'une manière asymptotique d'une droite de pente  $c/\sqrt{\epsilon_b}$ . Autour de  $E \sim E_0$ , la densité d'état de la b.i.p. change rapidement et les quasi-particules ont un caractère excitonique pour  $E \gg E_0$  et photonique pour  $E \ll E_0$ . Cette région autour de  $E_0$  est appelée "bottleneck region" des polaritons excitoniques sous forte intensité d'excitation. Elle joue un rôle important dans des processus de thermalisation et de collision entre quasi-particules. Pour  $\gamma \neq 0$ , en retournant à l'équation (19) et en négligeant la dispersion spatiale, nous remarquons que  $\epsilon(k, \omega)$  est complexe et possède une partie réelle ( $\epsilon_1$ ) et imaginaire ( $\epsilon_2$ ) :

$$\begin{aligned} \epsilon(\omega) &= \epsilon_b \left( 1 + \frac{\beta \omega_0^2 (\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2} + i \frac{\beta \omega \gamma \omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2} \right) \\ &= \epsilon_1(\omega) + i \epsilon_2(\omega) \end{aligned} \quad (21)$$

$\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$  ont des formes Lorentziennes, et, pour  $\gamma \rightarrow 0$ ,  $\epsilon_2(\omega)$  tend vers une fonction  $\delta(\omega - \omega_0)$  et  $\epsilon_1(\omega)$  montre une singularité à  $\omega = \omega_0$ . Si l'on introduit l'indice de réfraction complexe  $\tilde{n}$  par :

$$\tilde{n}(\omega) = \sqrt{\epsilon(\omega)} = n(\omega) + i \xi(\omega) \quad (22)$$

on obtient :

$$\begin{aligned}\varepsilon_1(\omega) &= n^2(\omega) - \xi^2(\omega) \\ \varepsilon_2(\omega) &= 2n(\omega)\xi(\omega)\end{aligned}\quad (23)$$

ou encore :

$$n(\omega) = \left[ \frac{1}{2} (\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2}) \right]^{1/2} \quad (24)$$

et :

$$\xi(\omega) = \left[ \frac{1}{2} (-\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{1/2}) \right]^{1/2} \quad (25)$$

Avec ces dernières définitions, la partie réelle de la quantité de mouvement devient :

$$\text{Re}(k) = \omega n(\omega)/c \quad (26)$$

qui gouverne la propagation des polaritons, et le coefficient d'absorption  $\alpha$  est donné par

$$\alpha = 2 \omega \xi(\omega)/c \quad (27)$$

Le facteur 2 dans l'équation (27) a son origine dans le fait que le coefficient d'extinction  $\xi$  décrit la diminution de l'amplitude d'un champ électromagnétique se propageant dans le milieu quand  $\alpha$  est celui de l'intensité. Cette dernière est proportionnelle à l'amplitude du champ au carré.

À partir de l'équation (22) nous pouvons déterminer les propriétés de propagation et d'atténuation d'un champ électromagnétique dans un matériau. À l'interface entre l'air et le matériau, il y a réflexion. À incidence normale, la réflexion  $R_{\perp}$  est donnée par  $n$  et  $\xi$  et on obtient :

$$R_{\perp} = \frac{I_r}{I_i} = \frac{[n(\omega) - 1]^2 + \xi(\omega)^2}{(n + 1)^2 + \xi(\omega)^2} \quad (28)$$

où  $I_r$  et  $I_i$  sont respectivement les intensités réfléchie et incidente. À des incidences obliques,  $R$  est donné par les formules de Fresnel [3]. Il est important de noter que  $\xi(\omega)$  prend des valeurs importantes à la résonance ( $\omega_0 < \omega < \omega_L$ ) lorsque  $n(\omega)$  est lui aussi important en dehors de cette région.

Normalement,  $n(\omega)$  est déterminé par des méthodes linéaires comme par la méthode du prisme ou à partir des franges d'interférence ou ellipsométrie, mais nous verrons par la suite qu'il existe aussi des méthodes optiques non linéaires puissantes qui permettent de le faire.

Une méthode originale qui utilise une détection non linéaire est la méthode de temps de vol. La figure 3a schématise un montage type : des impulsions courtes, accordables en fréquence, traversent l'échantillon. Avec une impulsion synchrone de référence on enregistre la corrélation croisée des deux impulsions. À cause de l'indice de réfraction du matériau, l'impulsion test est retardée par rapport au temps de parcours dans le vide et le retard est ainsi mesuré. En connaissant l'épaisseur de l'échantillon, on peut calculer la vitesse de groupe  $v_g$  qui est donnée par  $d\omega/dk$ . La figure 3b montre un exemple où la vitesse de groupe d'un film de CuCl a été mesurée par cette méthode et la dispersion reconstruite [4].

Jusqu'à présent, nous avons discuté la réponse linéaire d'un matériau soumis à un champ électromagnétique. Si le système est soumis à une forte intensité d'excitation résonante, on crée des quasi-particules électroniques réelles. À cause de la nature de Fermion des électrons,

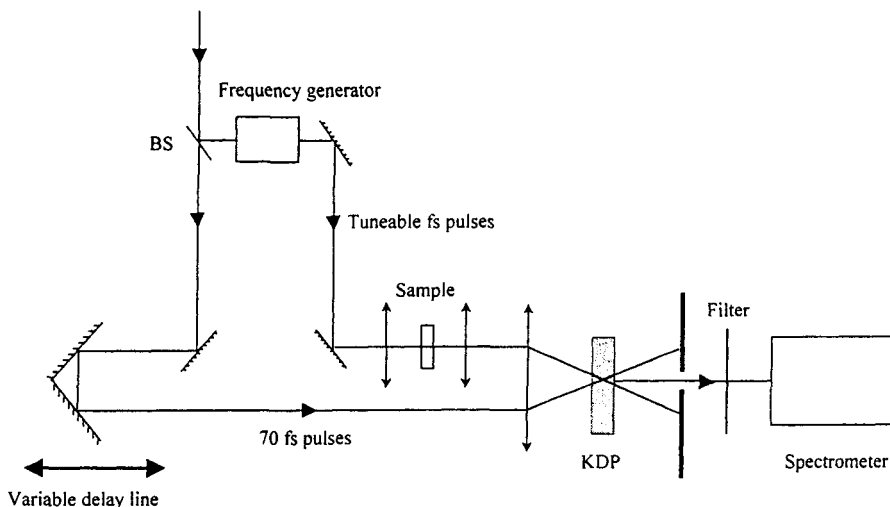


Figure 3a : Expérience de temps de vol dans CuCl : montage.

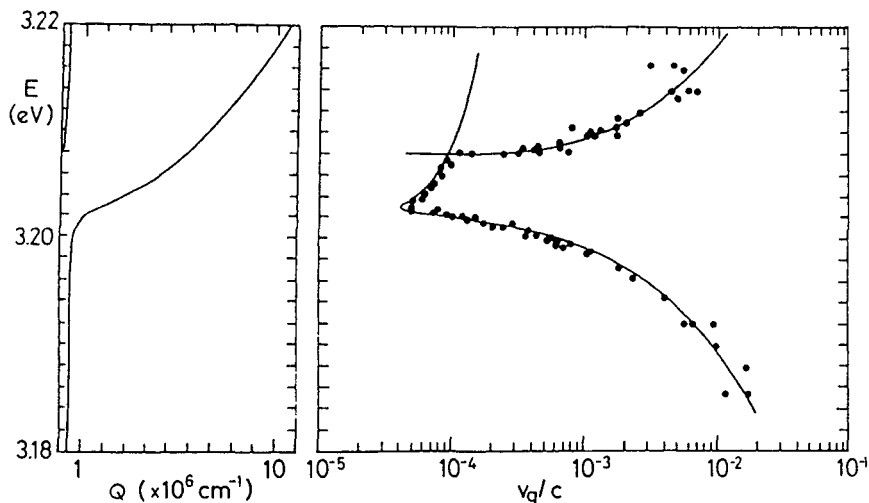


Figure 3b : Expérience de temps de vol dans CuCl : résultats expérimentaux (Réf. 4).

on ne peut pas exciter un deuxième électron dans le même état que celui qui est déjà excité. Ceci change donc, si l'on revient au modèle à un oscillateur (équation 19), la force des oscillateurs  $\beta$  de la transition considérée et son damping  $\gamma$ . Ceci donne lieu à des effets de saturation et à des processus de collisions. De plus, la forte intensité d'excitation peut changer par exemple l'écrantage des interactions entre les paires électron-trou et déplacer ainsi la fréquence propre  $\omega_0$  de l'oscillateur. Elle est aussi directement modifiée par l'effet Stark optique. De plus, à cause de l'énergie déposée dans l'échantillon, la température  $T$  peut augmenter ce qui modifie  $\gamma$  et  $\epsilon_b$ . Comme nous le verrons, ces deux grandeurs sont aussi directement accessibles par des transitions à plusieurs photons. De plus (en considérant l'équation 17) comme nous le verrons au paragraphe 4, le fait d'exciter en résonance un semi-conducteur peut peupler ces niveaux, et leur excitation possède une certaine durée de vie.



Ainsi, à partir de ces niveaux, de nouvelles transitions sont possibles, qui n'existent pas lorsqu'il n'y a que le niveau fondamental de peuplé.

Pour conclure ce paragraphe, il est important de noter que les propriétés optiques d'un matériau sont données par la fonction diélectrique  $\epsilon(k, \omega)$  qui, dans le modèle à un oscillateur, dépend de cinq quantités :  $\epsilon_b$ ,  $\omega_0$ ,  $M$ ,  $\gamma$  et  $\beta$ . Sous forte excitation résonante, ces quantités sont modifiées et des nouvelles transitions apparaissent. L'ensemble donne lieu à des non-linéarités optiques. Ces non-linéarités dépendent de la variation temporelle de l'impulsion excitatrice. De plus, puisque des quasi-particules réelles sont excitées, les systèmes montrent une dynamique propre. Ils apparaissent donc des phénomènes optiques cohérents et incohérents qui peuvent être étudiés par de différentes méthodes de spectroscopie non linéaire. La compréhension des processus qui sont à leur origine est primordiale pour la conception des dispositifs optoélectroniques.

## 2. SPECTROSCOPIE DANS L'ESPACE RÉCIPROQUE

### 2.1 Absorption à plusieurs photons non résonants

La spectroscopie optique non linéaire est un outil puissant pour étudier les propriétés et la nature des états d'un matériau. La méthode la plus simple est l'étude de l'absorption à deux photons. Nous discutons cette méthode tout d'abord pour déterminer la dispersion de polariton excitonique d'un corps modèle : le chlorure de cuivre.

Comme indiqué dans le chapitre "Non-linéarités dans les matériaux semiconducteurs" pour discuter les transitions optiques (linéaires ou non linéaires), nous devons tout d'abord discuter les règles de sélection. CuCl est un semi-conducteur à large bande interdite ( $E_g \sim 3,4$  eV à température ambiante) et cristallise dans la structure de la blende (groupe ponctuel  $T_d$ ). Sa bande de conduction est deux fois dégénérée et possède son minimum au point  $\Gamma$  ayant la symétrie  $\Gamma_6$ . Les bandes de valence ont la symétrie (comme la plupart des semi-conducteurs de structure cubique)  $\Gamma_8$  et  $\Gamma_7$ . La zone interdite est directe, située au point  $\Gamma$ . La figure 4 donne cette structure de bande  $E(k)$  autour du point  $\Gamma$ .

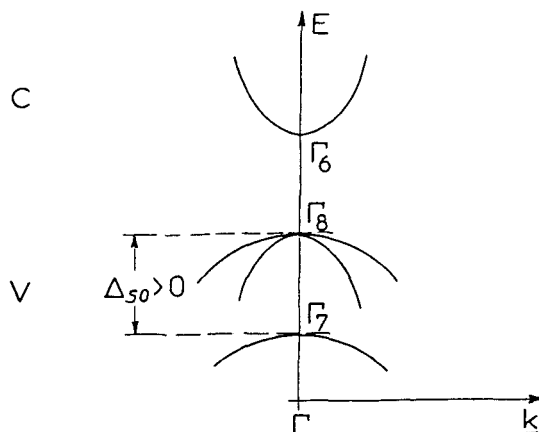


Figure 4 : Structure de bande typique des semi-conducteurs de structure de la blende.

Les transitions

$$\begin{aligned}\Gamma_8 \otimes \Gamma_6 &= \Gamma_3 \oplus \Gamma_4 \oplus \Gamma_5 \quad (Z_{12}) \text{ et} \\ \Gamma_7 \otimes \Gamma_6 &= \Gamma_2 \oplus \Gamma_5 \quad (Z_3)\end{aligned}\quad (29)$$

entre les deux bandes de valence et la première bande de conduction font intervenir leur produit de représentations irréductibles. Ils sont permis, ce qui signifie que la transition est dipolactive (le dipole, vecteur de coordonnées  $x,y,z$ , se transforme comme  $\Gamma_5$  en  $T_d$ ). Par couplage spin-orbite, les deux bandes de valence sont séparées par  $\Delta_{SO}$ . La structure de bande donne donc lieu à deux séries d'excitons [1,2] notées  $Z_{12}$  et  $Z_3$ .

CuCl a la particularité que  $\Delta_{SO} = -81$  meV est négatif [1], donc la série excitonique  $Z_3$  est la plus basse en énergie. Elle possède (équation. 29) dans l'état fondamental quatre états. L'un d'eux se transforme comme  $\Gamma_2$  qui n'est pas optiquement actif et possède l'énergie la plus basse. Si "z" est la direction de propagation, par interaction d'échange analytique, deux états transverses (se transformant comme "x" et "y") sont plus hauts en énergie que l'état de symétrie  $\Gamma_2$ . L'exciton longitudinal (se transformant comme "z") est séparé d'eux par l'interaction d'échange non analytique [1]. Si l'on utilise de la lumière polarisée linéairement selon "x" ou "y", ce champ ne se couple qu'avec un seul oscillateur donnant lieu à un polariton. Dans ce cas, les approximations faites pour obtenir l'équation (19) sont valables parce que les autres résonances se trouvent loin de l'état fondamental de la série  $Z_3$ .

Puisque la structure cristalline ne possède pas de centre d'inversion, les trois états de symétrie  $\Gamma_5$  peuvent être excités par absorption à deux photons [5, 6]. Le dispositif utilisé est décrit en référence [6]. Les impulsions d'un laser Nd:Yag d'une durée de 20 ns excite à  $E_1 = 1,1648$  eV un échantillon dans un cryostat à 1,5 K. Son intensité est mesurée par une photodiode. L'échantillon est en même temps éclairé par un flash provenant d'une lampe à Xénon avec une énergie de photon  $E_2$  autour de 2,03 eV. Sa transmission par l'échantillon est mesurée en fonction de l'énergie de photon avant et simultanément à l'excitation. Le changement de la transmission induit par le laser est évalué. Ainsi, le coefficient d'absorption à deux photons peut être déterminé comme le montre la figure 5.

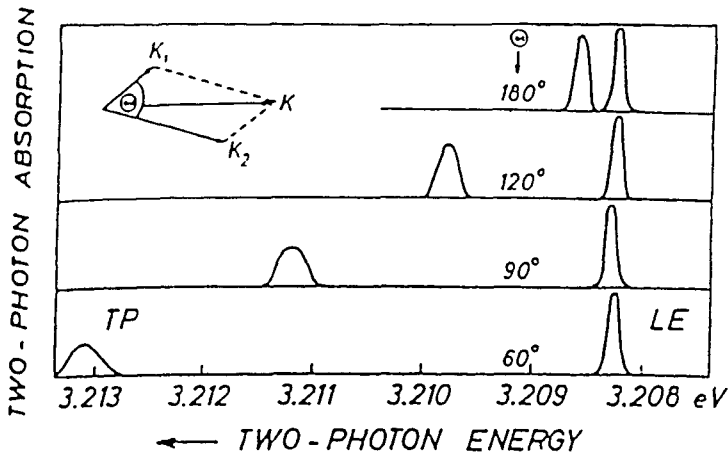


Figure 5a : Absorption à 2 photons dans CuCl [6].

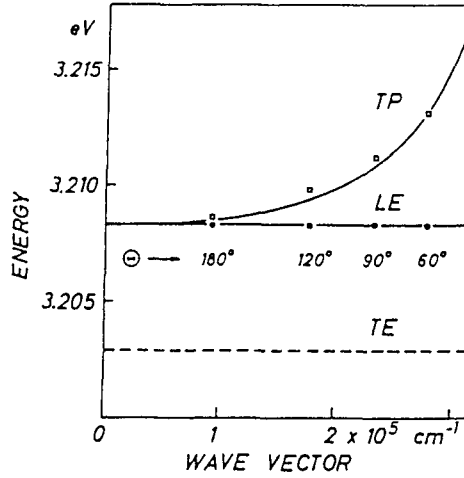


Figure 5b : Dispersion de polaritons dans CuCl [6].

Les deux photons d'énergies  $E_1$  et  $E_2$  et de vecteurs d'ondes  $\vec{K}_1$  et  $\vec{K}_2$  (dont la valeur et la direction dans le cristal sont bien connues d'après l'indice de réfraction et l'angle d'incidence sur la surface) créent la nouvelle quasi-particule en obéissant à la loi de conservation d'énergie et des moments. Ces quasi-particules sont créées avec le vecteur d'onde

$$\vec{K}^i = \vec{K}_1 + \vec{K}_2 \quad (30)$$

qui correspond à la condition d'accord de phase. De plus, ils ont une énergie de photon donnée par

$$E^i = E_1 + E_2 \quad (31)$$

où "i" désigne les différents états finaux de la transition. Si l'on regarde les figures 1 et 2, on s'aperçoit que selon la configuration géométrique,

$$|\vec{K}^i| \leq |\vec{K}_1| + |\vec{K}_2| \quad (32)$$

En utilisant donc deux polaritons sur la branche inférieure, on peut atteindre la branche supérieure et la branche excitonique longitudinale si les règles de sélection le permettent. Comme constaté avant, ceci est le cas dans CuCl et on observe (figure 5a) deux raies d'absorption dont la position spectrale de l'une (b.s.p.) change si l'on change, l'angle  $\theta$  entre les faisceaux. L'autre (correspondant à la création d'un exciton longitudinal) est spectralement fixe, c'est-à-dire que son énergie est indépendante du vecteur  $\vec{K}^i$ . Ceci est typique pour une branche qui ne montre qu'une faible dispersion spatiale parce que dans ces expériences  $|\vec{K}^i| \leq 3.10^5 \text{ cm}^{-1}$ .

À partir des équations (30) et (31), la dispersion des polaritons (linéaires) peut être reconstruite. Le résultat est montré sur la figure 5 b.

Les équations (30) à (32) impliquent que, par absorption à deux photons, la branche inférieure de polariton ayant une courbure concave ne peut pas être atteinte et, en conséquence, on ne peut pas déterminer la séparation  $\hbar(\omega_L - \omega_0)$  qui détermine la force

d'oscillateur de la transition. Ceci devient possible, par contre [7], par une spectroscopie à 3 photons : à partir de 2 photons d'énergie et de moments différents, on excite (virtuellement) un troisième état qui possède le vecteur d'onde et la fréquence de différence des deux polaritons mélangés. Ce mode non propagatoire se couple avec un troisième polariton et ainsi on peut exciter un polariton sur la branche inférieure (b.i.p.) Ce processus est non résonant et relativement faible. Il est devenu possible parce que les lois de conservation d'énergie et du vecteur d'onde

$$E_f = \sum_i E_i \text{ et } \vec{K}_f = \sum_i \vec{K}_i \quad (33)$$

ne font intervenir que des quasi-particules initiales et finales sans s'appliquer aux états intermédiaires dans les processus de génération.

Dans la référence [7], on utilise une cellule Raman de  $H_2$  à 40 bars. On génère des impulsions à l'énergie de photon de  $\hbar\omega = 0,64972$  eV à partir de l'émission d'un laser à Nd:Yag ( $\hbar\omega = 1,6475$ eV). L'émission de ce laser, triplé en fréquence, pompe un laser à colorant, spectralement fin et accordable en fréquence. Sa transmission par l'échantillon est filtrée par un monochromateur et détectée par un photomultiplicateur. Comme précédemment, en changeant les angles entre les deux faisceaux et l'énergie de photon du laser à colorant, des quasi-particules sur les différentes branches peuvent être excitées. Elles ont des énergies et vecteurs d'ondes précises. Ceci donne lieu à une baisse d'intensité transmise du laser à colorant. Comme précédemment, en utilisant les équations (30) et (31), l'indice de réfraction du CuCl pour les différents photons ainsi que leurs angles d'incidence, on peut reconstruire la dispersion de polariton (Fig. 6). On ajuste après les paramètres de l'équation (19) ou même (dans le cas de plusieurs oscillateurs) de l'équation (17) et on détermine les valeurs des fréquences propres longitudinales ou transverses.

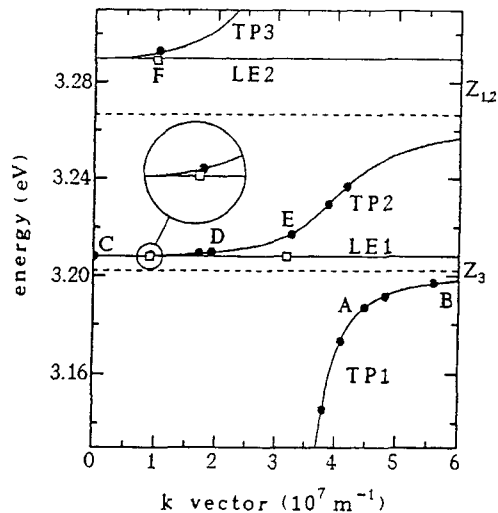


Figure 6 : Dispersion de polaritons dans CuCl [7].

Les méthodes d'absorption discutées demandent des échantillons épais de quelques millimètres. Hors résonance on peut estimer que le coefficient d'absorption à deux photons  $\alpha_2$

est de l'ordre de  $10^{-9} \text{ cm.W}^{-1}$ . En conséquence, en utilisant des impulsions nanosecondes de puissance crête de quelques  $\text{MW/cm}^2$ , la variation de l'absorption induite par laser est faible. Si l'on veut étudier des films minces, on peut utiliser une autre technique plus sensible où on ne détecte pas la variation d'absorption mais on mesure l'émission des excitons créés auparavant par absorption à deux photons [5]. Cette technique possède un meilleur rapport signal/bruit. On ne peut, par contre, utiliser qu'une seule source excitatrice et perd ainsi les avantages que présentent une configuration avec deux sources de polarisation, de vecteur d'onde et d'énergie de photon variables indépendamment. Ceci est dû au fait que l'on ne peut pas distinguer si la luminescence observée était due à un état excité auparavant par deux photons provenant de la même source ou de deux sources différentes.

## 2.2 Absorption et émission à plusieurs photons résonants : diffusion Hyper-Raman

La figure 2 montre la dispersion des polaritons excitoniques et des excitons longitudinaux que nous voulons étudier dans la suite mais en utilisant des énergies de photons presque résonantes. Par rapport à la technique de spectroscopie à trois photons discutée auparavant, nous pouvons ainsi espérer augmenter la probabilité de transition de l'ordre d'un facteur  $10^6$ . Nous verrons, par contre, que l'utilisation des photons presque résonants peut également avoir des inconvénients.

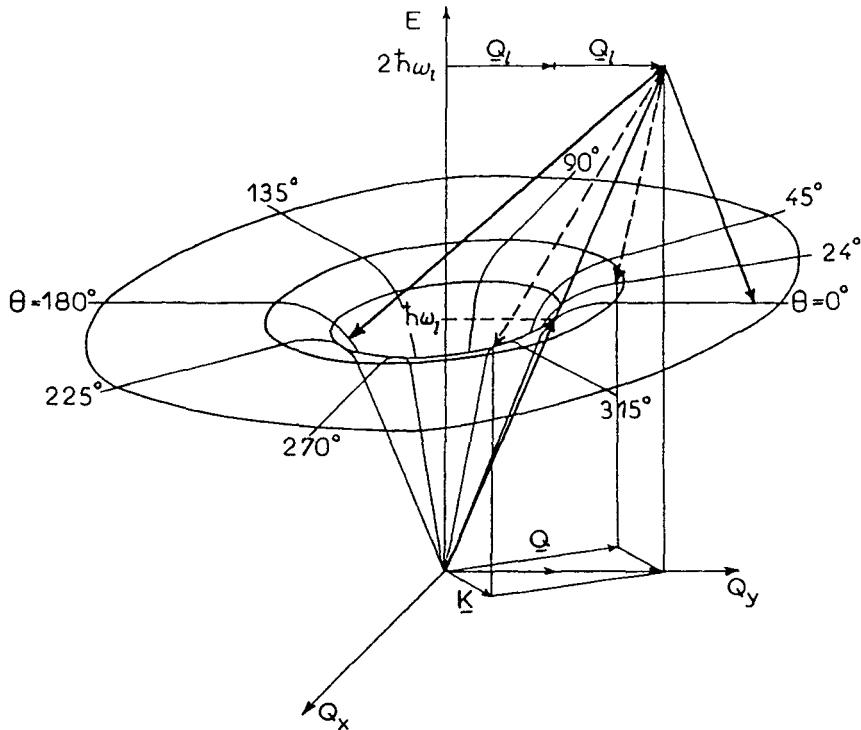


Figure 7 : Principe de la diffusion hyper-Raman excitonique.

Dans  $\text{CuCl}$ , l'approximation à un oscillateur est justifiée [1, 8 – 16] et la dispersion est

isotrope. Nous la traçons (figure 7) dans le plan (X,Y). Nous excitons un échantillon avec un laser accordable d'énergie de photon  $\hbar\omega_1$  et les polaritons ont le vecteur d'onde  $\vec{Q}_1 // \vec{Y}$ . On excite, par absorption à deux photons un état intermédiaire à l'énergie  $2\hbar\omega_1$  et de vecteur d'onde  $2\vec{Q}_1$ . Sous conservation d'énergie et de moment (équations 30 et 31), cet état peut se décomposer spontanément en deux autres polaritons sur la b.i.p. (ou bien un exciton longitudinal et un b.i.p.). Discutons, comme il est indiqué dans la figure 7, l'émission de l'échantillon en rétrodiffusion (flèches continues). On observe le processus où un b.i.p. avec un vecteur d'onde  $\vec{Q}_3 \approx -\vec{Q}_1$  est créé ( $\theta = 180$ ) et étudié comme photon émis par l'échantillon. Le deuxième b.i.p. avec  $\vec{Q}_4 \approx 3\vec{Q}_1$  ( $\theta = 0$ ) possède l'énergie  $E_4 \approx E_0$ . D'après l'équation (31) l'énergie du polariton observé est donc  $E_3 \approx 2\hbar\omega_1 - E_0$ , et la position spectrale varie donc avec  $\hbar\omega_1$ . Ceci est montré sur la figure 8 où une raie ( $R_T$ ) se déplace [10 - 12] si l'on change l'énergie de photon du laser exciteur  $\hbar\omega_1$ . La figure 9 montre la position spectrale des raies fines en fonction de  $\hbar\omega_1$ . La pente de la raie  $R_T$  est égale à 2.

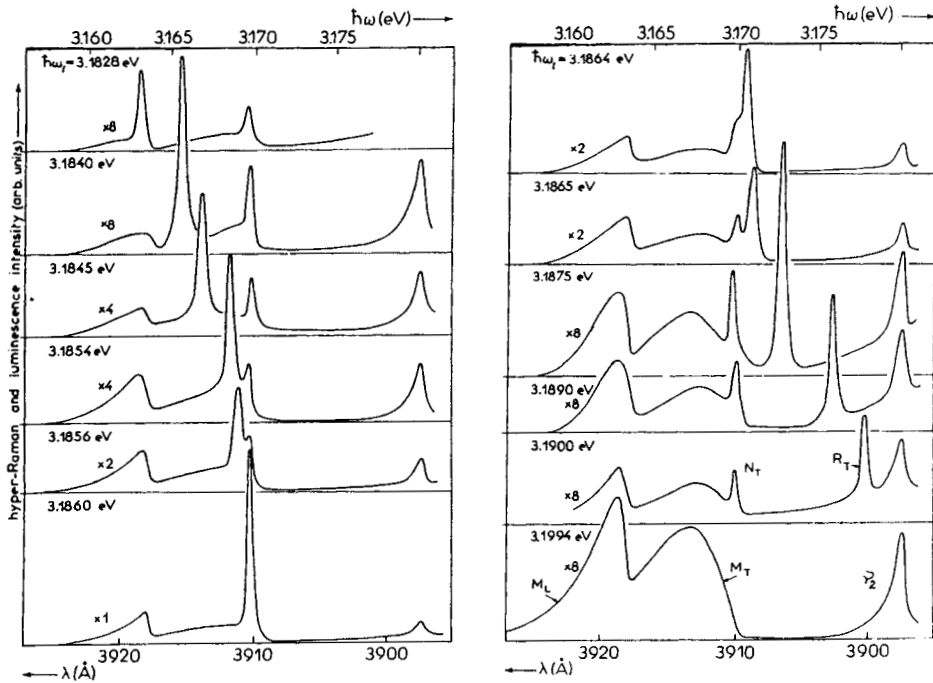


Figure 8 : Spectre d'émission du CuCl à 4 K pour différentes énergies de photon d'excitation.

Si l'on revient à la figure 7, on voit que le processus étudié n'est pas le seul : si l'on analyse (par exemple dans une configuration en transmission) l'émission de l'échantillon faisant un angle  $\theta$  avec la direction d'excitation, on trouve trois raies d'émission. Une est proche de  $E_0$  et dépend faiblement de  $\hbar\omega_1$  et de  $\theta$ . La position spectrale des deux autres, notées  $R_T^+$  et  $R_T^-$  en dépendent fortement. La figure 7 (flèches pointillées) schématise la situation

pour  $R_T^+$ , observé dans une direction de  $24^\circ$  par rapport à  $\vec{Q}_1$ . La variation de la position spectrale avec  $\theta$ , pour  $\hbar\omega_1$  donné, a son origine dans le fait que les deux polaritons finaux du processus de collision se trouvent dans la région de "bottleneck" de la branche de polariton où  $E$  varie fortement avec  $|Q|$ .

Cette situation est montrée sur la figure 10 où on observe des raies d'émission  $R_T^+$  et  $R_T^-$  à des positions spectrales différentes si l'on change l'angle d'incidence du laser  $\alpha$  et garde la configuration  $(\hbar\omega_1, \beta)$  constante. La figure 11 montre la position spectrale des raies pour des différentes configurations  $(\alpha, \hbar\omega_1)$ . L'indice de réfraction et les angles d'incidences  $\alpha$  et  $\beta$  déterminent l'angle de diffusion  $\theta$  à l'intérieur de l'échantillon.

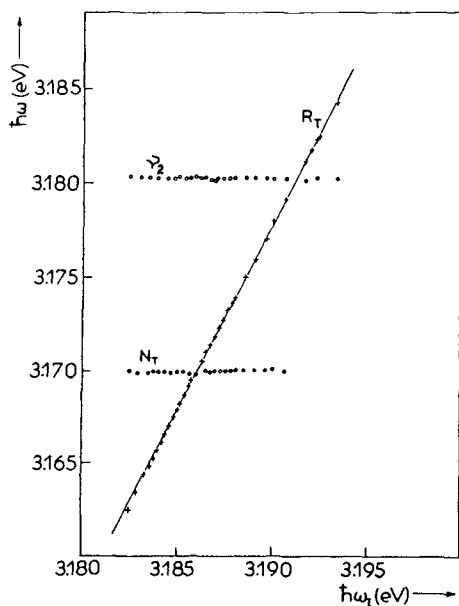


Figure 9 : Variation de la position des raies fines en fonction de  $\hbar\omega_1$ .

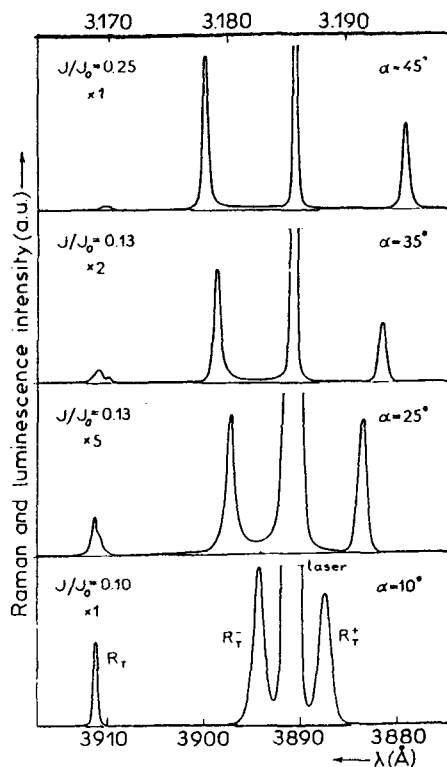


Figure 10 : Spectre d'émission de CuCl pour  $\hbar\omega_1 = 3,1856$  eV et différents angles d'incidence du laser  $\alpha$  sur la surface de l'échantillon. L'angle que la direction de l'observation fait avec la surface de l'échantillon  $\beta = 0$  est fixe.

Si l'angle de diffusion  $\theta$  est grand ( $\theta \sim 60^\circ$ ) et si la polarisation de l'émission est dans le plan de diffusion, un des états finaux peut être un exciton longitudinal et une raie notée  $R_L$  est observée. Elle a été mesurée pour deux configurations : rétrodiffusion (où le vecteur d'onde de l'exciton  $Q_{ex} \approx 3Q_1$ ) et en transmission ( $Q_{ex} \approx Q_1$ ). Un déplacement systématique de la raie  $R_L$  est observé qui est attribué à la dispersion spatiale de l'exciton longitudinal [12].

Afin d'atteindre la b.s.p., on ne peut pas utiliser un seul laser d'excitation parce que le module du vecteur de  $2\vec{Q}_i$  est trop important pour que l'équation (33) possède une solution.

On peut, par contre, utiliser deux lasers à colorant différents et exciter l'échantillon des deux côtés [13]. Ainsi, le module du vecteur avec lequel l'état intermédiaire est excité est plus petit et un processus de recombinaison qui fait intervenir la b.s.p. est possible.

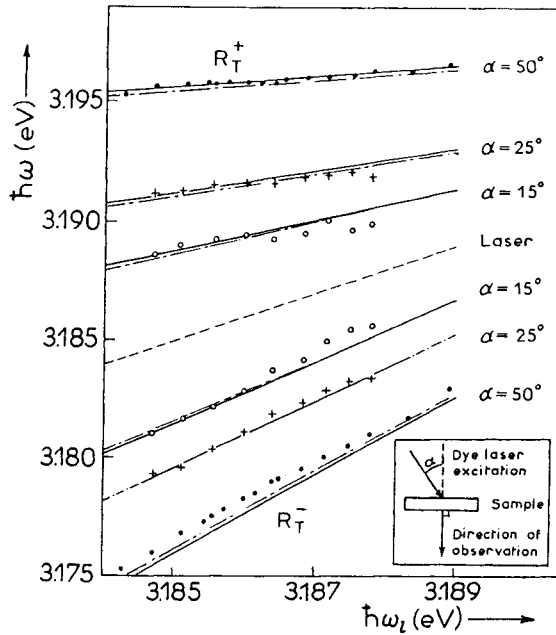


Figure 11 : Positions spectrales des raies  $R_T^+$  et  $R_T^-$  pour différents angles  $\alpha$  en fonction de  $\hbar\omega_i$ .

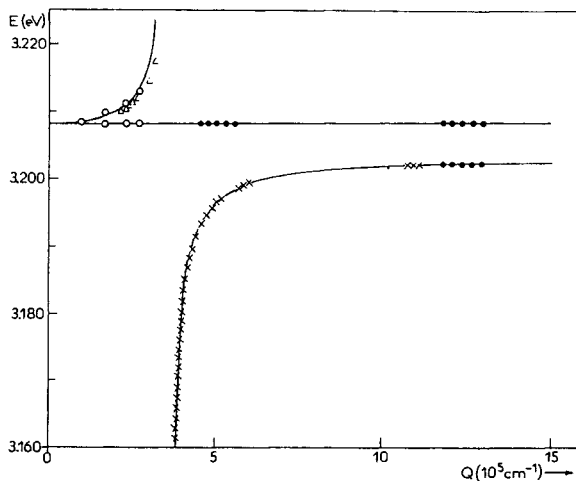


Figure 12 : Dispersion d'exciton et polariton obtenus par diffusion hyper-Raman ( $\bullet$ ,  $\times$ ,  $\Delta$ ) d'après les références [12, 13] et absorption à 2 photons (o) d'après la référence [6].



L'analyse de l'ensemble des résultats obtenus par diffusion hyper-Raman est plus compliquée que dans le cas d'absorption à deux ou trois photons non résonants : comme le montre la figure 2 et l'équation (26), l'indice de réfraction  $n$  varie fortement en fonction de l'énergie quand un polariton est dans la région du bottleneck. Pour  $\gamma = 0$ , on fixe donc un jeu de paramètres qui définit la dispersion (équation. 17 ou 20). On mesure l'angle d'incidence du faisceau laser et son énergie de photon et on calcule  $\bar{Q}_i$  à partir de l'équation (17). Par suite, on cherche la solution autoconsistante qui remplit les règles de conservation d'énergie et de moment de l'équation (33) avec la condition supplémentaire que la b.i.p. est émise par l'échantillon dans la direction  $\beta$ . On compare le résultat du calcul avec les mesures et ajuste éventuellement le jeu initial des paramètres. La solution que l'on obtient est donnée par les traits dans les figures (9) et (11). La figure 12 montre l'ensemble de ces résultats où on a attribué l'énergie des raies au module du vecteur d'onde calculé.

Afin de montrer la complexité de la situation dans d'autres semi-conducteurs dans la figure 13 on donne pour CuBr les positions spectrales des raies hyper-Raman en fonction de l'énergie de photon du laser dans une configuration de rétrodiffusion. La direction de propagation des polaritons est parallèle à  $[110]$ , leur polarisation  $e \parallel [001]$  ou  $e \parallel [-110]$ . Ceci correspond aux représentations irréductibles  $\Sigma_1$  et  $\Sigma_2$  dans  $T_d$  [17]. Comme je l'ai mentionné avant, dans la plupart des semi-conducteurs qui cristallisent dans la structure de la blende,  $\Delta_{SO} > 0$  et la série excitonique la plus basse se forme à partir de la bande de valence de symétrie  $\Gamma_8$  et de bande de conduction  $\Gamma_6$ . Ceci donne lieu à huit états excitoniques de symétrie  $\Gamma_3 \oplus \Gamma_4 \oplus \Gamma_5$  dont la dégénérescence entre  $\Gamma_3 \oplus \Gamma_4$  et  $\Gamma_5$  est levée par l'interaction

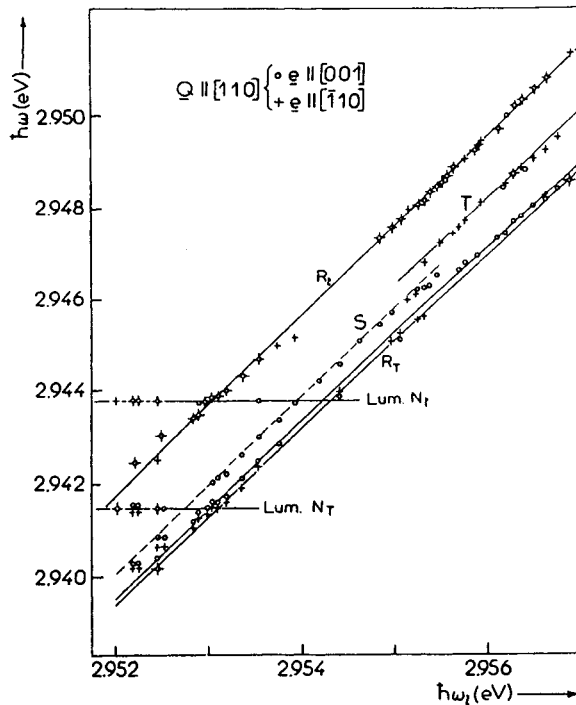


Figure 13 : Positions spectrales des raies hyper-Raman dans CuBr dans une configuration de rétrodiffusion.

d'échange analytique. À  $\bar{Q} \neq 0$ , les états sont mélangés par des interactions qui dépendent de  $\bar{Q}$  et peuvent devenir tous partiellement dipolactifs. Les règles de sélection ont été établies et les différentes transitions attribuées. Les mesures ont ainsi été effectuées pour différentes configurations [17] et les résultats ont été utilisés pour établir la dispersion de polariton de CuBr (figure 14).

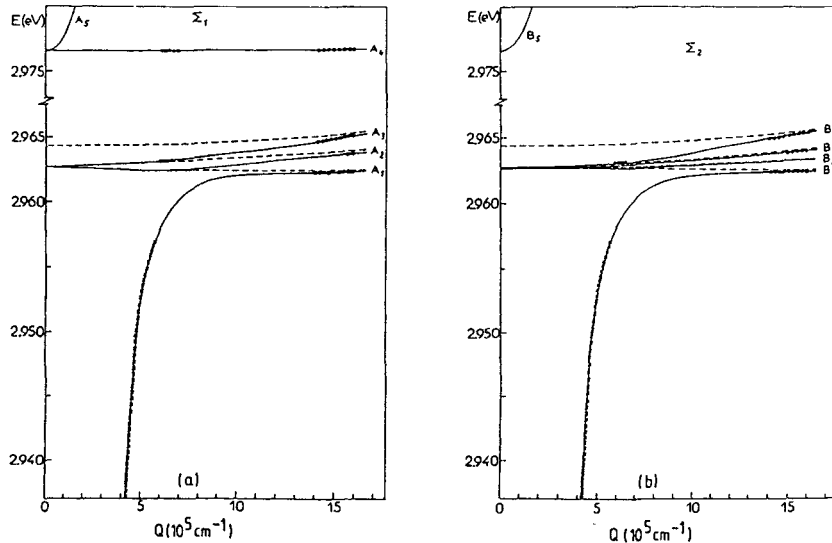


Figure 14 : Dispersion de polaritons de CuBr pour les représentations irréductibles  $\Sigma_1$  et  $\Sigma_2$ .

### 2.3 Biexcitons et absorption à deux photons

Comme nous l'avons souligné précédemment, la présence de résonances augmente la probabilité de transition dans un processus à plusieurs photons. Dans le cas de la diffusion hyper-Raman dans CuBr et CuCl ce ne sont pas seulement des excitons dipolactifs qui jouent le rôle des états intermédiaires presque résonants, mais il existe d'autres états intermédiaires : les biexcitons. Deux excitons peuvent se coupler et donner lieu à un état lié : le biexciton. Son état fondamental possède la symétrie  $\Gamma_1$ , et peut être atteint par absorption de deux photons de même direction de polarisation linéaire [1, 8]. On peut donc créer les biexcitons réels avec un photon d'un laser pompe (d'énergie de photon  $\hbar\omega_1$ ) spectralement fin et accordable et d'un continuum qui ici est préparé par l'émission d'un colorant dans un solvant. Notre montage est montré sur la figure 15. Il est similaire à celui de Staginnus sauf que les deux cuves à colorant sont pompées optiquement par le même laser impulsif. La figure 16 montre un spectre de transmission de CuCl sans (en pointillé) et avec excitation par le laser (trait plein) dont la diffusion Rayleigh est aussi détectée par le spectrographe. On observe que le spectre est modifié par l'excitation et notamment deux raies d'absorption notées IA et TPA apparaissent. Le maximum de la TPA se déplace quand on change l'énergie de photon du laser  $\hbar\omega_1$ . Si on trace la position du dip TPA ( $\hbar\omega_c$ ) en fonction de  $\hbar\omega_1$ , on obtient une droite. La pente de la droite est de -1, indiquant que la somme des deux énergies de photon est une constante :

$$\hbar\omega_c + \hbar\omega_1 = 6,372 \text{ eV}$$

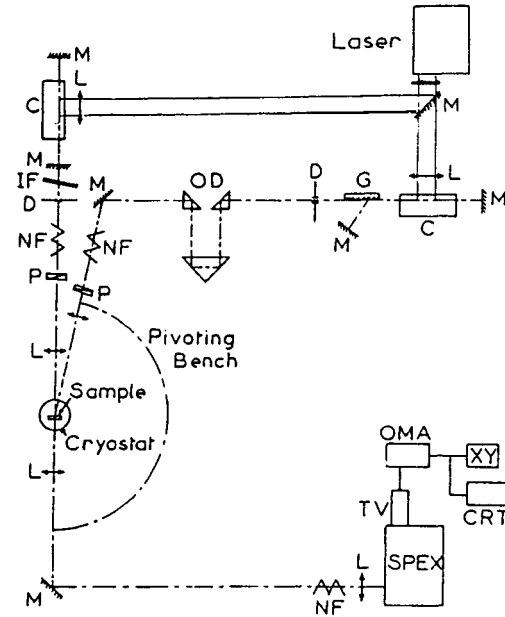


Figure 15 : Montage expérimental pour l'étude d'absorption à deux photons.

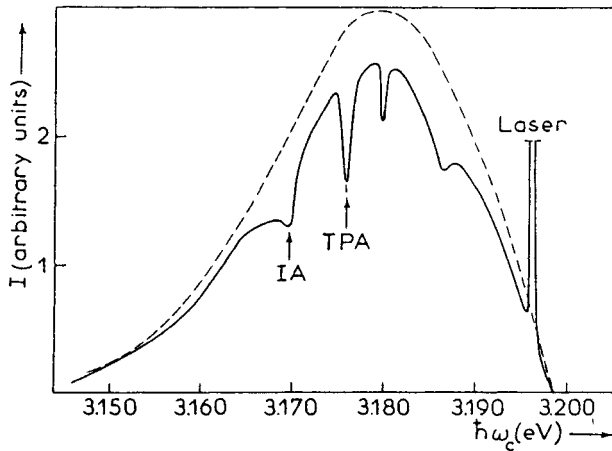


Figure 16 : Spectre de transmission de CuCl à 4 K sans (pointillé) et avec (trait plein) excitation par un laser.

Ceci prouve que l'état final est atteint par une absorption à deux photons simultanés. Si l'on change la polarisation linéaire d'un faisceau à l'autre, la 'TPA' disparaît quand les polarisations des deux faisceaux sont croisées, indépendamment de leur direction de propagation par rapport aux axes cristallins. De ce fait, on peut conclure que la symétrie de l'état final est de  $\Gamma_1$ , comme il était prédit théoriquement pour l'état fondamental du biexciton. De nouveau, on peut varier le vecteur d'onde d'un état final  $K$  par la configuration des deux faisceaux et par leur énergie de photon. Cette technique peut être utilisée pour déterminer la

dispersion des biexcitons. Nous avons fait ces mesures dans CuBr qui possède six états de biexciton dont la dégénérescence est levée par l'interaction d'échange trou-trou. Ils ont la symétrie  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_3$  et  $\Gamma_5$  à  $K=0$  et ont pu être identifiés en utilisant des sources polarisées linéairement [18]. La figure 17 montre le spectre de transmission [19] de CuBr dans une configuration parallèle et antiparallèle et la figure 18 la dispersion [20] avec le résultat d'un calcul pour des branches optiquement actives ou non. Dans ces figures, les vecteurs d'ondes sont calculés à partir des dispersions de polariton connues par diffusion hyper-Raman et les angles d'incidence des faisceaux, et les points donnent les énergies mesurées.

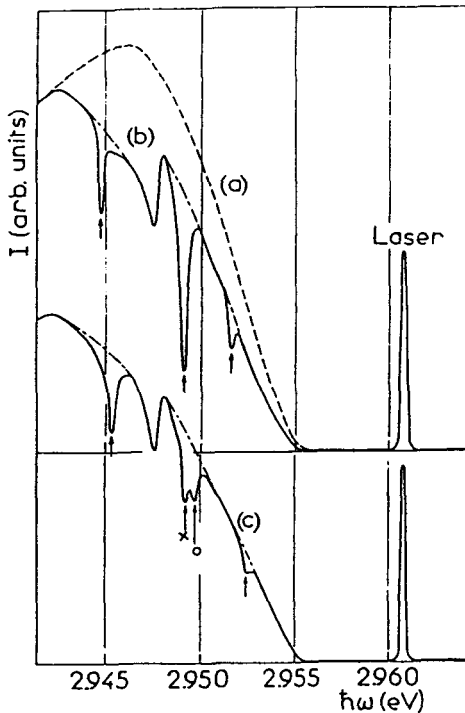


Figure 17 : " TPA " dans CuBr a/sans excitation - b/continuum et laser antiparallèle - c/parallèle.

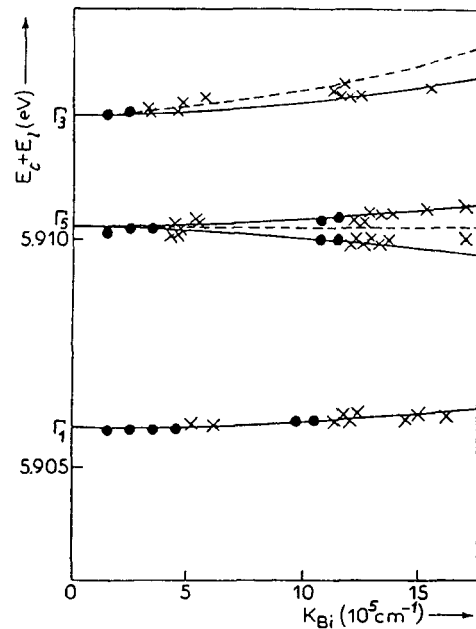


Figure 18 : Dispersion des biexcitons dans CuBr. Traits pleins : niveaux accessibles par absorption à deux photons, pointillés : niveaux inaccessibles.

#### 2.4. Diffusion Hyper-Raman à forte intensité d'excitation.

Revenons à CuCl. Après avoir identifié le niveau biexcitonique il est clair que, si un tel niveau existe, il aura des effets non linéaires, c'est-à-dire qu'il modifiera la dispersion de polariton et l'absorption sous forte intensité d'excitation. À ce propos, il faut distinguer deux cas : le cas dégénéré (un seul faisceau modifie la fonction diélectrique à sa propre fréquence) et le cas non dégénéré (il modifie la fonction diélectrique aussi à d'autres fréquences et peut ainsi modifier les propriétés de propagation et d'absorption d'un faisceau test). En utilisant la technique de la matrice densité [21 - 24], nous avons calculé la dispersion et l'absorption d'un faisceau près

de la résonance excitonique (figure 19). À fortes intensités d'excitation, la résonance se déplace par effet Stark optique. De plus, la figure 20 donne la dispersion de polariton quand un faisceau pompe excite CuCl à l'énergie de photon  $\hbar\omega_p$ . Une forte anomalie apparaît à l'énergie de photon  $E_{Bi} - \hbar\omega_p$  et de plus, la dispersion est changée dans une grande plage. En prenant les deux dispersions et en suivant la même procédure que précédemment pour le calcul des positions spectrales des raies hyper-Raman, on obtient le résultat donné sur la figure 21 par le trait plein. Il apparaît clairement que la dispersion est fortement déformée par la grande intensité d'excitation. Les anomalies apparaissent quand, soit le polariton observé sur la b.i.p. ou son complément se trouve dans la région de forte variation de  $E_i$  avec  $Q_i$  [25-29]. Le fait que l'on observe les variations de la position de  $R_T^+$  et  $R_T^-$  avec l'intensité aussi quand le complément du polariton qui est observé se trouve dans la région perturbée, montre bien qu'il s'agit d'un effet dispersif et pas d'une simple réabsorption.

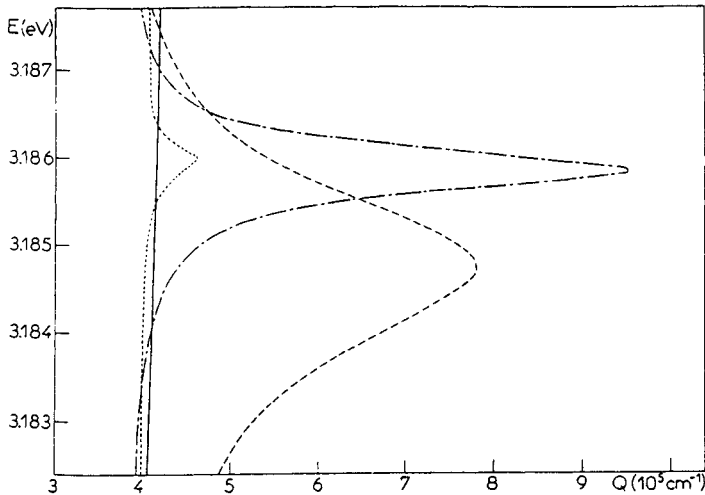


Figure 19a : Dispersion CuCl proche de l'énergie  $E_b/2$  pour différentes intensités d'excitation.

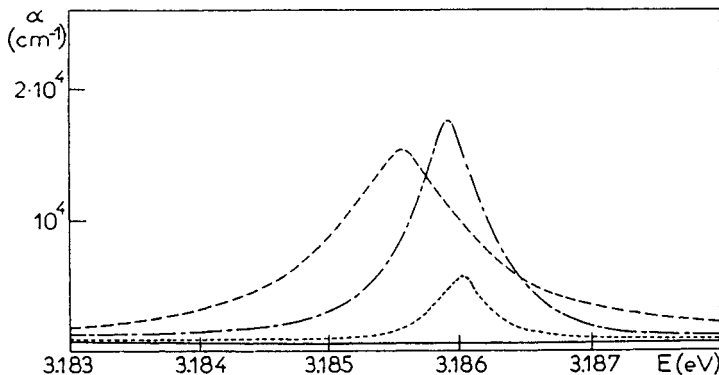
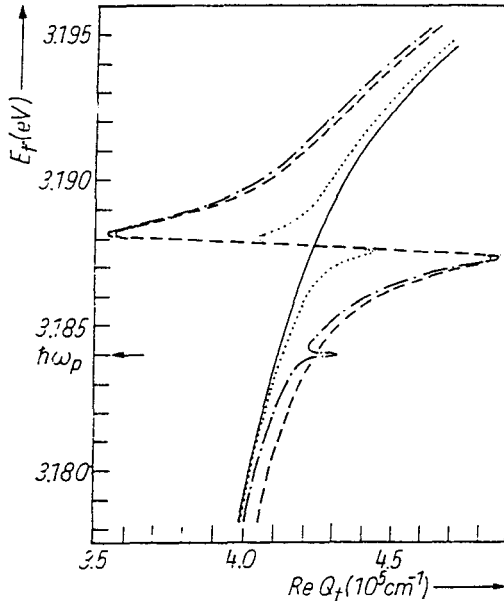
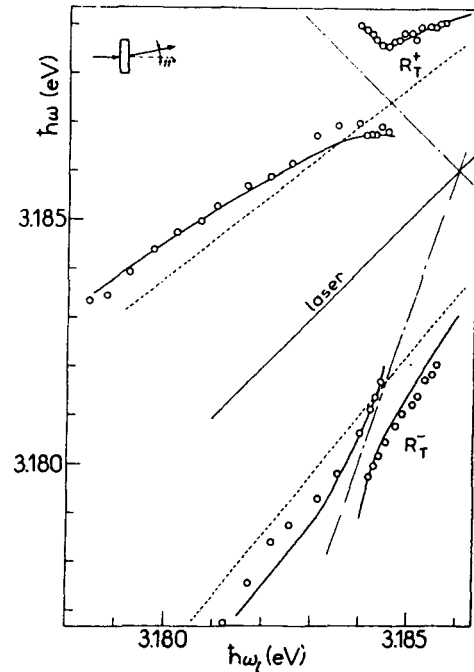


Figure 19b : Absorption de CuCl proche de l'énergie  $E_b/2$  pour différentes intensités d'excitation.



**Figure 20 :** Dispersion d'un faisceau test au voisinage de  $E_b/2$  quand un faisceau pompe excite CuCl à l'énergie de photon  $\hbar\omega_p$  pour différentes intensités de pompe.



**Figure 21 :** Positions de Raies hyper-Raman à faible intensité d'excitation (en pointillé) et forte intensité d'excitation (cercles). Le trait plein donne les positions calculées en tenant compte de la renormalisation de la dispersion de polariton.

## 2.5 Absorption induite dans CuCl

Revenons à la figure 16 de CuCl et la raie notée AI. À partir de notre connaissance des énergies du biexciton, des excitons et de leurs masses effectives, nous pouvons l'identifier comme étant due à une transition entre des polaritons thermalisés sur la b.i.p. et le biexciton. Parce que la masse effective du biexciton est à peu près le double de celle de l'exciton, on obtient des raies spectralement larges si les excitons sont distribués dans leurs bandes [30]. Cette distribution d'excitons peut être décrite par une température effective. Nous avons étudié l'évolution de cette distribution en temps en excitant CuCl avec la quatrième harmonique d'un laser Nd : Yag à modes couples. Les impulsions ont une durée de 30 ps. Une partie du faisceau est focalisée dans une cuvette, contenant du  $D_2O$ . Par effet de Raman stimulé, un continuum, spectralement large et de même durée que les impulsions laser est créé et nous sert comme impulsion test. Après passage par une ligne de retard, le faisceau test est focalisé sur l'échantillon qui est refroidi à 4K. Le spectre transmis est analysé en calculant l'absorption induite à partir du rapport des intensités test transmises par l'échantillon sans  $J_0(\omega_1)$  et avec  $J(\omega)$  excitation laser. La figure 22 montre le coefficient d'absorption induit  $\alpha_j \propto \ln(J_0/J)$ .

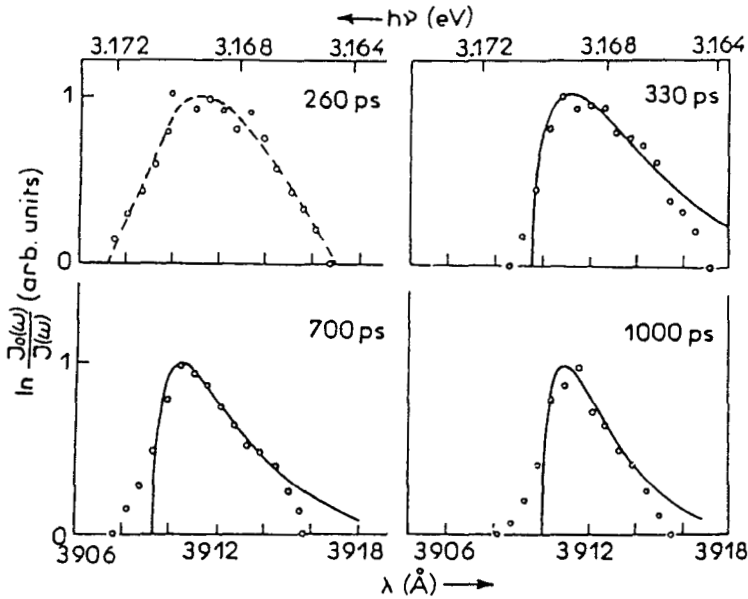


Figure 22 : Spectre d'absorption induite résolu en temps dans CuCl.

On voit bien qu'à un retard  $\tau$  de 260 ps la distribution n'est pas entièrement thermalisée et pour  $\tau > 300$  ps on obtient une raie qui a la forme qui correspond à une distribution de Boltzmann inversée. Pour calculer la forme de la raie (trait plein) nous avons pris une distribution de Boltzmann pour les excitons transverses caractérisée par une température  $T_e$  différente de celle du réseau. Nous avons négligé l'effet polariton, ce qui explique les différences avec les points expérimentaux à haute énergie de photon. L'absorption induite n'apparaît -due à une émission stimulée- qu'après 250 ps et on voit (figure 23) la thermalisation du gaz d'exciton.

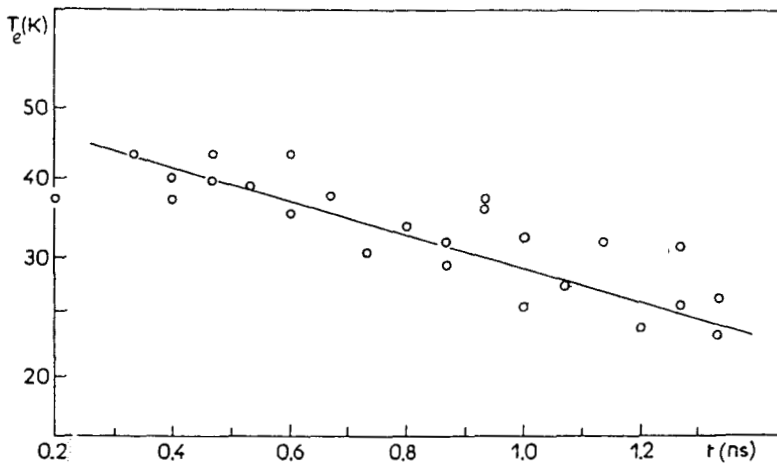


Figure 23 : Thermalisation des excitons dans CuCl à 4 K.

### 3. ÉTUDE DE MODIFICATIONS D'ABSORPTION DANS DES SYSTÈMES DIFFÉRENTS

#### 3.1 Limitation optique dans $C_{60}$

Nous avons jusqu'à présent étudié des systèmes invariants sous translation dans lesquels les transitions se font avec conservation d'énergie et des moments i. e. la dispersion de polaritons. Dans des systèmes où des molécules se trouvent dans un solvant ou des systèmes solides amorphes ou polycristallins, la règle de conservation des moments est relaxée et on étudie plutôt la variation de la fonction diélectrique macroscopique complexe  $\epsilon(\omega)$  qui est modifiée par l'excitation.

Dans le contexte discuté dans ce cours, la limitation optique est importante parce qu'elle trouvera des applications dans des problèmes de protection de dispositifs optiques. Les limiteurs optiques dont la transmission diminue en fonction de l'intensité lumineuse, peuvent être utilisés pour la protection de capteurs contre des grandes intensités lumineuses sans en réduire la sensibilité à faible intensité. La molécule de  $C_{60}$  est en principe un matériau prometteur pour une telle application car son absorption augmente fortement avec l'intensité lumineuse incidente. Plusieurs groupes ont étudié l'absorption non linéaire du  $C_{60}$  dissous dans des solvants ou déposé sous forme de couche mince. L'utilisation de matrices solides de Xérogel imprégnées de  $C_{60}$  présente néanmoins de nombreux avantages (excellente qualité optique, stabilité mécanique, seuil de dommage élevé et possibilité de choisir la concentration de dopage). Nous effectuons une étude des propriétés d'absorption non linéaire de tels verres de Xérogel massifs imprégnés de  $C_{60}$ .

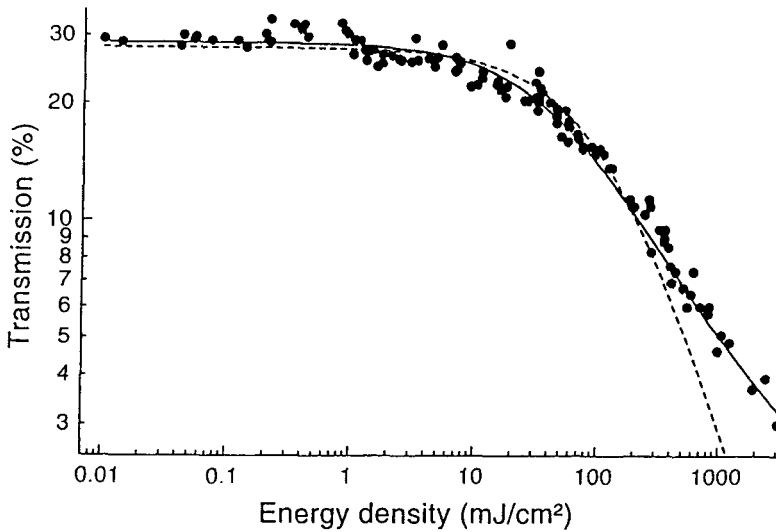
Afin de décrire l'absorption non linéaire de la molécule de  $C_{60}$ , plusieurs auteurs proposent un modèle à cinq niveaux [31, 32]. Chaque état électronique de la molécule est associé à un grand nombre d'états vibroniques. Le  $C_{60}$  possède des états excités de deux types, des états singulets (S) et triplets (T), correspondant à un spin total de 0 et 1 respectivement. Des porteurs dans le premier état excité  $S_1$  sont transférés vers l'état  $T_1$  de plus basse énergie que  $S_1$ , suivant un processus nommé "intersystem crossing", avec une constante de temps  $\tau_{\text{sing-trip}}$  que nous déterminerons dans la section qui traite la dynamique. Le point clé pour l'existence d'une absorption qui augmente avec l'intensité incidente est le fait que la section efficace des états excités,  $\sigma_{S_1}$  ou  $\sigma_{T_1}$ , respectivement pour l'état singulet  $S_1$  ou l'état triplet  $T_1$ , soit plus grande que  $\sigma_{S_0}$ , la section efficace pour une absorption à partir de l'état fondamental ( $S_0$ ). Par conséquent, l'absorption totale de l'échantillon augmente avec la population des états excités, donc avec l'augmentation de l'intensité.

##### 3.1.1 Limitation optique

Afin de caractériser les non-linéarités optiques de nos échantillons, nous avons étudié leur absorption en fonction de l'intensité d'excitation [33]. Nous avons mesuré la transmission d'un faisceau laser à travers l'échantillon pour différentes intensités lumineuses. La source laser utilisée est un laser  $Nd^{3+}$ -YAG impulsif (25 ps) doublé en fréquence. Les mesures sont donc effectuées à température ambiante à une longueur d'onde de 532 nm. Nous présentons ici les résultats obtenus avec un échantillon d'une épaisseur de 500  $\mu\text{m}$  dont la transmission linéaire est de 30 % à 532 nm.



Nous mesurons la transmission du faisceau à travers l'échantillon en fonction de l'intensité lumineuse incidente. Une faible fraction du faisceau incident sert de référence afin d'éviter les erreurs de mesures dues aux fluctuations du laser. Les intensités incidentes et transmises sont déterminées à l'aide d'un même analyseur multicanal optique de type réticon. Le rapport des deux quantités nous donne la transmission de l'échantillon. Nous changeons la densité d'énergie sur l'échantillon grâce à des filtres atténuateurs. Nous les déplaçons de devant à derrière l'échantillon. De cette façon, une variation d'intensité mesurée avec la caméra réticon est uniquement due à un changement de transmission de l'échantillon. La figure 24 montre la transmission en fonction de l'énergie d'une impulsion.



**Figure 24 :** Limitation optique de  $C_{60}$  : points : transmission mesurée, ligne hachée : absorption à deux photons successifs, trait plein : absorption à deux photons avec saturation.

Nous avons déplacé l'échantillon après chaque tir afin d'être sûr de ne pas avoir détérioré la surface de l'échantillon par une excitation préalable. En augmentant l'énergie des impulsions laser, une absorption induite apparaît. La transmission reste constante jusqu'à une valeur seuil à partir de laquelle elle diminue rapidement jusqu'à 10 - 20 % de sa valeur pour des faibles intensités. La densité d'énergie maximale qui est de quelques  $J/cm^2$  par impulsion laser, est supérieure au seuil de dommage du Xérogel. En conclusion, on peut constater que les Xérogels dopés au  $C_{60}$  montrent une limitation optique extraordinaire.

Afin d'analyser nos résultats, nous avons supposé que l'absorption non linéaire possède la forme

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 I \quad (34)$$

En intégrant l'équation différentielle

$$\frac{\partial I(z)}{\partial z} = -\alpha I(z) \quad (35)$$

pour  $\alpha_0$  et  $\alpha_2$  constant, nous obtenons la courbe en pointillé sur la figure 24. Afin d'améliorer l'accord entre points expérimentaux et le résultat de notre intégration à des fortes intensités,

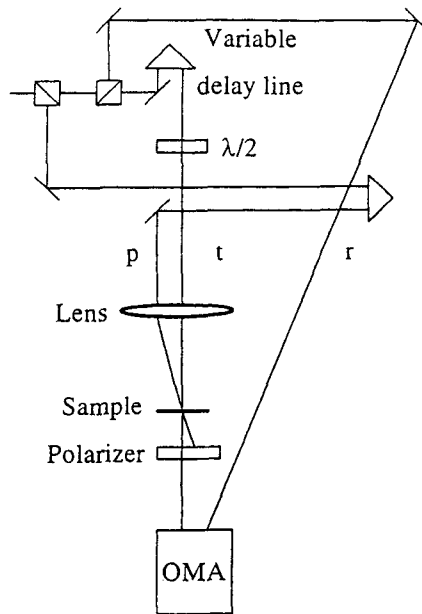
nous introduisons un terme de saturation  $I_{sat}$  dans l'équation. (34). Dans ce cas,  $\alpha_2$  prend la forme

$$\alpha_2 = \frac{\alpha_2^0}{1 + I/I_{sat}} \quad (36)$$

où  $\alpha_2^0$  est une constante. La courbe en trait plein est calculée en utilisant  $\alpha_2^0 = 11 \text{ cm/GW}$  et  $I_{sat} = 3 \text{ GW/cm}^2$ .

### 3.1.2 Dynamique

Afin de déterminer la dynamique du processus de limitation optique observé, nous avons effectué des expériences de pompe-sonde [33]. Cette méthode consiste à utiliser deux impulsions laser d'intensité différente comme le montre la figure 25. Une première impulsion de forte intensité crée une importante population dans des états excités. Une deuxième impulsion d'intensité beaucoup plus faible sonde les changements de l'absorption engendrés par la première. En retardant l'impulsion sonde, on est ainsi capable de suivre l'évolution temporelle des populations excitées.



**Figure 25** : Dispositif expérimental pour les expériences de transmission résolues en temps.

Une telle expérience a été effectuée en créant les faisceaux de sonde et de pompe à partir d'un même faisceau laser au moyen d'une lame séparatrice. Le laser utilisé est le même laser Nd:YAG décrit dans le paragraphe précédent. Une absorption induite est clairement visible. Nous en avons mesuré la dynamique en faisant varier le retard de l'impulsion sonde. Le résultat est donné par la figure 26. Nous interprétons la dynamique obtenue par une

transition des excitons qui sont initialement créés dans les états singulets vers les états triplets. Nous en avons déterminé le rapport de deux des sections efficaces des états  $S_1$  et  $T_1$  ainsi qu'un  $\tau_{\text{sing-trip}}$  de 150 ps, temps qui détermine la transition des porteurs de  $S_1$  à  $T_1$ . Le résultat montre entre autre, que les états singulets sont à l'origine de l'absorption induite pour des impulsions plus brèves que  $\tau_{\text{sing-trip}}$ , tandis que les états triplets sont dominants pour des impulsions plus longues. Nous pouvons ainsi constater que les matrices sol-gel imprégnées au  $C_{60}$  jouent leur rôle de limiteur optique pour des impulsions de durée variable, mettant en jeu différentes populations excitées.

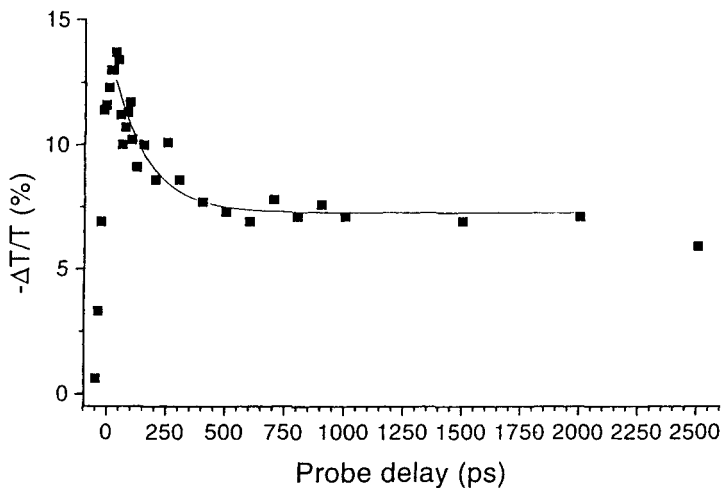


Figure 26 : Absorption induite résolue en temps.

Le même type d'expérience de pompe sonde a été largement appliqué à d'autres corps semi-conducteurs. Nous pouvons citer comme exemple nos travaux sur des films de  $CdZnTe$  sur substrat amorphe ou  $GaAs$  [34, 35], qui montrent une diminution de l'absorption à la place de l'absorption induite. Comme nous le verrons, ce comportement dû au caractère polycristallin de l'échantillon est très différent de celui du monocristal massif.

### 3.2 Déflexion et absorption induites dans $Cd_{1-x}Zn_xTe$

Un exemple d'un système qui montre de fortes non-linéarités optiques absorbatives et dispersives est le semi-conducteur ternaire  $Cd_{1-x}Zn_xTe$ . Les composés II-VI que sont le tellure de cadmium et de mercure ( $HgCdTe$ ) et  $CdTe$  avaient été très étudiés pour des applications comme les détecteurs infrarouges. Ces détecteurs étaient à base de multicouches épitaxiées de  $HgCdTe$  déposées sur des substrats de  $CdTe$ . Or, les substrats doivent être de très bonne qualité pour éviter la diffusion de défauts du substrat dans la couche et une détérioration des performances du détecteur. Les cristaux de  $CdTe$ , bien qu'ils soient étudiés depuis très longtemps n'ont pas fourni le substrat de très bonne qualité que l'on escomptait. Les premières épitaxies réalisées sur de tels substrats ont révélé une importante densité de défauts. La qualité cristalline de la couche était altérée par les dislocations résultant des différences de maille pourtant faibles dans le cas de  $HgCdTe/CdTe$ . En outre, la croissance de

CdTe était souvent très difficile à maîtriser et les défauts diffusaient dans la couche. L'adjonction de zinc au matériau binaire CdTe s'est avérée bénéfique pour la qualité du matériau obtenu.

L'idée d'introduire du zinc dans le tellure de cadmium est essentiellement venue de l'instabilité latente de la liaison du composé binaire. La substitution des atomes de Zn aux atomes de Cd permet ainsi d'améliorer la structure du matériau. Ceci a fait de  $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$  ( $x \sim 0,04$ ) un bon substrat ou une bonne couche intermédiaire entre le substrat et le détecteur lors de la croissance de ces couches. De plus, son paramètre de maille peut être ajusté avec celui de HgCdTe et son gap est suffisamment large pour éviter le confinement de porteurs minoritaires. On comprend mieux l'intérêt tout particulier porté à ce matériau ( $x = 0,04$ ).

L'étude des non-linéarités optiques (indice de réfraction et absorption induite) est tout d'abord discutée. Nous avons vu précédemment que les spectres de transmission et d'absorption de CdZnTe ne présentent aucune résonance, nous observons seulement un bord d'absorption de forme exponentielle pour tous les échantillons quelle que soit leur concentration en zinc et en cadmium. Nous avons choisi de mesurer les changements non linéaires induits dans une région d'énergie inférieure à celle du bord d'absorption fondamental du cristal. Nous rappelons que le bord d'absorption dont nous parlons dans la suite est la région spectrale où le matériau commence à absorber le rayonnement et ne correspond pas au bord de la transition bande-à-bande fondamentale. Le faisceau test est choisi spectralement large (continuum), de façon à pouvoir sonder toute cette zone spectrale. Le faisceau pompe excite toujours en résonance et est accordable, sa longueur d'onde varie dans la même région du spectre visible.

### 3.2.1 Etude de la variation d'absorption induite

À température ambiante, nous faisons varier l'énergie des photons du faisceau pompe [36, 37] entre 2,07 et 2,16 eV. Les spectres de changement d'absorption obtenus sont représentés sur l'encadré de la figure 27 pour différentes énergies de photon du faisceau d'excitation.

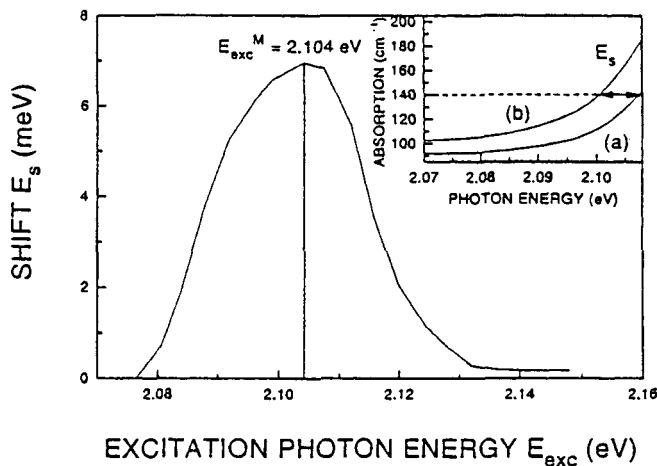


Figure 27 : Déplacement du bord d'absorption par rapport au bord linéaire en fonction de l'énergie de photon d'excitation.

À l'énergie de photon la plus faible (2,077 eV), l'absorption du faisceau pompe correspond à la courbe (a). On constate qu'il n'y a pas de changement d'absorption. Au fur et à mesure que l'on augmente l'énergie des photons du faisceau pompe, une absorption de plus en plus grande du rayonnement incident apparaît à des énergies inférieures à la largeur de la bande interdite. Nous constatons un déplacement spectral du bord d'absorption vers les faibles énergies si l'énergie des photons de la pompe augmente. Lorsque cette énergie est de 2,104 eV (courbe (b)), l'effet de déplacement du bord d'absorption vers les faibles énergies (vers le rouge) est maximal. Si l'on augmente encore l'énergie de photon de la pompe, il y a un retour vers les hautes énergies jusqu'au bord du régime linéaire. Pour une même valeur du coefficient d'absorption, nous traçons la différence d'énergie  $\Delta E$  entre les bords d'absorption de l'échantillon excité ou non, en fonction de l'énergie des photons d'excitation. La figure 27 montre ce spectre d'excitation. Nous faisons apparaître une bande centrée vers 2,104 eV avec une largeur à mi-hauteur de 27 meV (pour une concentration  $x = 0,87$ ). Lors de la mesure du spectre d'excitation de la luminescence à la température ambiante et sous forte excitation lumineuse, nous avons constaté que la luminescence est maximale lorsque l'énergie de photon du faisceau d'excitation coïncide avec cette bande. Il y a donc une étroite relation entre la luminescence et l'absorption induite.

Pendant ces mesures, nous avons constaté que les non-linéarités optiques de CdZnTe sont très fortes (environ vingt fois plus grandes que dans le matériau binaire [38]) et donnent lieu à une forte focalisation ou défocalisation du faisceau test transmis par l'échantillon. En conséquence, pour mesurer ces changements et leur dynamique, nous avons ajouté au laser "test" des miroirs supplémentaires pour constituer une deuxième cavité et travaillé avec un laser accordable à contre-réaction distribuée. Les deux sources ont une durée d'impulsion de l'ordre de 150 ps avec des fluctuations temporelles de l'ordre de 100 ps, ce qui donne lieu à une résolution globale d'environ 300 ps du système. De plus, nous avons remplacé le spectrographe de la figure 15 par une simple caméra à réseaux de diodes (analyseur multicanaux optiques) qui mesure le profil spatial du faisceau transmis par l'échantillon avec ou sans excitation par laser. Grâce à des diaphragmes, la distribution spatiale de l'intensité incidente peut être modifiée de façon à la rendre proche d'une forme gaussienne dans le plan de la lentille. Dans ce cas, l'amplitude du champ au point de focalisation sur l'échantillon est également de forme gaussienne. Si le faisceau pompe est de forme spatiale gaussienne, nous obtenons, grâce à la caméra, la répartition spatiale de son intensité de la forme suivante :

$$I = I_0 e^{-\frac{x^2}{w^2}} \quad (37)$$

Le faisceau pompe induit dans le matériau une variation d'indice complexe de forme gaussienne :

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} I \quad (38)$$

où  $n_0$  est l'indice linéaire et  $n_2$  l'indice non linéaire. C'est le paramètre que nous essayons de caractériser. Nous l'écrivons sous la forme :

$$n_2 = n'_2 + i n''_2 \quad (39)$$

$n'_2$  est lié essentiellement à l'indice de réfraction et  $n''_2$  est proportionnel à l'absorption.

Le trajet optique dans l'échantillon est dans ce cas  $(n_0 + \Delta n)d$ . Le faisceau test sonde une variation d'indice  $\Delta n$ . Le diamètre du faisceau test est quatre ou cinq fois plus petit que celui

du faisceau pompe sur l'échantillon. Deux cas peuvent se présenter :

Les deux faisceaux sont focalisés concentriquement sur l'échantillon (encadré de la figure 28), le faisceau test sonde une zone presque homogène autour de l'origine : le sommet de la gaussienne est supposé de forme parabolique :

$$\Delta n = \Delta n_0 \left( 1 - \frac{r^2}{w_p^2} \right) \quad (40)$$

Dans cette configuration, l'échantillon soumis à l'excitation du faisceau pompe se comporte comme une lentille. Le faisceau test subit une focalisation si  $\Delta n > 0$  ou une défocalisation si  $\Delta n < 0$ .

Une seconde configuration permet de déterminer la variation maximale de la partie réelle de l'indice de réfraction, lorsque les faisceaux ne sont pas concentriques sur l'échantillon. Dans cette disposition, le faisceau test sonde une zone spatiale où l'excitation n'est plus homogène et il est dévié. Le cristal se comporte comme un milieu d'épaisseur optique de profil gaussien. L'épaisseur optique du cristal s'écrit :

$$x = n d = x_0 e^{-\left(\frac{z}{Z}\right)^2} \quad (41)$$

La déviation maximale est obtenue lorsque la position de la tache du test par rapport à celle de la pompe est telle que  $\frac{dx}{dz}$  soit maximal. Cette situation correspond au point d'inflexion du profil gaussien au point  $z = \frac{Z}{\sqrt{2}}$ . Le développement au premier ordre de l'épaisseur optique donne, autour du point d'inflexion :

$$x = n_0 d + d \frac{dn}{dz} z \quad (42)$$

Cette variation linéaire provoque une déviation d'un faisceau d'un angle  $\Phi$  donné par la relation :

$$\tan(\Phi) = d \frac{dn}{dz} \quad (43)$$

Dans la mesure où l'angle  $\Phi$  est petit,

$$\Phi = \frac{dn}{dz} d \approx \frac{1}{Z} \sqrt{\frac{2}{e}} \Delta n d \quad (44)$$

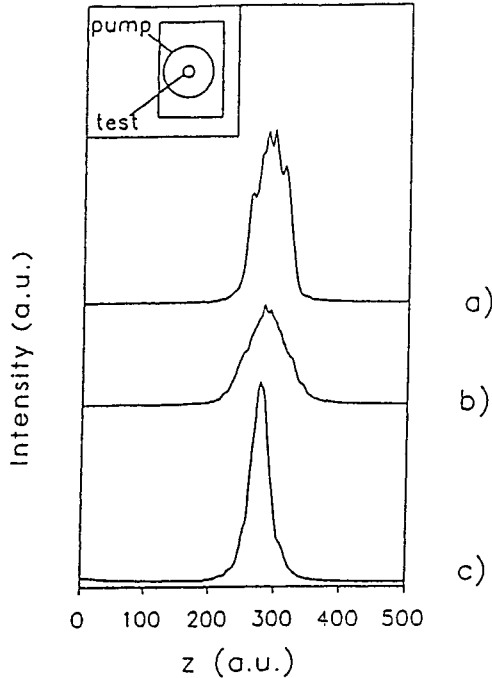
d'où

$$\Delta n = \Phi \frac{Z}{d} \sqrt{\frac{e}{2}} \quad (45)$$

La variation d'indice est proportionnelle à l'angle de déviation.

### 3.2.2 Dynamique de la variation de profil spatial

L'étude en fonction du temps de la variation du profil spatial d'un faisceau permet ainsi d'étudier la dynamique des processus entrant en jeu dans les non-linéarités optiques des propriétés. Des temps de déclin de l'ordre de la durée des impulsions ou supérieurs sont déterminés. L'intensité au niveau du cristal est de  $8 \text{ MW/cm}^2$  pour une durée d'impulsion de 150 ps. Cette excitation crée une densité de paires électron-trou de l'ordre de  $10^{17}/\text{cm}^3$ .



**Figure 28** : Modifications spatiales en configuration concentrique. (a) sans excitation, (b)  $\tau = 3,8 \text{ ns}$   
(c)  $\tau = 12,9 \text{ ns}$ .

La figure 28 montre l'évolution temporelle du profil spatial d'un faisceau test. La courbe (a) est la distribution spatiale du faisceau test transmis par l'échantillon sans excitation par le faisceau pompe. Les courbes (b) et (c) présentent les variations de profil à différents instants pour une excitation de  $8 \text{ MW/cm}^2$ . À partir des courbes obtenues, nous pouvons évaluer la variation de transmission différentielle  $\gamma$  égale à :

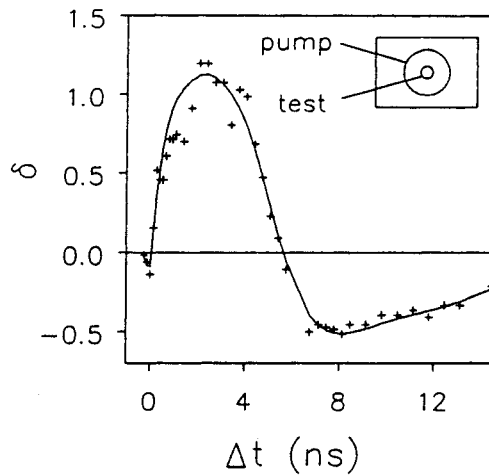
$$\gamma = \frac{I_t - I_{t+p}}{I_t} \quad (46)$$

où  $I_t$  ( $I_{t+p}$ ) est l'intensité sans (avec) excitation et la variation de la taille du faisceau :

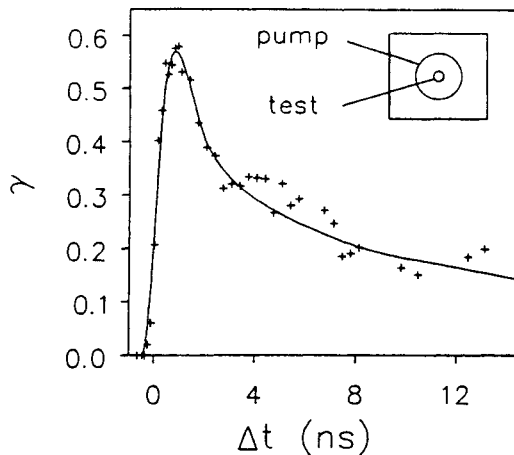
$$\delta = \frac{w_{t+p} - w_t}{w_t} \quad (47)$$

où  $w_t$  ( $w_{t+p}$ ) est la largeur du faisceau sans (avec) excitation. Ces quantités sont représentées

sur les figures 29 et 30 en fonction du retard ( $\Delta t$ ) du faisceau test par rapport au faisceau pompe. Dès que les deux impulsions commencent à se superposer (figure 29), une focalisation induite du faisceau test est observée après passage dans l'échantillon qui se comporte comme une lentille convergente. Cette réduction du diamètre du faisceau test est rapidement suivie (à partir de  $\tau \sim 0$ ) d'une défocalisation (lentille divergente) jusqu'à un retard de 5,6 ns, puis l'échantillon collimate à nouveau le faisceau. À des retards supérieurs à 30 ns, on constate que l'excitation n'a plus d'effet. La focalisation la plus forte a lieu à  $\tau = 8,0$  ns et l'importante défocalisation à  $\tau = 2,3$  ns.



**Figure 29** : Variation de la dimension du faisceau test en fonction du retard entre les impulsions des faisceaux d'excitation et de sonde  $\delta = \frac{\omega_{t+p} - \omega_t}{\omega_t}$ .

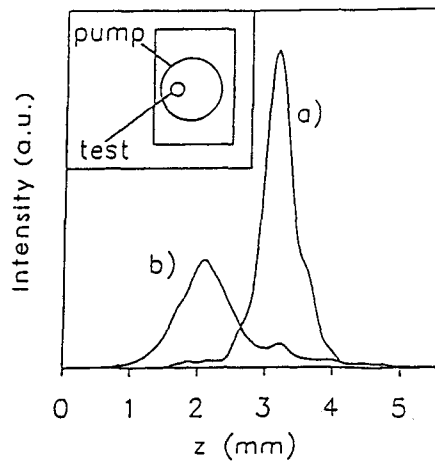


**Figure 30** : Transmission différentielle en fonction du retard entre les impulsions des faisceaux d'excitation et de sonde  $\gamma = \frac{I_t - I_{t+p}}{I_t}$ .



La dynamique de l'absorption est très différente. L'absorption induite augmente rapidement jusqu'à  $\tau = 0,9$  ns pour décroître ensuite exponentiellement comme le montre la figure 30, avec un temps de déclin de  $(9,0 \pm 0,5)$  ns. L'absorption induite observée disparaît si l'énergie des photons du faisceau pompe est inférieure à 2,08 eV. Même des excitations plus intenses n'induisent aucun effet dans le matériau à cette énergie de photon.

La figure 31 donne l'évolution temporelle du profil spatial du faisceau test induit par le faisceau pompe lorsque les deux faisceaux ne sont pas concentriques sur le cristal. La courbe (a) correspond à la transmission du faisceau test sans excitation. Sur la courbe (b), on observe une déflexion. De plus, une forte absorption induite est également visible.



**Figure 31** : Profil en configuration non concentrique. (a) sans excitation, (b)  $\tau = 430$  ps.

À partir du modèle de la déviation, nous déterminons des déviations de  $10^\circ$  du faisceau test pour l'échantillon contenant 87% de zinc pour des intensités de quelques centaines de  $\text{kW/cm}^2$  du faisceau pompe.

À partir de ces mesures, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \Delta n'_{eh} &= -4,4 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^{-3} \\ \Delta n''_{eh} &= 2,2 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^{-3} \end{aligned} \quad (48)$$

Les coefficients non linéaires sont donc très importants dans le tellure de cadmium et de zinc. Ceci permet d'induire de fortes non-linéarités à des intensités d'excitation faibles comparées à celles obtenues avec de nombreux semi-conducteurs.

Ces études ont été réalisées par des mesures de test-pompe. Il est évident que des changements tellement importants des  $n'$  donnent lieu à une très forte focalisation ou défocalisation du faisceau pompe et changent profondément les propriétés de propagation des faisceaux dans de tels matériaux (propagation de solitons, par exemple).

### 3.3 Z-scan

Une autre méthode pour déterminer simultanément la variation de la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction est la méthode de "Z-Scan" où l'échantillon est déplacé par rapport au foyer [39] comme le montre la figure 32.

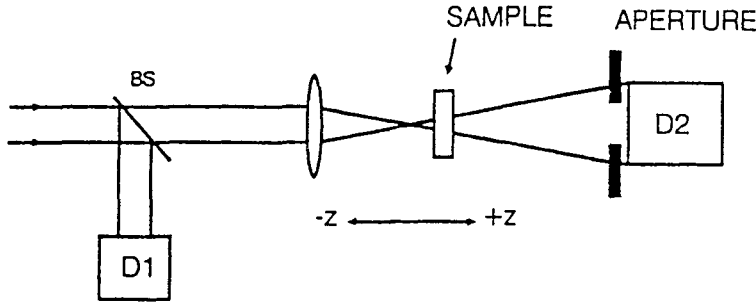


Figure 32 : Montage expérimental de Z-Scan [39].

Le faisceau dont la répartition d'intensité  $I(r)$  est de forme gaussienne, est focalisé par une lentille au point  $z = 0$  de son axe de propagation. Au-delà de ce point, à une dizaine de fois la distance de Rayleigh, une fraction du faisceau est extraite à l'aide d'un diaphragme de faible ouverture. Le Z-Scan consiste à mesurer avec la photodiode D2 la variation de l'intensité du faisceau transmis par le diaphragme en fonction de la position de l'échantillon de part et d'autre du point de focalisation ( $z = 0$ ) du faisceau. Si l'échantillon montre un effet Kerr,  $n$  est de la forme

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E(r)|^2 \quad (49)$$

où la distribution radiale du champ électrique  $|E(r)|^2$  est proportionnelle à  $I(r)$ . Si l'échantillon se trouve loin du foyer, l'intensité est faible et son indice de réfraction est spatialement constant. Plus proche du foyer,  $I$  devient important et l'échantillon joue le rôle d'une deuxième lentille qui focalise ou défocalise le faisceau, suivant le signe du coefficient de Kerr  $n_2$ . Ceci déplace le foyer du système lentille/échantillon, et à intensité incidente constante, (qui est mesurée après une lame séparatrice par le détecteur D1) le détecteur D2 reçoit une intensité plus ou moins grande. Cette intensité transmise par le diaphragme dépend du signe de  $n_2$  et de la position de l'échantillon par rapport à  $z = 0$ . Pour des faisceaux gaussiens l'intensité transmise par le diaphragme peut être calculée en fonction de  $z$  et le résultat est montré sur la figure 33 pour le cas où l'absorption non linéaire est négligeable. Les deux courbes sont obtenues pour  $n_2 < 0$  (trait pointillé) et  $n_2 > 0$  (trait plein).

$Z_0$  est la longueur de diffraction du faisceau qui dépend de la longueur d'onde et du diamètre de la tache de focalisation. Du fait de la focalisation ou de la défocalisation induite discutée précédemment, les courbes sont asymétriques par rapport à  $z = 0$ . Si l'échantillon montre aussi une absorption induite, on peut la déterminer par la même approche en ouvrant le diaphragme. Dans ce cas, le changement d'indice ne joue aucun rôle parce que D2 détecte toujours l'ensemble de la lumière transmise par l'échantillon. Celui-ci absorbe plus quand l'échantillon est au foyer de la lentille (à  $z = 0$ ) que quand il est en dehors du foyer.

Comme le montre la figure 34, l'intensité transmise est une fonction symétrique par rapport à  $z = 0$ . En effectuant des mesures avec (fig. 34b) et sans (fig. 34a) diaphragme, l'absorption induite et le changement d'indice peuvent être déterminés simultanément.

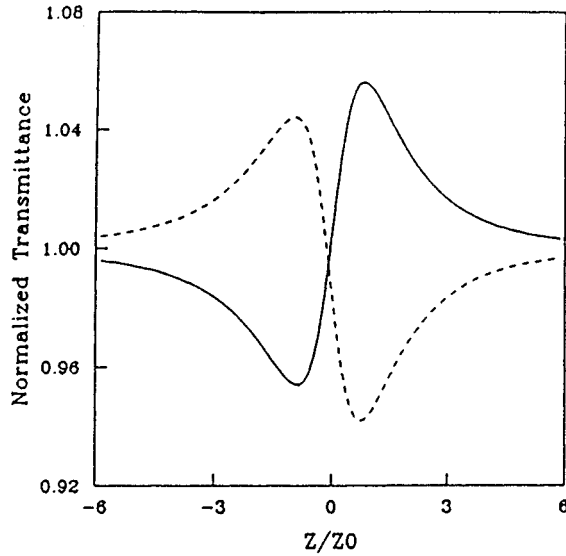


Figure 33 : Transmittance calculé en cas d'une non-linéarité dispersive de Kerr pour le cas  $n_2 < 0$  (trait pointillé) et  $n_2 > 0$  (trait plein).[39].

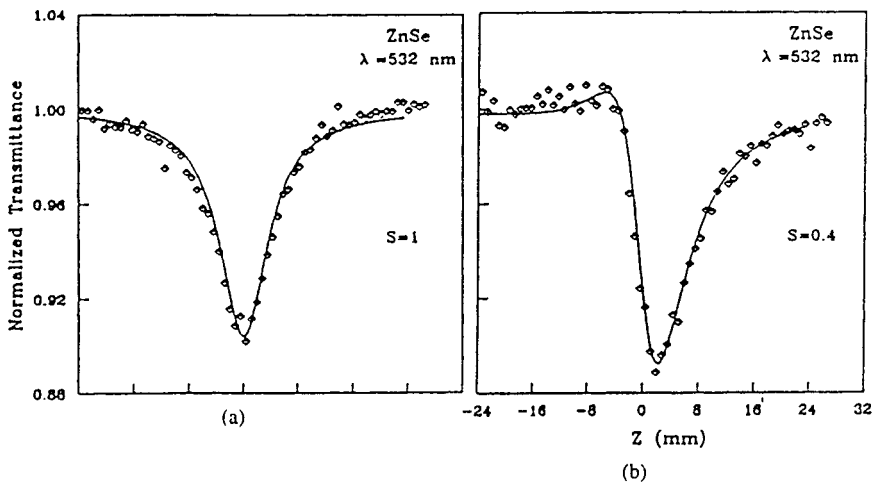


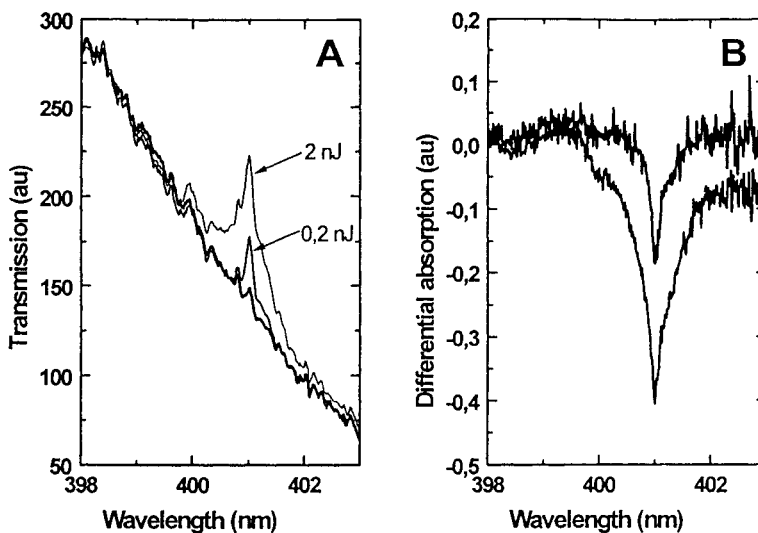
Figure 34 : Transmittance normalisée de ZnSe déterminée par la technique Z-Scan (a) sans et (b) avec diaphragme. Les traits pleins donnent le résultat pour le meilleur ajustement du calcul [39].

Bien que cette expérience paraisse relativement simple à réaliser du point de vue technique, elle nécessite néanmoins que quelques critères soient impérativement satisfaits : un échantillon homogène et un faisceau laser parfaitement gaussien, dont le profil ne change pas

d'une impulsion à l'autre. De plus l'analyse théorique des résultats impose que l'on travaille hors du domaine de la saturation des non-linéarités optiques.

### 3.4 Transmission induite (spectral *hole-burning*)

Selon la configuration électronique du matériau étudié, on peut obtenir une augmentation comme dans le cas du  $C_{60}$  ou une diminution de l'absorption par excitation laser. Si la raie d'absorption est élargie d'une manière inhomogène, une source spectralement fine peut saturer des transitions à l'intérieur de cette bande et on obtient donc une augmentation de la transmission d'un faisceau test [40] (spectral *hole-burning*). Si la largeur spectrale du faisceau pompe est plus fine que la largeur homogène de la transition, cette dernière peut être déterminée à partir de la largeur spectrale du "trou" (Fig. 35). Cette technique a été largement utilisée pour étudier les transitions dans des gaz mais on peut aussi l'appliquer à l'étude des nanocristallites dans des matrices transparentes [41]. Comme nous l'avons vu déjà, le confinement quantique des électrons et des trous dans des nanocristaux change leur énergie. À cause des fluctuations des dimensions des différents nanocristaux, les raies de transitions excitoniques sont élargies d'une manière inhomogène. Comme nous le verrons, la largeur homogène d'une transition est inversement proportionnelle au temps de cohérence de la quasi-particule qui peut ainsi être déterminé. Nous avons effectué de telles mesures avec des nanocristaux de CuBr dans une matrice de verre de borosilicate [42 – 46]. Nous utilisons pour ces mesures des sources impulsives nanosecondes et le montage présenté sur la figure 15.



**Figure 35** : Spectres de transmission (A) et d'absorption différentielle (B) transitoires de l'échantillon contenant les nanocristaux de 2,8 nm, à 2K, pour deux énergies du faisceau pompe accordé à 401 nm.

Les mesures que nous présentons ont été effectuées à différentes longueurs d'onde d'excitation et à basse température (2K) pour l'échantillon contenant les nanocristaux de

2,8 nm de rayon moyen. Le faisceau pompe est issu d'un laser à colorant (PBBO dissout dans du dioxane à  $0,4 \text{ g.l}^{-1}$ ) à cavité à incidence rasante et pompé par le laser à excimères (XeCl) nanoseconde. Nous disposons de cette façon d'une source laser très fine spectralement et accordable dans la raie d'absorption excitonique  $Z_{1,2}$  de l'échantillon étudié. Le faisceau test est l'émission collimatée d'une cuve contenant le même colorant, et pompée par le même laser à excimères. L'expérience consiste alors à résoudre spectralement les variations induites sur la transmission du test par la pompe.

### 3.4.1 Séparation des effets transitoires et permanents

Les spectres de *hole-burning* que nous avons mesurés ont un caractère permanent et transitoire : certains changements induits par la pompe dans la transmission du test perdurent plusieurs minutes après que l'échantillon ait été illuminé par le faisceau laser. Étant du même ordre de grandeur que les effets transitoires, les effets permanents en perturbent la mesure, et il s'avère nécessaire de pouvoir s'en affranchir expérimentalement. La transmission du test à travers l'échantillon est dans ce but mesurée à plusieurs reprises :

Sur une zone de l'échantillon non encore illuminée par le faisceau pompe, la transmission du test est successivement analysée spectralement dans les conditions suivantes :

- en absence du faisceau pompe.
- en présence du faisceau pompe. Comparé au spectre précédent, celui-ci permet de quantifier les effets cumulés des *hole-burning* permanent et transitoire.
- en absence du faisceau pompe. Cette mesure contient des informations relatives au *hole-burning* permanent.

Ainsi, en soustrayant le spectre de la troisième mesure à celui de la seconde, on obtient le spectre de *hole-burning* transitoire. Remarquons enfin qu'il est nécessaire de s'assurer que la diffusion de la pompe est suffisamment faible pour pouvoir être négligée.

### 3.4.2 Hole-burning transitoire

La figure 35 présente la transmission du faisceau test, pour deux énergies du faisceau pompe (2 et 0,2 nJ) par impulsion et sans faisceau pompe, ainsi que les spectres d'absorption différentielle correspondants. Ces spectres sont corrigés des effets du *hole-burning* permanent.

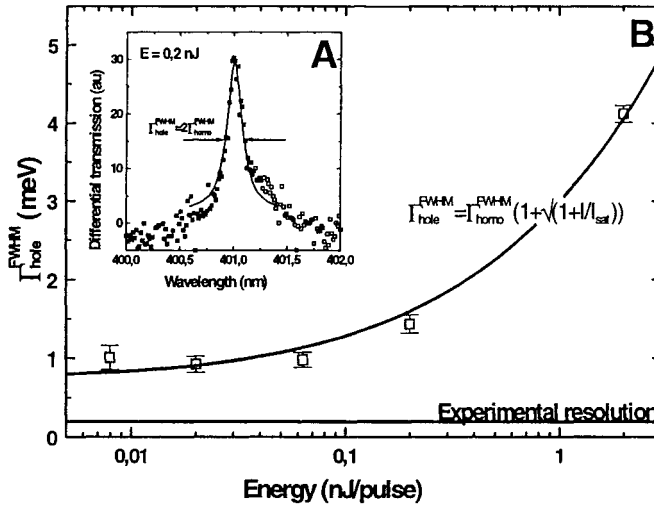
Les mesures ont été effectuées au deuxième ordre de diffraction du réseau du spectrographe. La résolution spectrale de notre chaîne de détection est alors de 0,2 meV : elle est insuffisante à résoudre le spectre du laser d'excitation dont la largeur à mi-hauteur est inférieure à 0,05 meV. C'est donc la détection et non l'excitation qui limite ici la résolution de l'expérience. Nous avons donc systématiquement soustrait 0,2 meV aux largeurs des "trous" creusés dans les spectres de transmission du test, afin de compenser l'élargissement des spectres du fait de la moindre résolution expérimentale.

Chaque "trou" creusé dans le spectre de transmission du test par la pompe peut alors être ajusté par une fonction de forme lorentzienne. La largeur à mi-hauteur  $\Gamma_{FWHM}^{Trous}$  de cette lorentzienne dépend de l'intensité d'excitation  $I$ , de la largeur de raie homogène  $\Gamma_{FWHM}^{hom o}$  et sature au-delà de l'intensité  $I_s$ :

$$\Gamma_{FWHM}^{Trous} = \Gamma_{FWHM}^{hom o} \left( 1 + \sqrt{1 + I/I_s} \right) \quad (50)$$

$$\text{ou } \frac{\Gamma_{FWHM}^{\text{hom o}}}{2\hbar} = \frac{1}{T_2} \quad (51)$$

Ainsi, à intensité nulle, le trou creusé dans les spectres d'absorption a pour largeur le double de la largeur de raie homogène. La figure 36 présente sa variation avec l'intensité d'excitation.



**Figure 36** : Ajustement par une lorentzienne d'un spectre d'absorption différentielle (A) et variation de la largeur de cette lorentzienne avec l'énergie d'excitation (B).

L'ajustement des résultats expérimentaux par la formule est représenté en trait plein sur la figure 36. Il donne la valeur  $\Gamma_{FWHM}^{\text{hom o}} = 0,38$  meV, soit un temps de déphasage  $T_2$  de 3,47 ps.

Les mêmes mesures de l'évolution des spectres de *hole-burning* avec l'intensité d'excitation ont été effectuées aux longueurs d'ondes de 395 et 405 nm dans la raie d'exciton  $Z_{12}$ . Les spectres mesurés sont ajustés par des lorentziennes. Ces résultats seront comparés à des mesures de  $T_2$  par d'autres méthodes (mélange de quatre ondes) plus loin.

### 3.4.3 Hole-burning permanent

Comme nous l'avons déjà mentionné, les spectres de *hole-burning* que nous avons mesurés ont un caractère transitoire et permanent. Dans la mesure du temps de déphasage la composante permanente de ces spectres a été expérimentalement éliminée. Elle est similaire au photonoirceissement et nous allons montrer qu'elle comporte des informations intéressantes et qu'en particulier elle donne une mesure de l'énergie des phonons optiques longitudinaux dans nos échantillons.

Le *hole-burning* permanent est un phénomène très étudié, notamment du fait de sa possible application dans des systèmes de stockage numérique très haute densité. Si l'inscription des données se fait avec plusieurs longueurs d'onde, il permet d'enregistrer plusieurs données en un même point physique dans la mémoire de stockage. Il est cependant nécessaire pour cela de disposer d'un matériau présentant un élargissement inhomogène très large.

Par l'expérience acquise avec des matériaux organiques pour cette spectroscopie, les mécanismes conduisant au *hole-burning* permanent sont habituellement classés en deux catégories : le *hole-burning* photochimique (traditionnellement noté *PHB*, acronyme de *photochemical hole-burning*) et le *hole-burning* photophysique (noté *NPHB*, pour *Non PHB*). Nous les décrivons ici.

Dans un mécanisme photochimique, les particules photoréactives (molécules, nanocristaux...) subissent des changements chimiques importants. L'absorption optique du produit de cette réaction chimique se fait généralement dans une région spectrale différente de celle des réactifs de départ. Le nouveau spectre d'absorption peut ainsi se trouver fortement déplacé vers les hautes ou vers les basses énergies.

Au contraire, dans le cas du *hole-burning* photophysique, c'est l'interaction entre les particules photoréactives et leur environnement (solvant, matrice) qui est modifiée par l'interaction avec la lumière. L'absorption du produit n'est que très peu décalée spectralement par rapport à celle des réactifs de départ et l'absorption intégrée sur tout le spectre est identique à celle des réactifs.

L'exploration sur une zone spectrale étendue d'un spectre de *hole-burning* permanent acquis sur l'échantillon de nanocristaux de 2,8 nm de rayon moyen montre que les changements de transmission à la position du laser exciteur sont superposés à une absorption induite présentant deux maxima centrés à environ 3,03 et 3,30 eV.

La séparation énergétique entre les différentes structures observées étant relativement importante, le mécanisme du *hole-burning* permanent dans nos échantillons est probablement de nature photochimique. Il est possible que, sous une forte intensité d'excitation, un porteur photo-excité (électron ou trou) soit éjecté en dehors du volume du nanocristal et se trouve piégé soit à l'interface semi-conducteur-matrice, soit dans la matrice elle-même. Le champ électrique statique créé par la séparation de l'électron et du trou peut être la cause d'un effet Stark électro-optique. Ce mécanisme réactionnel aboutit à un produit stable et permet d'expliquer le caractère permanent des spectres de *hole-burning* de nature photochimique. C'est le mécanisme généralement envisagé dans la littérature. Il devient de plus en plus probable lorsque la taille des nanocristaux diminue, la barrière de potentiel à l'interface entre le semi-conducteur et la matrice diminuant lorsque l'énergie de confinement augmente.

#### 4. PHOTOLUMINESCENCE ET AMPLIFICATION OPTIQUE DUES À DES PROCESSUS DE COLLISION

Dans le paragraphe 2 nous avons déjà introduit les biexcitons comme nouvelles quasi-particules [1, 29] qui peuvent être excitées par absorption à deux photons. Ils peuvent relaxer sur leur courbe de dispersion et se recombiner radiativement par exemple en une b.i.p. de caractère excitonique et une autre b.i.p. de caractère photonique. Cette dernière est observée comme émission de l'échantillon appelée "luminescence". Dans le cas des biexcitons, cette recombinaison a lieu avec une conservation d'énergie et de la quantité de mouvement (équation (33)). Dans la figure 8, les raies de luminescence N ont pu être identifiées à ce processus de recombinaison de biexcitons qui ont une faible énergie cinétique à cause de leur création par absorption résonante de deux photons.

Dans cet exemple, des b.i.p. de caractère excitonique sont créées en grande densité. Elles peuvent se coupler à deux et, par émission d'un phonon optique, créer de nouveau un biexciton qui possède une importante énergie cinétique. Ceci est dû au fait que l'énergie et le vecteur d'onde de l'ensemble des quasi-particules impliqués dans le processus doit être

conservé. Les biexcitons possèdent une masse effective deux fois plus grande que celle des excitons. Ils relaxent et se thermalisent en émettant des phonons acoustiques et se recombinent à nouveau en b.i.p. de caractère excitonique avec un grand vecteur d'onde et une b.i.p. de caractère photonique et de faible vecteur d'onde. Si l'on compare ce processus avec celui donnant lieu à la raie d'émission N, on remarque que l'énergie cinétique des biexcitons initiale est plus grande et leur distribution sur leur courbe de dispersion beaucoup plus large. Parce que excitons et biexcitons ont des masses effectives différentes, la raie d'émission que l'on obtient ainsi (nommée "M") est spectralement large. La forme spectrale de cette raie (forme "Boltzmann inverse") reflète la distribution en énergie des biexcitons et la densité d'état des bandes. Les recombinaisons radiatives des biexcitons en exciton longitudinal et b.i.p. de caractère photonique est aussi possible et des raies "M<sub>L</sub>" et "N<sub>L</sub>" sont ainsi observées. Parce que b.i.p. et excitons longitudinaux (figure 2) ont des énergies différentes, les énergies de photon des raies N<sub>L</sub> et N ainsi que des raies M<sub>L</sub> et M sont séparées de (E<sub>L</sub> - E<sub>0</sub>).

Si l'on excite les excitons en résonance, les raies N n'apparaissent pas parce que tous les biexcitons sont créés avec une grande énergie cinétique. Normalement, on identifie ces raies à partir de leur position spectrale si les énergies d'exciton et de biexciton sont connues (par exemple à partir des études d'absorption à deux photons et de Hyper-Raman dans le cas de CuCl). Leur intensité varie quadratiquement avec l'intensité d'excitation avant de montrer généralement une saturation. Leur spectre d'excitation montre des résonances sur l'énergie d'exciton E<sub>0</sub> et sur E<sub>B</sub>/2.

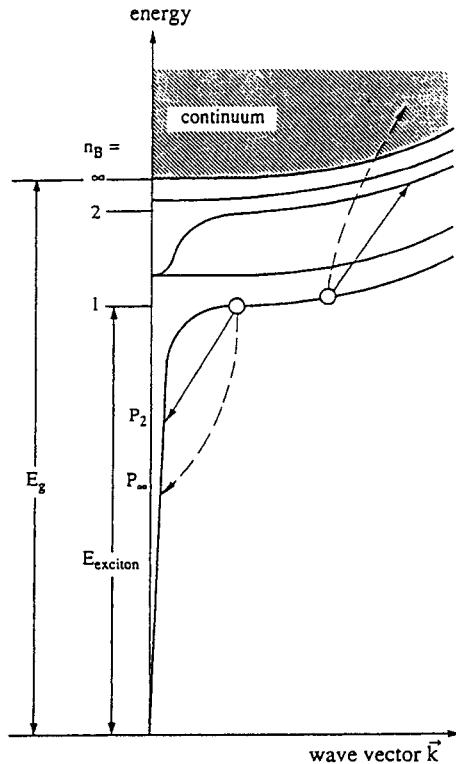


Figure 37 : Schéma de processus de collision exciton-exciton.



À part la recombinaison des biexcitons, d'autres raies apparaissent à forte intensité d'excitation. Des raies P, par exemple sont dues à des processus de collision exciton-exciton [47-51]. Comme le montre le processus  $P_2$  de la figure 37, en obéissant aux lois de conservation d'énergie et de la quantité de mouvement, un b.i.p. de caractère excitonique change son vecteur d'onde et devient photonique. Un deuxième exciton passe de l'état fondamental (nombre quantique principal  $n = 1$ ) à l'état  $n = 2$  de la série de Rydberg de l'exciton. À plus hautes intensités d'excitation, un processus similaire est observé où l'état final du deuxième exciton est un état du continuum électron-trou (l'exciton est dissocié). Cette dernière raie d'émission est habituellement appelée  $P_\infty$ . Parce que la forme et position spectrales de ces raies dépend de la distribution initiale des excitons, ils changent avec la température et l'intensité d'excitation.

Un processus similaire est schématisé sur la figure 38 pour la collision exciton-électron (ou exciton-trou) [52-54]. Dans ce cas, la distribution des excitons et des électrons qui sont créés optiquement intervient. À faible densité d'électrons, le processus donne lieu à une asymétrie de la raie de recombinaison excitonique qui se déplace vers de faibles énergies de photon quand on augmente l'intensité.

Lorsque des excitons-polaritons existent, le plasma d'électrons ou de trous est non dégénéré et ils obéissent à une distribution de Boltzmann. La forme spectrale de ces raies est comme dans le cas des raies P une forme " Boltzmann inversée " mais de largeurs différentes parce qu'électrons, trous et excitons ont des masses effectives différentes [52, 53].

Comme dernière raie de collision qui est souvent observée, je mentionne la raie de collision exciton piégé-électron (ou trou) [55, 56]. Ces raies prennent naissance aux basses énergies de photon des raies de recombinaison d'un exciton, piégé par un donneur ou accepteur. Contrairement aux autres processus, ils ne font pas intervenir la conservation de la quantité de mouvement parce que l'impureté a brisé l'invariance sous translation du système. Ces raies saturent rapidement à forte intensité d'excitation due à la petite densité des impuretés.

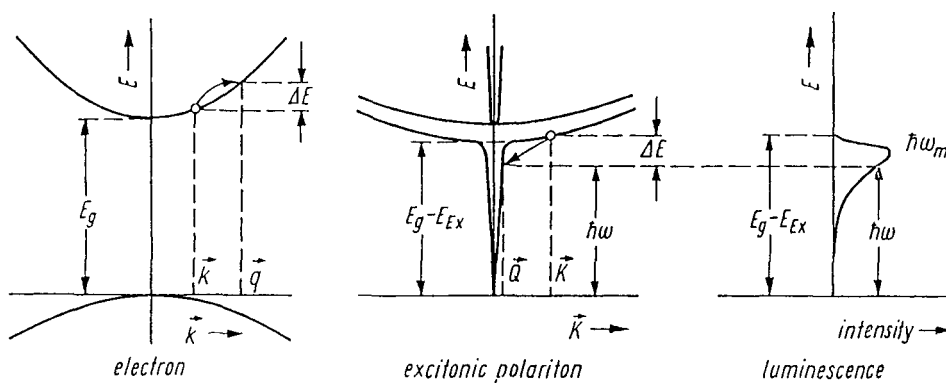


Figure 38 : Schéma de processus de collision exciton-électron.

Les processus de collision font intervenir au moins deux quasi-particules et trois états différents du système. Ils peuvent donc montrer de l'amplification optique ou du " gain ". Ceci est dû au fait que le coefficient d'absorption  $\alpha_{ij}^r$  pour des transitions résonantes entre un niveau  $j$  vers un niveau  $i$  est proportionnel à

$$\alpha_{ij}^r \propto W_{ij} \frac{\omega^2 \Gamma^2}{[(\omega_i - \omega_j)^2 - \omega^2]^2 + \Gamma^2 \omega^2} (n_j - n_i) \quad (52)$$

$W_{ij}$  est proportionnel à la probabilité de transition et  $n_j$  et  $n_i$  donnent les probabilités que les niveaux  $j$  et  $i$  sont occupés. Ceci est un résultat de la mécanique quantique et signifie que si la transition  $j \rightarrow i$  (absorption) est possible,  $i \rightarrow j$  (émission) est aussi possible et la probabilité qu'une transition a lieu doit être proportionnelle à la probabilité que l'état initial est occupé. En conséquence, si  $n_j < n_i$  et  $\alpha_{ij}^r < 0$ , on peut obtenir une émission stimulée et une amplification optique [40]. Pour la réponse linéaire, seulement l'état fondamental  $g$  (avec  $\omega_g = 0$ ) est occupé ( $n_g = 1$  pour  $T = 0$ ) et tous les  $n_i \equiv 0$ . Dans ce cas l'équation (52) se réduit à l'équation (21).

Considérons l'exemple où un laser excite en résonance des biexcitons. Dans ce cas, on a à faire à un système à trois niveaux, l'état fondamental ( $g$ ), l'exciton ( $j$ ) et le biexciton ( $i$ ). Parce que les biexcitons sont excités en résonance,  $n_i > n_j$  et  $((n_j - n_i) \text{ et } \alpha_{ij}^r) < 0$ . Si nous écrivons l'absorption totale sous la forme

$$\alpha = \alpha_{ij}^r + \tilde{\alpha} = -G \quad (53)$$

où  $\tilde{\alpha}$  représente des pertes supplémentaires non résonantes, et  $\alpha = -G$  peut devenir  $< 0$ . Dans ce cas, d'après la loi de Beer-Lambert, l'intensité transmise  $I_t$  par un échantillon de longueur  $L$  est donnée par

$$I_t = I_0 e^{-\alpha L}$$

où  $I_0$  est l'intensité incidente.  $I_t$  augmente donc d'une manière exponentielle et nous obtenons une amplification optique [47, 57]. L'amplification optique peut par exemple être observée dans des mesures de luminescence ou de diffusion Hyper Raman en transmission.

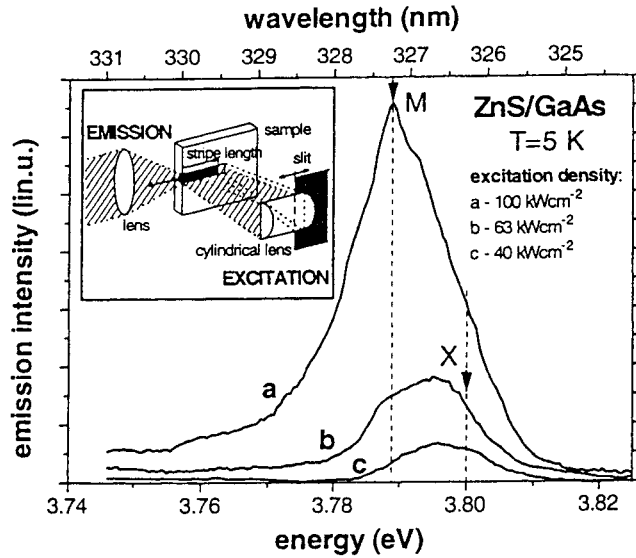
Une autre configuration [58] a été développée par Shaklee (encadré dans la figure 39) : l'excitation à longueur de ligne variable (variable stripe length). Dans ce cas, dans la partie centrale homogène d'un faisceau, une partie rectangulaire est sélectionnée par deux fentes. Une lentille cylindrique focalise le faisceau sous forme d'un trait de typiquement  $30 \mu\text{m} \times 2000 \mu\text{m}$  sur le bord de l'échantillon. Un masque mobile permet de faire varier la longueur  $L$  du trait. Pendant l'excitation, si l'émission spontanée se propage dans la direction longue  $z$  du trait, elle est amplifiée. Comme le montre la figure 39, son intensité dépend de l'intensité d'excitation.

L'équation différentielle pour l'intensité  $I$  d'émission est donnée par

$$\frac{dI}{dz} = IG + I_{sp} \quad (54)$$

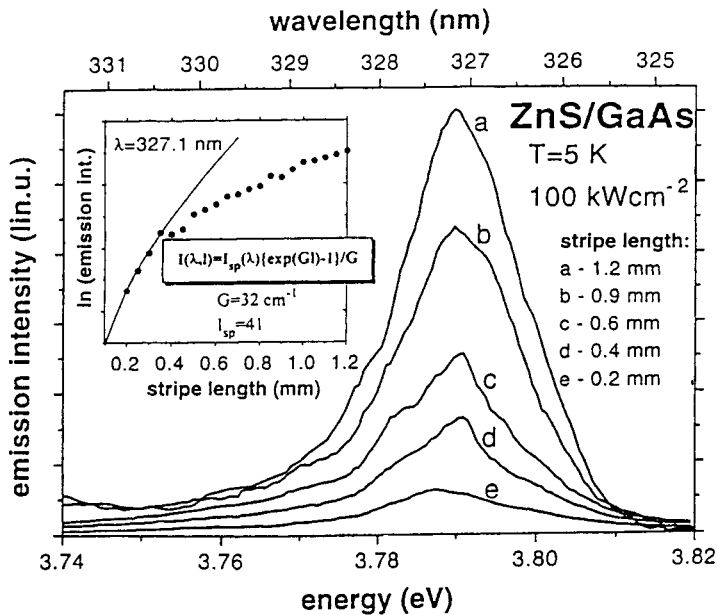
où  $I_{sp}$  est l'intensité spontanée par unité de longueur. L'équation (54) a comme solution

$$I(L) = I_{sp} \frac{e^{GL} - 1}{G} \quad (55)$$



**Figure 39 :** Spectre d'émission d'un film de ZnS excité par un laser à XeCl (à 308 nm) à  $L = 1,2$  mm et à des intensités différentes. X et M indiquent les positions spectrales des raies d'émission des excitons libres et des biexcitons. L'encadré montre le schéma de montage de la méthode de longueur de trait variable.

L'émission est normalement analysée par un spectromètre [59 – 61] et le coefficient de gain  $G$  peut être déterminé en mesurant l'intensité émise pour des différentes longueurs  $L$  et en analysant (figure 40) le résultat avec l'équation (55).



**Figure 40 :** Spectre d'émission d'un film de ZnS excité avec une intensité de 100 kW/cm<sup>2</sup> à des longueurs de trait variable. L'encadré montre la détermination du gain  $G$  (équation 51).

Cette méthode est très élégante parce qu'elle permet de déterminer  $G$  et la longueur à partir de laquelle l'émission spontanée amplifiée sature sans que l'on soit obligé de construire une cavité autour de l'échantillon ou de l'utiliser comme milieu actif d'un amplificateur optique.

## 5. RÉSEAUX INDUITS PAR LASER

Nous avons vu dans ces derniers chapitres que l'excitation d'un échantillon par un champ électromagnétique peut provoquer une réponse non linéaire. Ainsi, son indice de réfraction et/ou son coefficient d'absorption sont modifiés. Cet effet est utilisé dans les expériences de réseaux induits par laser [62] ou, plus généralement, dans les expériences de mélange à 4 ondes [63, 64]. Pour expliquer le schéma général de cette technique, nous considérons dans un premier temps une impulsion lumineuse cohérente qui traverse un séparateur de faisceaux et est ainsi divisée en deux faisceaux  $P_1$  et  $P_2$  de vecteurs d'ondes  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  d'intensité  $I_1$  et  $I_2$  et de même longueur d'onde  $\lambda_p$ . Les impulsions sont focalisées sur un échantillon. Lorsqu'ils sont en coïncidence temporelle et spatiale à la surface de l'échantillon, ils y forment une figure d'interférences qui n'est autre qu'une modulation spatiale périodique de l'intensité lumineuse dans le milieu. Cette modulation est maximale si  $I_1 = I_2$  et dans ce cas l'intensité totale  $I$  varie périodiquement entre 0 et  $4I_1$ . À cause de la non-linéarité, le milieu présente également une variation spatiale périodique de son indice complexe de réfraction et il se comporte comme un réseau de diffraction. Le vecteur  $\vec{Q}$  du réseau et son pas  $\Lambda$  sont fonctions de l'angle  $\theta$  que font entre elles les deux impulsions incidentes :

$$\vec{Q} = \pm(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \quad (\text{par convention, on choisit dans la suite } \vec{Q} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1) \quad (56)$$

$$\Lambda = \frac{2\pi}{|\vec{Q}|} = \frac{\lambda_p}{2 \sin(\theta/2)} \approx \frac{\lambda_p}{\theta} \quad \text{si } \theta \ll 1 \quad (57)$$

Le réseau est induit par une variation de l'indice complexe de réfraction. Si cette variation est due à une variation de l'indice réel, on parle de réseau de phase. Au contraire, on parle de réseau d'amplitude lorsqu'elle est due à une variation de l'absorption. La présence de l'un de ces deux cas est déterminée par l'énergie de photons excitateurs :

- s'ils sont en résonance avec une transition électronique du milieu, l'absorption varie fortement et l'indice réel très peu : on est dans le cas d'un réseau d'amplitude.
- s'ils sont décalés par rapport à la résonance, la variation d'indice, complexe est essentiellement due à une variation d'indice réel : c'est un réseau de phase.

Du fait de la variation périodique spatiale, le vecteur d'onde d'une quasi-particule n'est défini qu'à  $m\vec{Q}$  près où  $m$  est un entier. Ainsi, lorsqu'un faisceau  $P_3$  de vecteur d'onde  $\vec{k}_3$  et d'intensité  $I_3$  teste le réseau de diffraction de vecteur  $\vec{Q}$ , il s'y diffracte, à l'ordre  $m$  dans la direction  $\vec{k}_4$  donnée par la relation :

$$\vec{k}_4 = \vec{k}_3 + m\vec{Q} \quad (58)$$

Nous verrons que  $\vec{k}_4$  doit de préférence être le vecteur d'onde caractérisant un état propagatoire. La relation (58) est connue comme "condition de Bragg" en physique du solide ou "accord de phase" en optique non linéaire. De plus la conservation d'énergie (équation. 33) impose une condition supplémentaire sur les modules des vecteurs d'ondes à cause de la relation de dispersion (équations. 17 et 33).

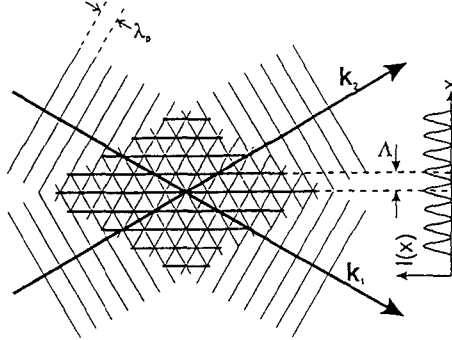


Figure 41 : Inscription d'un réseau de diffraction dans le volume d'un échantillon.

Comme le montre la figure 41, les franges d'interférence sont créées dans le volume de l'échantillon. Pour une incidence normale [62] d'un faisceau test, diffracté sur ce réseau, il existe un déphasage  $\varphi$  entre une onde partielle diffractée dans l'angle  $\phi_1$  à l'entrée de l'échantillon et celle diffractée dans la même direction après que le test s'est propagé de la longueur  $d$  dans le milieu. Le déphasage est donné par

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_t} n \cdot \Delta l \quad (59)$$

où  $\lambda_t/n$  est la longueur d'onde du faisceau test dans le matériau d'indice  $n$  et  $\Delta l$  la différence des deux chemins. On obtient alors

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_t} n \left( \frac{d}{\cos(\phi_1)} - d \right) \quad (60)$$

Si l'on considère  $d$  comme épaisseur de l'échantillon, les ondes partielles sont émises dans la direction  $\alpha$  telle que

$$\sin \alpha / \sin \phi_1 = n \quad (61)$$

et interfèrent constructivement à l'infini si  $\sin \alpha = m \cdot \lambda_t / \Lambda$  où  $m$  est un entier. Si nous considérons  $m = 1$ , l'équation (61) donne l'angle pour une interférence constructive :

$$\sin \phi_1 = \frac{\lambda_t}{n \Lambda} \quad (62)$$

si  $\phi_1 \ll 1$  est petit, nous pouvons développer les équations (60) et (62) et obtenons

$$\varphi = \frac{\pi \lambda_t d}{\Lambda^2 n} \quad (63)$$

Pour que ces interférences soient constructives, il faut que  $\varphi \approx 0$  donc il faut inscrire des réseaux de grand pas sur des échantillons aussi fins que possible. Le déphasage est alors minimale, et la condition  $\varphi \ll 1$  est appelée condition des réseaux fins, ou encore condition de Raman-Nath.

Si  $\varphi > \sim 1$ , le réseau est appelé “ épais ” ou “ réseau de volume ”.

Lorsque ce déphasage est important, les différentes ondes diffractées interfèrent de façon destructive : aucun signal ne peut être observé. Une interférence constructive, ou le déphasage  $\varphi = 0$  pour toutes les ondes partielles sortant de l'échantillon, peut être obtenue dans le cas où l'angle d'incidence  $\beta$  du test est choisi tel que  $\beta = -\alpha$ . Dans cette configuration symétrique, tous les chemins optiques des différentes ondes partielles diffractées sont égaux et ils interfèrent d'une manière constructive

Le mélange à quatre ondes peut de cette façon être compris dans l'interaction de quatre faisceaux de vecteurs d'onde  $\vec{k}_i$  ( $i = 1, 2, 3$  ou  $4$ ) : les deux premiers inscrivent un réseau de diffraction sur lequel un troisième se diffracte pour générer le quatrième.

Considérons  $\varphi = 0$  dans le cas limite où les faisceaux pompes ne sont pas atténués. Si nous considérons que des processus de troisième ordre, un faisceau  $P_4$  est généré qui est caractérisé par le vecteur d'onde

$$\vec{k}_4 = \vec{k}_2 - \vec{k}_1 + \vec{k}_3 + \Delta\vec{K} \quad (64)$$

$\vec{k}_4$  doit être un état propagatoire vérifiant la relation de dispersion. Dans l'équation (60)  $\Delta\vec{K}$  est le désaccord de phase qui peut apparaître parce que la conservation d'énergie des quatre quasi-particules doit être strictement respectée. Son intensité  $I_4$  est de la forme

$$I_4 \propto |\chi^{(3)}|^2 I_1 I_2 I_3 d^2 \left( \frac{\sin(\Delta K d / 2)}{\Delta K d / 2} \right)^2 \quad (65)$$

Considérons le cas où il y a “ accord de phase ” ( $\Delta K d = 0$ ) qui donne lieu à la plus grande intensité de diffraction. L'efficacité de diffraction est définie par

$$\eta = \frac{I_4}{I_3} \quad (66)$$

où  $I_3$  est l'intensité du faisceau diffracté sur le réseau créé par les faisceaux “ 1 ” et “ 2 ”.  $\eta$  peut être calculé analytiquement dans les approximations discutées plus haut.

Une modulation spatiale de l'indice de réfraction complexe  $\tilde{n} = n + \Delta\tilde{n}(x)$  mène à une amplitude de la transmittance  $t(x)$  de la forme :

$$t(x) = t_0 e^{i\phi \cos(2\pi x/\Lambda)} \quad \text{avec} \quad \phi = \frac{2\pi \Delta\tilde{n} d}{\lambda} \quad (67)$$

Si  $A_i$  est l'amplitude de l'onde incidente, l'amplitude  $A_m$  de l'onde diffractée à l'ordre  $m$  est donnée par :

$$A_m = \frac{A_i}{\Lambda} \int_0^\Lambda e^{i[\phi \cos(2\pi x/\Lambda) + 2\pi m x/\Lambda]} dx \quad (68)$$

En faisant le changement de variables  $t = 2\pi x/\Lambda$ , il vient :

$$A_m = \frac{A_i}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{i\phi \cos t} \cos(mt) dt$$

$$= A_i i^m J_m(\phi)$$
(69)

où  $J_m$  est la fonction de Bessel d'ordre  $m$ . Pour  $\phi \ll 1$ ,

$$J_0(\phi) \approx 1$$

$$J_1(\phi) = J_{-1}(\phi) \approx \phi/2$$
(70)

Parce que  $\phi \ll 1$ , l'efficacité de diffraction au premier ordre  $\eta$  vaut alors :

$$\eta = \frac{I_s}{I_T} = \left| \frac{A_1}{A_i} \right|^2 = \left| \frac{\pi \Delta \tilde{n} d}{\lambda} \right|^2$$
(71)

soit avec  $\Delta \tilde{n} = \Delta n + i \Delta \xi$  :

$$\eta = \left| \frac{\pi \Delta n d}{\lambda} \right|^2 + \left| \frac{\pi \Delta \xi d}{\lambda} \right|^2$$
(72)

Pour une non-linéarité de type Kerr :

$$\tilde{n}_2 I = \Delta \tilde{n} = \frac{\chi^{(3)}}{\epsilon_0 n^2 c} \sqrt{I_1 I_2}$$
(73)

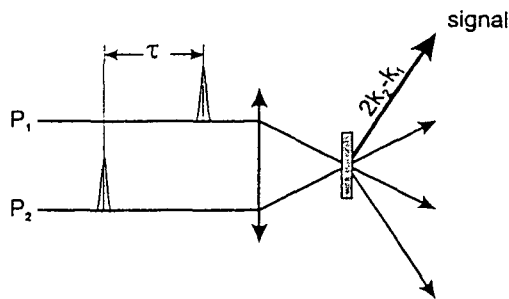
et nous obtenons :

$$\eta = \frac{I_4}{I_3} = \frac{\pi^2 d^2 |\chi^{(3)}|^2}{\lambda^2 \epsilon_0^2 c^2 n^4} I_1 I_2$$
(74)

À partir des équations (67) et (73) on peut donc déterminer  $\chi^{(3)}$  en mesurant les intensités des quatre faisceaux.

### 5.1 Réseaux épais

Si la longueur d'interaction  $d$  est grande,  $\Delta K$  doit être approximativement nul et la condition de Bragg s'impose. La configuration la plus simple [65] à deux faisceaux, est montrée sur la figure 42



**Figure 42** : Expérience de mélange à quatre ondes dans une configuration à deux faisceaux, destinée à la mesure du temps de déphasage.

Deux impulsions, appelées  $P_1$  et  $P_2$  émergent de la même source sont focalisées sur un échantillon (des nanocristallites de CuCl ici). Si  $I_1 \ll I_2$ , à coïncidence temporelle ( $\tau = 0$ ), les deux impulsions créent, comme décrit plus haut, une modulation spatiale de l'indice de réfraction et la pompe  $P_2$  se diffracte dans la direction de  $P_1$ . La condition de Bragg est remplie et, s'il l'on compare avec la figure 41, la configuration est symétrique. Les ondes partielles diffractées sont donc toutes en phase et interfèrent d'une manière constructive, dans la direction de  $P_1$ . On obtient donc un transfert d'intensité du faisceau  $P_2$  vers  $P_1$ . Si l'on augmente l'intensité de  $P_1$ , l'intensité transférée diminue et pour  $I_1 = I_2$  le faisceau " $P_1$ " transfère autant d'intensité vers " $P_2$ " comme " $P_2$ " vers " $P_1$ ".

On voit très bien (figure 42) qu'également d'autres faisceaux sont générés dans les directions  $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$  et  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Ils ne remplissent pas, par contre, la condition d'accord de phase et leur intensité est négligeable dans le cas des réseaux épais. Le vecteur d'onde de l'état propagatoire  $\vec{k}_4 = 2\vec{k}_2 - \vec{k}_1 + \Delta\vec{K}$  fait intervenir un  $\Delta\vec{K} \neq 0$  dans le cas dégénéré parce que  $|\vec{k}_4| = |\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$ . Si l'on écrit la polarisation d'ordre trois  $P_{nl}$  pour la configuration de transfert d'énergie, et que l'on considère les termes se propageant dans la direction de  $\vec{k}_1$ , elle prend la forme :

$$P_{nl} = A(E_2 E_1^*) E_2 + B(E_2 E_2) E_1^* + C I_{P_2} E_1^* \quad (75)$$

où les grandeurs  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont proportionnelles à  $\chi^{(3)}$ . Le premier terme correspond à la création du réseau avec le vecteur du réseau  $\vec{k}_r = \pm(\vec{k}_2 - \vec{k}_1)$ . Sur celui-ci un photon du faisceau  $P_2$  se diffracte, donnant lieu au transfert d'énergie. Le deuxième terme décrit une absorption à deux photons de  $P_2$ , suivie d'une recombinaison induite par le champ  $E_1$ . D'après l'équation (58), elle se propage également dans la direction  $\vec{k}_1$  [65]. Ce terme est important dans CuCl lorsque les biexcitons sont excités d'une manière résonante par  $E_2$ . Les deux termes décrivent des processus cohérents. Le troisième, incohérent, décrit le fait que l'impulsion  $P_2$  peut saturer l'absorption linéaire des nanocristaux (comme nous l'avons discuté dans le chapitre du "hole burning") et augmente ainsi la transmission du faisceau test.

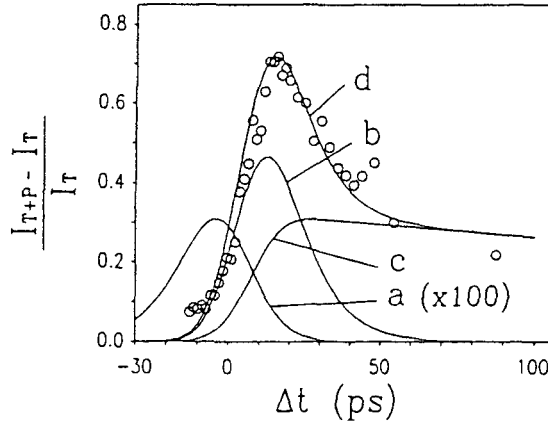
Si l'on retarde une impulsion par rapport à l'autre, on peut observer la dynamique de ces processus. Le résultat est donné sur la figure 43. La courbe "a" donne la contribution de la diffraction de la pompe sur le réseau, "b" la recombinaison induite, et "c" la saturation de l'absorption. "d" est la somme des trois processus.

Avec accord de phase, en gardant la configuration symétrique, on peut diffracter une troisième impulsion  $P_3$  sur le réseau généré par  $P_1$  et  $P_2$ . Parce que l'on mesure l'émission dans une direction (qu'on filtre spatialement par un diaphragme) suivant laquelle, en absence de  $P_1$ ,  $P_2$  ou  $P_3$ , on ne détecte pas de lumière, le terme de saturation d'absorption n'a pas d'importance. De plus, dans cette configuration, on a un très bon rapport signal/bruit. Pour cette raison, habituellement,  $P_3$  n'est pas dans le plan donné par  $P_1$  et  $P_2$ , ce qui implique que la direction de  $P_4$  est bien différente de celle des trois autres faisceaux.

Une autre configuration souvent utilisée est celle de la "conjugaison de phase" [66]. Dans ce cas, deux faisceaux dégénérés se propageant en sens inverse excitent un échantillon avec des surfaces planes et parallèles. Une troisième y est focalisée avec un certain angle. Différents réseaux sont ainsi créés et les photons générés se propagent dans la direction inverse du troisième faisceau. Ce faisceau signal peut être analysé après une lame séparatrice. En changeant les polarisations des différents faisceaux, les différents éléments du tenseur de la



susceptibilité peuvent être étudiés séparément. En retardant l'impulsion " 3 " par rapport aux deux autres on obtient des informations sur la dynamique de la non-linéarité [66].



**Figure 43 :** Différence des intensités des impulsions " test " transmises normalisée avec ou sans excitation par la pompe en fonction du retard  $\Delta t$  entre les deux impulsions (a, b, c, d donnant les contributions de différents termes - voir texte).

## 5.2 Réseaux fins, expériences à deux faisceaux résolus en temps

Considérons le cas où  $\Delta K d \ll 1$  et  $\varphi \ll 1$  (équation 63).

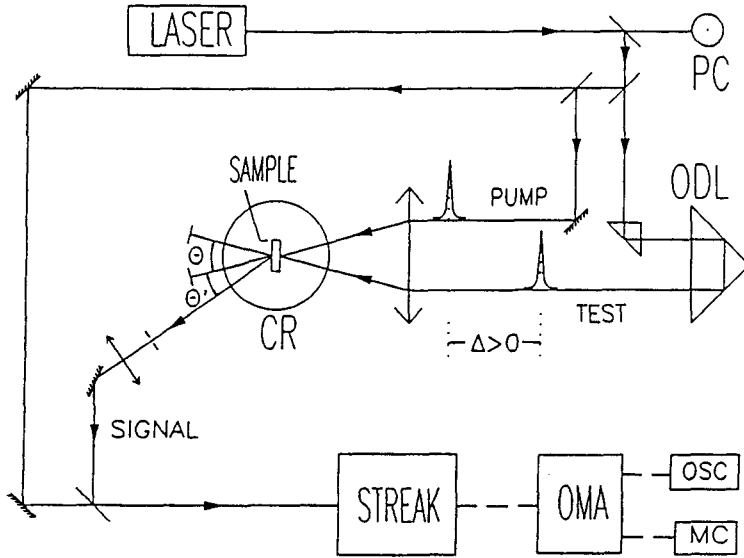
Le premier processus qui perturbe la vie d'une paire électron-trou photocréée est la perte de la cohérence de la polarisation associée au champ exciteur, décrite par le temps caractéristique  $T_2$ . Elle peut être déterminée en utilisant des impulsions cohérentes et de courtes durées excitant le matériau. Si l'on se limite aux effets non linéaires d'ordre 3, les termes cohérents sont donnés par les deux premiers termes de l'équation (75). Si les impulsions sont retardées l'une par rapport à l'autre comme indiqué figure 42, le début de la première impulsion avec son champ  $E_1$  crée une polarisation  $P_1$  qui est cohérente avec  $E_1$ . Après passage de cette impulsion, la polarisation décroît en amplitude et se déphase avec le temps caractéristique  $T_2$ . Quand la deuxième impulsion arrive, son champ  $E_2$  ne peut interférer qu'avec la partie de la polarisation créée par la première impulsion qui a gardé sa cohérence. Un réseau est créé dont la modulation dépend du retard entre les deux impulsions. Sur ce réseau, la deuxième impulsion s'autodiffraite et donne lieu à un signal émis dans la direction  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$  (figure 42). Parce que  $\Delta K d \ll 1$  ce signal est encore important, même si l'accord de phase n'est pas réalisé. Le signal est grand lorsque l'impulsion " 1 " arrive avant " 2 " sur l'échantillon. L'intensité du signal  $I_s$  (free induction decay) décroît selon

$$I_s \propto I_0 e^{-2t/T_2} \quad (76)$$

où  $T_2$  représente le temps de cohérence de la polarisation, induit par  $P_1$ .

Le deuxième terme dans l'équation 75 est de qualité différente : il décrit l'absorption à deux photons de l'impulsion " 2 ". Si, comme par exemple dans CuCl, des biexcitons y sont

créés dans un état caractérisé par le vecteur d'onde  $\vec{K} = 2\vec{k}_2$ , le champ "1", arrivant plus tard, peut induire leurs recombinaisons. Ceci donne lieu à un signal, également émis dans la direction  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Mais dans ce cas, le signal est grand lorsque l'impulsion "2" arrive avant "1". Il montre aussi une décroissance exponentielle avec une constante de temps  $\tau_3$ . Dans ce cas,  $\tau_3$  signifie le temps de cohérence de l'état du biexciton. Nous avons étudié ces deux processus dans CuCl [67] résolu en temps. La figure 44 montre le montage.



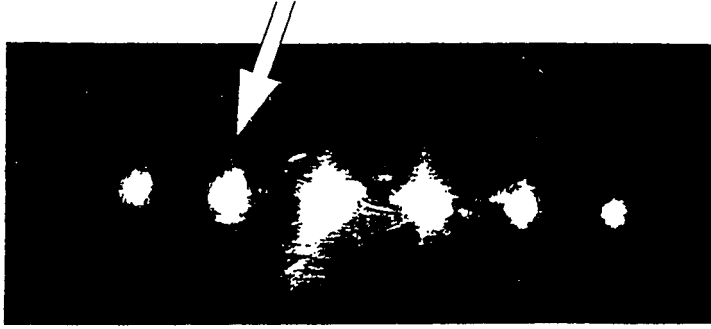
**Figure 44 :** Configuration expérimentale "en avant", ou par "transmission" à deux faisceaux provenant de la même source laser, utilisée pour la réalisation du MDQO. **Laser :** laser à colorant picoseconde accordable ; **PC :** photodiode pour réaliser la fenêtre d'énergie ; **ODL :** ligne à retard optique variable ; **CR :** cryostat ; **Streak :** caméra à balayage de fente ; **OMA :** analyseur optique multicanal ; **OSC :** oscilloscope ; **MC :** micro-ordinateur.

Dans une configuration par transmission et dégénérée, deux faisceaux mono-impulsionnels de même fréquence excitent des échantillons minces de CuCl de 20  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dans un cryostat à 4 K.

Le faisceau laser est séparé en deux parties : la plus intense est appelée le faisceau "pompe" et l'autre le "test". Leur rapport d'intensité est fixe, variant entre 8 et 4 selon les séries expérimentales.

L'impulsion du faisceau test peut être retardée ou avancée par rapport à celle du faisceau pompe, grâce à un retard optique variable commandé par un moteur pas-à-pas. Le signal créé est observé à travers l'échantillon dans une direction bien définie, donnée par  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Ce faisceau est tout d'abord diaphragmé, puis rendu parallèle. Ensuite, après un deuxième diaphragme, il est focalisé sur la fente d'entrée du spectromètre ou de la caméra à balayage de fente (streak camera). Afin de réduire le "jitter" inhérent à notre système de détection, nous enregistrons, en même temps que le signal, une fraction de l'impulsion pompe (cf. figure 44). Celle-ci sert à définir l'origine temporelle des événements.

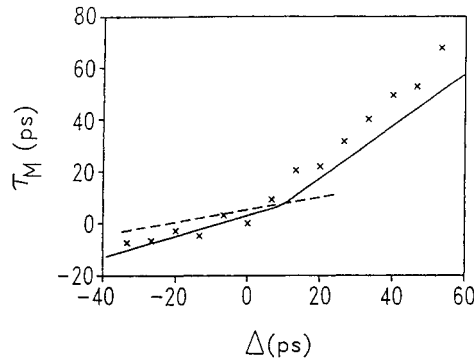
L'utilisation d'une configuration par transmission nous impose d'étudier des échantillons de faible épaisseur, de manière à minimiser les effets de l'absorption linéaire. Sur la figure 45 sont représentés les signaux lumineux jusqu'au deuxième ordre, obtenus dans le processus de diffusion cohérente quand on excite le cristal mince de CuCl à la résonance biexcitonique ( $\hbar\omega_p = E_{bi}/2 = \hbar\omega_i$ ). Hors résonance, des signaux jusqu'à l'ordre  $\pm 5$  peuvent être observés. À la résonance biexcitonique, due à une très forte absorption non linéaire, le nombre d'ordres observables décroît.



**Figure 45 :** Figure de diffraction obtenue dans le mélange dégénéré à quatre ondes réalisé avec deux faisceaux dans la configuration "en avant". La flèche sur la photographie indique le signal diffracté à l'ordre +1 étudié par la suite.

L'évolution temporelle du signal est analysée en enregistrant sa position temporelle par rapport au faisceau pompe, sa forme temporelle et son intensité en fonction du retard  $\Delta = t_t - t_p$ , entre les maxima des impulsions pompe ( $t_p$ ) et test ( $t_t$ ) ( $\Delta < 0$  si l'impulsion test arrive avant l'impulsion pompe sur l'échantillon)

La figure 46 donne la position temporelle du maximum de l'impulsion signal par rapport à celui de l'impulsion pompe  $\tau_M = t_s - t_p$ , mesurée en fonction du retard  $\Delta$ , quand on excite CuCl à la moitié de l'énergie du biexciton ( $\hbar\omega = 3,186$  eV) et pour une intensité d'excitation  $I_p = 5\text{MW}/\text{cm}^2$ . Nous comparons les points expérimentaux (croix) aux positions calculées à partir du modèle théorique décrivant les deux processus [68] : recombinaison induite des biexcitons (trait plein) et réseau transitoire induit (tirets).



**Figure 46 :** Position temporelle  $\tau_M$  du maximum du signal en fonction du retard  $\Delta$ , à la résonance biexcitonique : (x) valeurs expérimentales pour  $\hbar\omega = 3,186$  eV et  $I_p = 5\text{MW}/\text{cm}^2$ ; (—) courbe théorique pour le processus de recombinaison induite ; (---) courbe théorique pour le processus de réseau transitoire induit.

Le comportement temporel du signal généré peut être interprété de la manière suivante :

- Pour  $\Delta < 0$ , le signal généré par la recombinaison induite du biexciton suit le recouvrement instantané des impulsions pompe et test. Il en résulte approximativement une droite donnée par l'équation :  $\tau_M \approx 0,3 \Delta$  (trait plein).

Le signal dû à la diffraction de l'impulsion pompe par le réseau suit l'équation  $\tau_M = 0,25 \Delta$ , comme le montre la ligne en tirets.

Les points expérimentaux se trouvent distribués entre les deux droites. Nous ne pouvons donc pas conclure au sujet de la prépondérance de l'un ou de l'autre des deux processus à partir de ces mesures.

- Pour  $\Delta > 0$  par contre, les positions calculées pour les deux processus sont bien séparées, étant donné que pour la recombinaison induite des biexcitons,  $\tau_M$  suit asymptotiquement la ligne droite obéissant à l'équation  $\tau_M = \Delta$ .

Ce changement de pente s'explique de la façon suivante : tandis que, pour  $\Delta < 0$ , l'intensité du signal est uniquement une fonction du recouvrement des deux impulsions, pour  $\Delta > 0$ , il est dû à la recombinaison induite des états biexcitoniques cohérents. Ceux-ci, créés par la pompe, conservent leur vecteur d'onde de création, jusqu'à ce que leur recombinaison soit induite par l'impulsion test. Comme on le voit sur la figure 46, les points expérimentaux suivent la droite de pente 1, à partir de  $\Delta = 15$ ps, ce changement ayant lieu plus tôt pour les intensités d'excitation plus fortes.

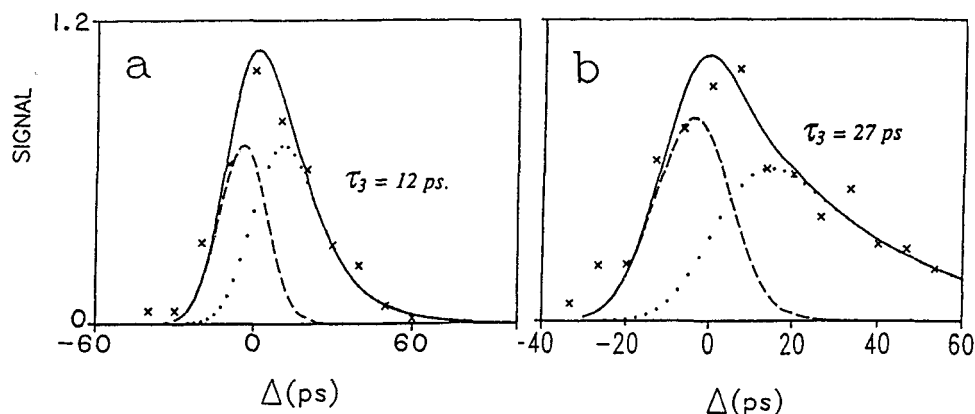
Les figures 47 a/b montrent la trace de corrélation du signal généré [47]. Elle est obtenue en calculant, pour chaque retard  $\Delta$ , l'intensité intégrée en temps du signal généré. Elles sont obtenues sous excitation résonante ( $\hbar\omega = 3,186$ eV), à des intensités d'excitation différentes. Pour  $\Delta > 15$  ps, d'après la discussion précédente, nous nous attendons à ce que l'intensité du signal soit due uniquement à la recombinaison induite des biexcitons. Elle doit décroître exponentiellement avec une constante de temps  $\tau_3$  pour les biexcitons. L'asymétrie en  $\Delta$  est d'autant plus prononcée que l'intensité d'excitation décroît. L'ajustement, dans cette région de  $\Delta$ , de la courbe calculée (ligne en pointillé) avec les points expérimentaux (croix) permet d'obtenir la valeur de la constante de temps  $\tau_3$ .

On constate que  $\tau_3$  varie de 12 ps à 27 ps lorsque l'intensité d'excitation diminue. On vérifie que la décroissance est d'autant plus rapide que l'intensité d'excitation est plus forte, c'est-à-dire que la densité de population et les probabilités de collision augmentent, provoquant la perte du vecteur d'onde de création.

Comme indiquée par la ligne en tiret, la partie montante de la trace de corrélation est surtout due à la contribution de la diffraction de la pompe sur le réseau transitoire. Cette courbe est légèrement asymétrique, son maximum étant situé à  $\Delta = -4$ ps. L'asymétrie est due à des effets de saturation durant l'excitation : le maximum de la modulation du coefficient d'absorption a lieu avant le maximum de l'impulsion pompe. La largeur à mi-hauteur est donnée par la durée de l'impulsion laser.

Les valeurs maxima des deux courbes en tiret et en pointillé sont ajustées de façon que leur somme (courbe en trait plein) donne une déconvolution des résultats expérimentaux.

Si l'on excite le cristal hors de la résonance biexcitonique, l'asymétrie est différente de celle observée précédemment. On observe une augmentation lente de l'intensité du signal suivie d'une décroissance rapide pour  $\Delta > 0$ , due à la saturation de la susceptibilité



**Figure 47** : Intensité intégrée en temps du signal cohérent en fonction du retard  $\Delta$ , à la résonance biexcitonique. *a)* sous forte intensité d'excitation :  $I_p = 110 \text{ MW/cm}^2$ ,  $I_1 = I_p/8$ ,  $\tau_3 = 12 \text{ ps}$ . *b)* à faible intensité d'excitation :  $I_p = 5 \text{ MW/cm}^2$ ,  $I_1 = I_p/4$ ,  $\tau_3 = 27 \text{ ps}$ . (x) points expérimentaux ; (--) diffraction de l'impulsion pompe sur le réseau transitoire ; (...) recombinaison induite par l'impulsion test.

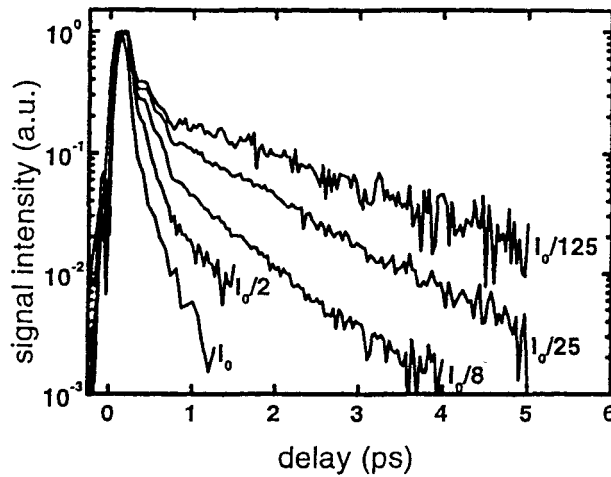
non linéaire, conduisant à l'effacement de la modulation spatiale de l'index de réfraction complexe. Ce comportement est caractéristique de la contribution due au réseau.

Nous avons discuté les mesures de mélange à quatre ondes dégénéré avec une double résolution temporelle : le retard entre test et pompe modifie la modulation du réseau et ainsi l'intensité du signal généré. On peut déterminer également l'instant auquel ce signal est émis. Pour des raies de transitions qui montrent un élargissement homogène comme c'est le cas dans le CuCl massif étudié ici, on observe un "free induction decay" de la polarisation. La constante de temps est alors donnée par  $2T_2$ . Si la raie est élargie d'une manière inhomogène, comme par exemple dans le cas des nanocristaux de CuBr que nous avons discuté précédemment, on observe alors un écho de photon. Dans un système à deux niveaux, la décroissance du signal est aussi exponentielle [40] mais la constante de temps est donnée par  $4T_2$ . Ceci est dû au fait qu'une première impulsion courte et ainsi spectralement large crée des polarisations microscopiques qui oscillent à cause de l'élargissement inhomogène à des fréquences propres différentes. Ceci donne lieu à une interférence destructive entre ces polarisations. Ce processus est partiellement réversible [40]. On peut le démontrer en appliquant, après un intervalle temporel  $\tau$ , une deuxième impulsion qui change la phase de chacun des oscillateurs de  $\pi$ . Ainsi, après  $2\tau$ , les oscillateurs se retrouvent en phase et donnent lieu à une polarisation macroscopique P. Ce signal est détecté comme "écho" de photon. À son intensité participent tous les oscillateurs qui sont restés cohérents avec leurs états de création par la première impulsion. Cette partie décroît avec la constante de temps  $T_2$  et parce que l'intensité du signal est proportionnelle à  $|P|^2$ , l'écho émis à l'instant  $2\tau$  décroît avec la constante de temps de  $4T_2$ .

Il a été intéressant de mesurer les constantes de temps par mélange de quatre ondes dans des nanocristaux de CuBr [45] et de comparer les résultats avec ceux obtenus par "spectral hole burning". Nous utilisons les mêmes échantillons que précédemment et les excitons avec des impulsions d'un laser Ti : saphir d'une durée de 100 fs dans la région de la résonance excitonique. La configuration est celle de la figure 42 et le signal émis est intégré en temps par un photomultiplicateur.

La mesure du temps  $T_2$  de déphasage se fait par extrapolation à intensité nulle des temps de décroissance mesurés pour plusieurs intensités des faisceaux incidents, afin de s'affranchir de l'effet d'intensité pour la détermination du temps de déphasage intrinsèque. Nous présentons ici ces mesures pour l'échantillon contenant les nanocristaux de la plus petite taille ( $A = 2,8$  nm).

Les dynamiques du signal en fonction de l'intensité des faisceaux incidents sont présentées sur la figure 48. À forte intensité d'excitation, le signal décroît très vite, du fait de la forte densité de porteurs créés. Lorsqu'on diminue l'intensité d'excitation, la densité de porteurs ou des phonons créés par l'excitation diminue d'autant : les processus de déphasage par collisions entre porteurs deviennent moins probables et le temps de décroissance du signal devient plus long.



**Figure 48** : Signal de mélange à quatre ondes en fonction du retard entre les impulsions pompes, pour différentes intensités d'excitation, à 400 nm (3,091 eV).

Toutes ces décroissances sont ajustables, pour les retards supérieurs à 500 fs, par des fonctions exponentielles décroissantes :

$$y_0 + Ae^{-\tau/\tau_D} \quad (77)$$

où  $y_0$  est le niveau du bruit,  $\tau$  le retard entre les deux impulsions,  $\tau_D$  la constante de décroissance lente et  $A$  l'amplitude associée à cette décroissance.

La figure 49 représente l'évolution du temps  $T_2 = 4\tau_D$ . Étant donné que les transitions sont élargies de façon inhomogène dans nos échantillons, la mesure de ce temps long nous donne une mesure de  $T_2/4$ . Cependant, du fait de l'effet d'intensité décrit avant, il nous faut extrapoler les mesures de  $\tau_D$  à intensité nulle pour obtenir une valeur du temps de déphasage intrinsèque du matériau :

$$\frac{1}{\tau_D} = \frac{4}{T_2} + \beta I \quad (78)$$

L'ajustement selon l'équation 77 des résultats expérimentaux est présenté en trait plein sur la figure 49. L'extrapolation à intensité nulle du temps long de décroissance nous donne alors la valeur  $T_2 = 7$  ps, pour l'échantillon contenant les nanocristaux de 2,8 nm de rayon moyen.

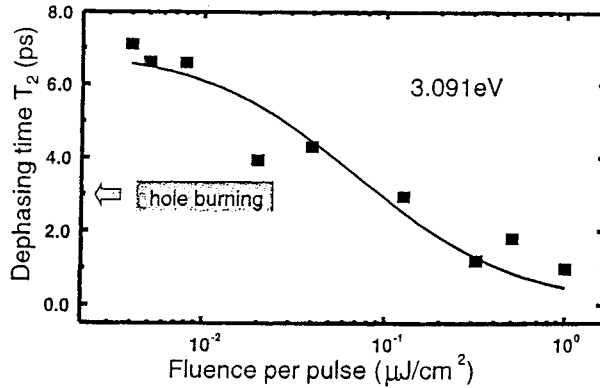


Figure 49 : Temps de décroissance du signal en fonction de l'intensité d'excitation à 400 nm (3,091 eV) et 5 K.

Nous indiquons aussi dans la figure 49 la valeur de  $T_2$  obtenue par des mesures de "spectral hole burning", qui est d'un facteur deux fois plus petit que la valeur trouvée par mélange à quatre ondes. Cette différence est systématique si l'on mesure à des énergies de photons d'excitation différentes. Ceci est dû aux techniques que l'on emploie : dans le cas du mélange d'onde, on détermine une valeur moyenne de  $T_2$  qui dépend faiblement de l'énergie de photon [45]. Dans le cas du "hole burning" les impulsions laser sont si longues que la distribution des charges dans la matrice peut se réarranger en déplaçant la fréquence de résonance de l'oscillateur. On en détermine donc une valeur de largeur spectrale moyennée en temps ("spectral diffusion").

Si l'on change l'énergie de photon, à plus grandes énergies que celle de la figure 48 des oscillateurs de 250 fs de période apparaissent (figure 50). Il s'agit des battements quantiques qui sont observés quand différentes transitions cohérentes partagent un même état. Ici, on peut exciter un ou deux excitons dans le même nanocristal, ce qui donne lieu aux battements quantiques à des énergies de photons supérieures à celles de l'exciton.

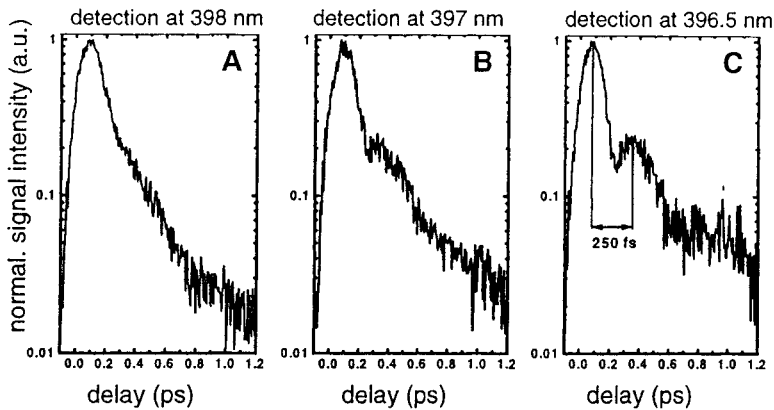


Figure 50 : Décroissances typiques du signal de mélange à quatre ondes aux longueurs d'onde d'excitation de 398 ; 397 et 396.5 nm.

### 5.3 Expériences à trois faisceaux résolues en temps

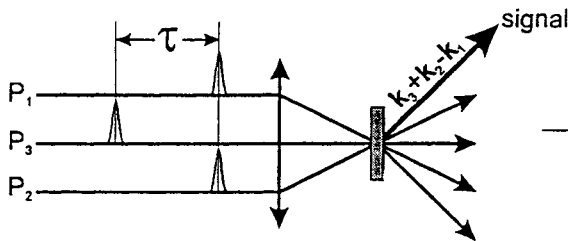
Nous présentons ici la méthode de mesure du temps de vie et du coefficient de diffusion spatiale des porteurs photo-cr  s dans nos   chantillons. Cette mesure se fait par m  lange    quatre ondes d  g  n  r  es, dans une configuration    trois faisceaux. Dans cette configuration, le vecteur d'onde  $\vec{k}_3$  du faisceau qui se diffracte sur le r  seau est diff  rent de ceux des faisceaux pompe  $P_1$  et  $P_2$ .

Comme le montre la figure 51, trois faisceaux sont incidents sur l'  chantillon. Il est donc possible de former trois r  seaux distincts :

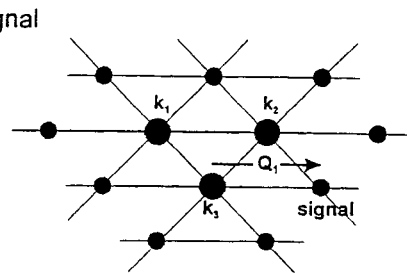
- avec les faisceaux de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ , de pas  $\vec{Q}_1 = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ ,
- avec les faisceaux de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_3$ , de pas  $\vec{Q}_2 = \vec{k}_3 - \vec{k}_1$ ,
- avec les faisceaux de vecteurs d'onde  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_3$ , de pas  $\vec{Q}_3 = \vec{k}_3 - \vec{k}_2$ .

Chaque faisceau peut alors se diffracter sur chacun des r  seaux.

Les faisceaux  $P_1$  et  $P_2$ , arrivent en co  ncidence temporelle sur l'  chantillon et peuvent donc cr  er une modulation des populations des quasi-particules dont nous voulons tester l'  volution en temps.



**Figure 51 :** M  lange    quatre ondes d  g  n  r  es, dans une configuration    trois faisceaux, destin  e    la mesure du temps de vie et du coefficient de diffusion.



**Figure 52 :** Image form  e sur un   cran plac  e apr  s l'  chantillon, dans une configuration    trois faisceaux

Le signal que l'on   tudie est la diffraction    l'ordre +1 (  ventuellement -1) du faisceau  $P_3$  de vecteur d'onde  $\vec{k}_3$ , sur le r  seau de pas  $\vec{Q}_1 = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Si  $\vec{k}_3$  est dans le plan d  fini par  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ , sa direction de propagation  $\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1$  reste dans ce plan et est confondue avec la diffraction d'autres faisceaux incidents sur les diff  rents r  seaux induits. Ainsi, afin de s  parer le signal qui nous int  resse de ces autres contributions, on choisit de ne pas faire propager le faisceau  $P_3$  dans le plan form   par les faisceaux  $P_1$  et  $P_2$ , mais dans une direction inclin  e par rapport    celui-ci. La figure 52 est celle que l'on obtiendrait en plaçant un   cran derri  re l'  chantillon, dans cette configuration.

Cet arrangement exp  rimental permet de s  parer le signal qui nous int  resse des autres contributions. De plus, le signal se trouve plus   loign   des autres taches de diffraction ainsi que des transmissions des faisceaux incidents : le bruit   ventuellement engendr   par la



diffusion de ces faisceaux intenses et détecté dans la direction du signal s'en trouve diminué.

La dynamique du signal de diffraction de  $P_3$  contient une information relative au temps de vie des porteurs, puisque la recombinaison des porteurs créés par  $P_1$  et  $P_2$  détruit le réseau et empêche la génération d'un signal. Nous montrons maintenant comment la mesure de l'intensité du faisceau diffracté en fonction du retard entre les impulsions  $P_3$  d'une part et celles de  $P_1$  et  $P_2$  d'autre part permettent de déterminer le temps de vie et le coefficient de diffusion des porteurs si elles sont effectuées pour plusieurs pas de réseau.

Nous négligeons dans la suite les effets cohérents discutés auparavant, et ne considérons que les effets dus à une modulation spatiale de la densité de porteurs. Notons toutefois que les "artefacts cohérents" peuvent souvent être éliminés expérimentalement par la configuration des polarisations que nous utilisons, par exemple une polarisation linéaire  $\vec{P}_1 // \vec{P}_2$  et  $\vec{P}_3 \perp \vec{P}_1$ .

L'évolution spatio-temporelle de la densité de porteurs excités  $N(x, z, t)$  peut être décrite par l'équation :

$$\frac{\partial N(x, z, t)}{\partial t} = G(x, z, t) - \frac{N(x, z, t)}{\tau(N)} + \nabla[D\nabla N(x, z, t)] \quad (79)$$

où  $G(x, z, t)$  est le terme de création des porteurs

$\tau(N)$  est le temps de recombinaison des porteurs, qui peut dépendre de  $N$ ,

$D$  est le coefficient de diffusion ambipolaire.

Plusieurs approximations permettent de simplifier cette écriture :

- Dans les semi conducteurs, le taux de recombinaison  $N/\tau$  est fortement dépendant de la densité de porteurs et peut être développé en une série de Taylor :

$$N/\tau = AN + BN^2 + CN^3 + \dots \quad (80)$$

où  $A = 1/T_1$  correspond à la recombinaison linéaire,

$B$  correspond à la recombinaison radiative bimoléculaire,

$C$  décrit la recombinaison Auger (recombinaison avec transfert de l'énergie d'un électron et d'un trou à un autre porteur).

De grandes intensités d'excitation favorisent ces processus non linéaires de recombinaison, et l'équation (79) devient alors particulièrement difficile à résoudre. Pour éviter ces complications, nous nous plaçons dans le cas de faibles intensités d'excitation, et considérons  $\tau$  comme indépendant de la densité  $N(x, z, t)$ .

- Nous ne considérons que le problème à une dimension, en supposant que la densité de porteurs ne varie que suivant la coordonnée  $x$ , direction du réseau. On a alors  $N(x, z, t) = N(x, t)$ . Ceci suppose l'épaisseur de l'échantillon petite devant le pas de réseau  $\Lambda$  et une excitation homogène suivant  $z$ , c'est-à-dire dans l'épaisseur de l'échantillon.

Le coefficient  $D$  est un coefficient de diffusion ambipolaire, ce qui signifie que électrons et trous diffusent ensemble et qu'aucune charge d'espace ne se développe dans le volume de l'échantillon. À faible densité de porteurs et dans le cas unidimensionnel, on a (loi de Fick) :

$$\nabla[D\nabla N(x, t)] = D \frac{\partial^2 N(x, t)}{\partial x^2} \quad (81)$$

Si l'on considère une création instantanée des porteurs à  $t = 0$  par une impulsion de Dirac, l'équation (79) devient dans ces conditions :

$$\frac{\partial N(x, t)}{\partial t} = KI_0 \left[ 1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right) \right] - \frac{N(x, t)}{T_1} + D \frac{\partial^2 N(x, t)}{\partial x^2} \quad (82)$$

$K$  étant un coefficient décrivant les pertes dues aux réflexions à la surface de l'échantillon. La solution de l'équation (82) est donnée par [69] :

$$N(x, t) = N_0 \left[ 1 + e^{-t/\tau_D} \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right) \right] e^{-t/T_1} \quad (83)$$

où  $N_0$  est la densité de porteurs initiale et  $\tau_D$  le temps de diffusion des porteurs :

$$\tau_D = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 D} \quad (84)$$

Le déclin de la modulation spatiale est ainsi caractérisé par le temps  $\tau_g$  :

$$\frac{1}{\tau_g} = \frac{4\pi^2 D}{\Lambda^2} + \frac{1}{T_1} \quad (85)$$

Ce temps de déclin du réseau est mesuré en observant la dépendance temporelle de la diffraction d'un faisceau test  $P_3$  : l'efficacité de diffraction  $\eta$  est mesurée en fonction du retard  $\Delta t$  entre l'impulsion de  $P_3$  et celles de  $P_1$  et  $P_2$  qui coïncident temporellement. Dans le cas de faibles intensités d'excitation, l'efficacité de diffraction dépend de façon quadratique de la variation  $\Delta \tilde{n}$  d'indice complexe et de la densité  $N$  de porteurs :

$$\eta(\Delta t) \propto |\Delta \tilde{n}|^2 \propto N^2 \quad (86)$$

C'est pourquoi le temps  $\tau$  de déclin mesuré expérimentalement vaut la moitié du temps de déclin du réseau :

$$\tau = \frac{\tau_g}{2} \quad (87)$$

L'équation (85) sépare deux contributions distinctes au déclin du réseau : celui-ci s'efface dans le temps du fait de la diffusion des porteurs (premier terme de l'équation), mais aussi du fait de la recombinaison de ces porteurs (deuxième terme). Expérimentalement, il est possible de séparer ces deux contributions en répétant la mesure de  $\tau_g$  pour différents pas du réseau de diffraction (en modifiant l'angle  $\theta$  d'intersection entre les faisceaux  $P_1$  et  $P_2$ ). La dépendance de  $1/\tau_g$  en fonction de  $4\pi^2/\Lambda^2$  est alors linéaire, de pente donnée par le coefficient de diffusion  $D$  et d'ordonnée à l'origine  $1/T_1$ .

Un exemple est montré sur la figure 53 où on a excité à température ambiante CdS autour de la résonance excitonique. Les différentes courbes correspondent à des pas de réseau différents [70]. Il faut noter que la décroissance est exponentielle mais dépend de l'échantillon [71] parce que la durée de vie des paires électron-trous peut être limitée par des effets extrinsèques (des centres de recombinaison, etc.). De plus, comme mentionné avant, elle dépend de l'intensité d'excitation [72].

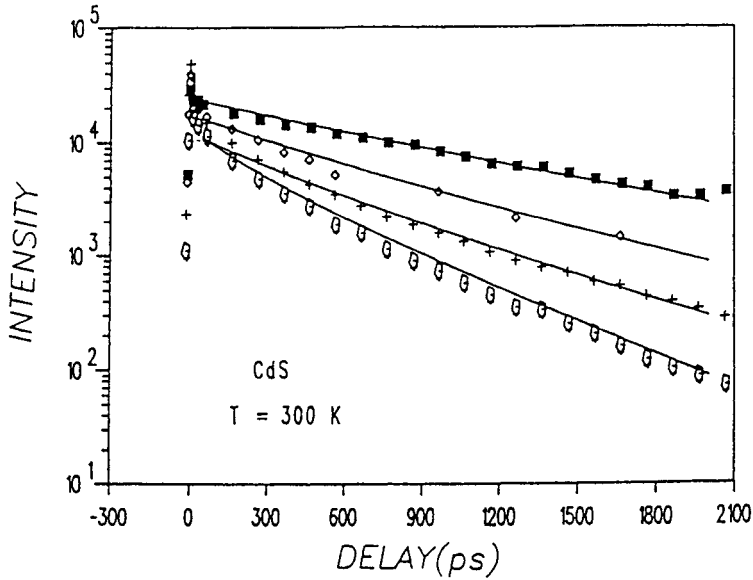


Figure 53 : Intensité du signal en fonction du retard entre  $P_3$  et  $P_1$  pour différentes valeurs de  $\Lambda$ . ( $\Lambda = 8, 5, 4, 3 \mu\text{m}$  du haut vers le bas).

Dans CdS, le coefficient de diffusion ambipolaire  $D$  est anisotrope : pour des paires électron-trous il est donné par

$$D = \frac{D_e D_h}{D_e + D_h} \quad (88)$$

où, par la relation d'Einstein

$$D_{e,h} = \frac{\mu_{e,h} k_B T}{e} \quad (89)$$

$D_{e,h}$  sont les coefficients de diffusion des électrons et trous, respectivement,  $\mu_{e,h}$  est leur mobilité et  $k_B$  la constante de Boltzmann. Dans un simple modèle de Drude

$$\mu_{e,h} = \frac{e \tau_{coll}}{m_{e,h}} \quad (90)$$

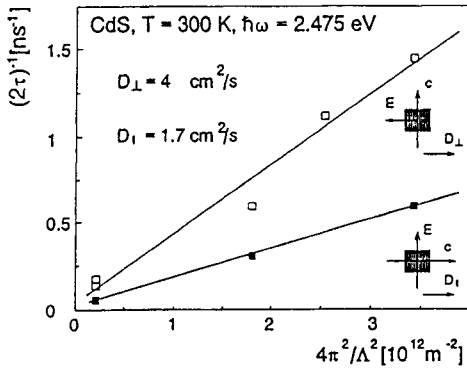
où  $\tau_{coll}$  représente le temps moyen entre deux collisions successives et  $m_{e,h}$  est la masse effective des électrons et trous. La masse effective de la bande de valence A de CdS est anisotrope. Elle vaut [1,73]

$$m_{h\perp} = 0,7 m_0 \text{ et } m_{h\parallel} = 2,5 m_0 \quad (91)$$

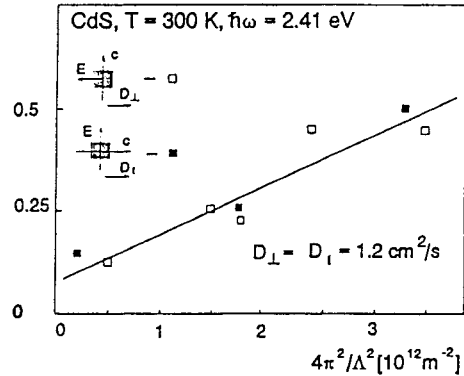
pour  $\vec{k} \perp \vec{c}$  et  $\vec{k} \parallel \vec{c}$  où  $\vec{c}$  représente l'axe cristallin de CdS. La masse effective de la bande de conduction  $m_e$  par contre est isotrope.

Dans une autre série d'expériences [71] nous avons testé cet effet à  $T = 300\text{K}$  en excitant CdS près de la transition bande à bande ( $\hbar\omega = 2,475 \text{ eV}$ ). Le résultat est montré sur la figure 54 où l'anisotropie de la constante de diffusion est entièrement expliquée par l'anisotropie de la bande de valence. La constante de diffusion  $D$  diminue et devient isotrope

si l'on excite à  $\hbar\omega = 2,41$  eV. Dans ce cas (Fig.55), on ne crée plus de paires électrons trous libres mais localisés. La diffusion est ici entièrement due au "hopping" entre ces états localisés. On remarque aussi que la durée de vie des excitations élémentaires (donnée par les valeurs d'intersection des droites avec l'ordonnée) est dans tous les cas de l'ordre de 10-20 ns.



**Figure 54 :** Temps de déclin du signal en fonction de  $1/\Lambda$  pour deux orientations de l'échantillon différentes. L'excitation est à  $\hbar\omega = 2.475$  eV avec  $\vec{E} \perp \vec{c}$  ; la diffusion  $\vec{D} // \vec{c}$  (carrés pleins) et  $\vec{D} \perp \vec{c}$  (carrés ouverts) [71].



**Figure 55 :** Comme Fig. 54 mais pour une excitation à  $\hbar\omega = 2.41$  eV [71].

On peut noter que des expériences similaires ont été effectuées sur les nanocristaux de CdS dans une matrice de verre [74] préparée par la méthode sol-gel. Dans ce cas, à faible intensité, une diffusion n'a pas été observée. La dynamique du signal est indépendante du pas du réseau, mais montre une décroissance biexponentielle. Ceci est la signature d'un système où plusieurs états de durées de vie différentes interviennent et donnent lieu à des non-linéarités optiques.

#### 5.4 Mélange à quatre ondes non dégénérées

La détermination du temps de déphasage est envisageable dans l'espace des temps, comme nous venons de le voir. Cette technique nécessite cependant de disposer d'impulsions laser suffisamment brèves pour pouvoir résoudre  $T_2$ . Dans la plupart des cas, ceci n'est devenu possible qu'avec l'avènement de sources laser femtosecondes. Il faut d'autre part que ces impulsions soient accordables à la longueur d'onde pour laquelle l'on souhaite effectuer la mesure (souvent en bord de bande pour les semi-conducteurs). Une alternative à ces exigences est d'effectuer la mesure du temps de déphasage dans l'espace des fréquences. Nous présentons ici une technique : le mélange à quatre ondes non dégénérées.

Cette technique consiste à faire interférer à la surface de l'échantillon deux impulsions laser en coïncidence temporelle, de fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$  proches mais différentes [75]. Il est habituel de disposer d'une source laser accordable autour de l'émission fixe de l'autre. La détermination de  $T_1$  et  $T_2$  repose sur la mesure de l'intensité du signal diffracté en fonction de la différence  $\omega_d$  entre les fréquences des lasers excitateurs :  $\omega_d = \omega_1 - \omega_2$ .

L'intensité  $I$  résultante des battements entre deux ondes planes de pulsation  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , d'amplitudes  $E_1$  et  $E_2$  et de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  s'écrit :

$$I \propto \frac{1}{2}|E_1|^2 + \frac{1}{2}|E_2|^2 + E_1 E_2 \cos[(\omega_1 - \omega_2)t + (\vec{k}_1 - \vec{k}_2)\vec{r}] \quad (92)$$

Le réseau qui est inscrit est un réseau mobile, qui se déplace parallèlement à la surface de l'échantillon à la vitesse  $(\omega_1 - \omega_2)/(k_1 - k_2)$ . On parle plutôt de battements entre les deux fréquences que d'interférences, puisque l'intensité résultante à la surface de l'échantillon est modulée non seulement spatialement mais aussi temporellement.

Le signal de diffraction est émis dans la direction  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ , à une fréquence  $\omega_3 = 2\omega_2 - \omega_1$  différente de celle des impulsions pompes. Ainsi, lorsque la détection se fait avec une résolution spectrale, le rapport signal/bruit attendu pour ces mesures est très grand.

La modélisation mathématique relative à cette technique est basée sur le formalisme de la matrice densité. Elle passe par la résolution de son équation d'évolution par la méthode des perturbations, dans le cas d'un système à deux niveaux et dans l'approximation de l'onde tournante. On obtient de cette façon la polarisation du système. La polarisation macroscopique est obtenue en intégrant la polarisation microscopique sur l'élargissement inhomogène des raies. Dans le cas d'un élargissement inhomogène  $\Delta\omega_i$  satisfaisant à la condition :

$$\Delta\omega_i \gg (T_2^{-1}, T_1^{-1}, |\omega_2 - \omega_1|) \quad (93)$$

on obtient :

$$P^{(3)}(\omega_3) = \chi^{(3)} E_1^* E_2^2 e^{-i\omega_3 t} + cc \quad (94)$$

avec :

$$\chi^{(3)} = \chi_R^{(3)} + \chi_{NR}^{(3)} \quad (95)$$

$$\chi_R^{(3)} = \frac{i K_3}{(1 + i\omega_d T_1)(1 + i\omega_d T_2)} \quad (96)$$

$\chi_R^{(3)}$  et  $\chi_{NR}^{(3)}$  sont les susceptibilités non linéaires d'ordre 3 associées respectivement à la transition résonante (celle prise en compte dans le système à deux niveaux) et aux autres transitions (non résonantes). Le terme  $K_3$  peut être considéré comme constant sur l'intervalle de variation de  $\omega_d$ . L'intensité du signal de sortie, à la fréquence  $\omega_3$  étant proportionnelle au module au carré de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3, on peut écrire :

$$I_s \propto |\chi^{(3)}|^2 = \left| \frac{i K_3}{(1 + i\omega_d T_1)(1 + i\omega_d T_2)} + \chi_{NR}^{(3)} \right|^2 \quad (97)$$

On voit ainsi que sa mesure donne directement des informations à la fois sur le temps de relaxation  $T_1$  et sur le temps de déphasage  $T_2$ . Le terme  $\chi_{NR}^{(3)}$  est également considéré comme constant sur l'intervalle de variation de  $\omega_d$ . Cela a pour effet de faire interférer les termes résonants et non résonants et on attend pour cette raison une forme asymétrique du signal [76], selon le signe de  $\omega_d$ .

Dans le cas des nanocristaux de CdSe dans un verre de borosilicate, le terme non résonant n'avait pas d'importance [77]. Comme nous le voyons sur la figure 56, qui montre l'intensité du signal en fonction de  $\hbar(\omega_2 - \omega_1)$  on couvre une grande plage spectrale et la variation de l'intensité peut être mesurée sur cinq ordres de grandeur si le terme non résonant est faible. En utilisant le modèle [75] on trouve des valeurs de  $T_1 = 10 \pm 1$  ps,  $T_2 = 100 \pm 20$  fs pour l'échantillon vierge et  $T_1 = 0,6 \pm 0,1$  ps et  $T_2 = 30 \pm 20$  fs pour l'échantillon noirci. L'origine de ce noircissement est discuté dans le cours de D. Ricard de cet ouvrage. De plus, la résonance Raman-Stokes apparaît comme maximum secondaire. Elle ne pouvait pas être traitée dans le cadre de la théorie [75].

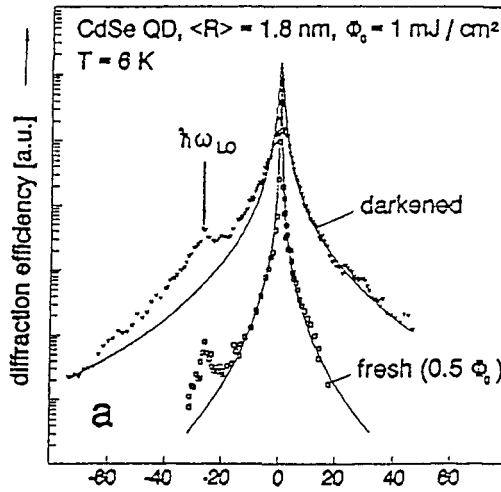


Figure 56 : Mélange à quatre ondes non dégénérées dans des nanocristaux de CdSe avec des échantillons vierges et noircis par excitation laser [76]

Dans le cas des nanocristaux, la théorie [75] peut être appliquée parce que la raie s'est élargie d'une manière inhomogène. Outre la détermination des temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$ , on peut aussi utiliser cette même technique du mélange à quatre ondes non dégénérées pour la détermination de l'accord de phase dans un processus de collision similaire à la diffusion Hyper-Raman. On peut ainsi déterminer la déformation de la relation de dispersion, induite par la haute intensité d'excitation.

La configuration géométrique est résumée pour les processus sur la figure 57. Dans le processus de diffusion Hyper-Raman seul le faisceau pompe est présent. Il excite un état intermédiaire dont la recombinaison a lieu avec conservation d'énergie et de la quantité de mouvement :

$$\begin{aligned} 2\hbar\omega_p &= E(q) + E(K) \\ 2\vec{k}_p &= \vec{q} + \vec{K} \end{aligned} \quad (98)$$

Ceci est un processus spontané.

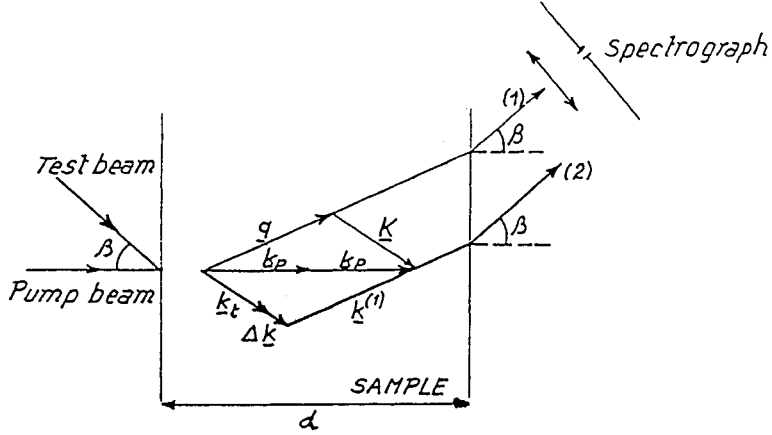


Figure 57 : Mélange à quatre ondes non dégénérées et diffusion Hyper Raman.

Dans le cas de mélange à quatre ondes, le faisceau test de pulsation  $\omega_t$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}_t$  induit la recombinaison de l'état intermédiaire et donne lieu à l'émission d'un signal de pulsation  $\omega^{(1)}$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}^{(1)}$  tel que

$$\begin{aligned} 2\hbar\omega_p &= \hbar\omega_t + \hbar\omega^{(1)} \\ 2\vec{k}_p &= \vec{k}_t + \vec{k}^{(1)} + \Delta\vec{K} \end{aligned} \quad (99)$$

Ce processus induit a lieu avec conservation d'énergie mais fait intervenir un désaccord de phase  $\Delta\vec{K}$  :

$$\Delta\vec{K} = 2\vec{k}_p - \vec{k}_t - \vec{k}^{(1)} \quad (100)$$

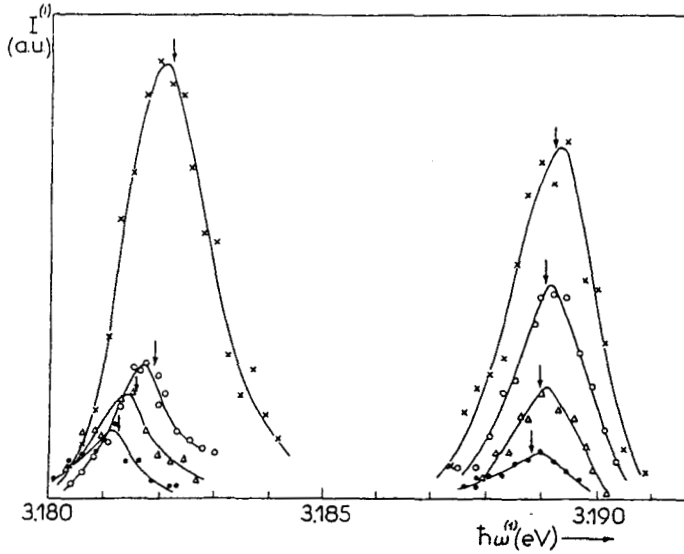
Il devient nul lorsque  $\vec{k}_t = \vec{K}$  et en conséquence  $\vec{k}^{(1)} = \vec{q}$  ou l'inverse.

D'après l'équation (65) l'intensité du signal varie comme :

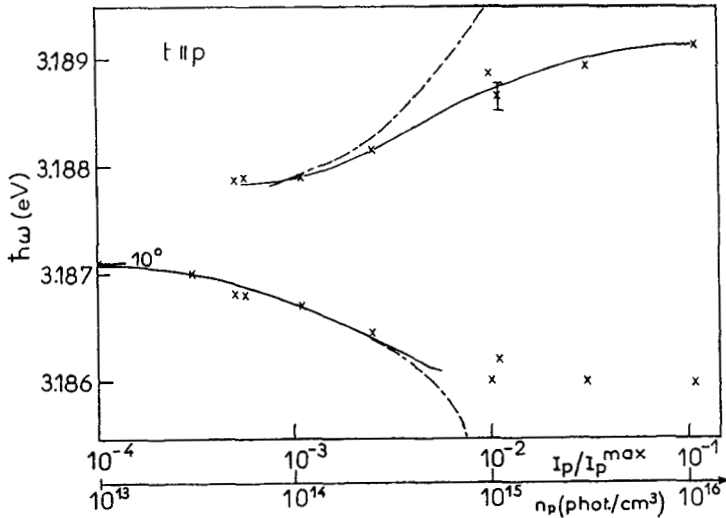
$$I^{(1)} \propto |\chi^{(3)}|^2 I_p^2 I_t d^2 \left( \frac{\sin(\Delta K d/2)}{\Delta K d/2} \right)^2 \quad (101)$$

Si l'on garde la configuration, les intensités et  $\hbar\omega_p$  constants et que l'on ne fasse varier que  $\hbar\omega_t$ ,  $\Delta K$  varie rapidement et un spectre d'excitation de  $I^{(1)}$  montre un maximum prononcé quand  $\Delta\vec{K} = 0$ . Comme le montre la figure 58 pour CuCl à 4 K en choisissant  $\beta = 11^\circ$  sa position spectrale coïncide bien avec la position spectrale des raies Hyper-Raman [78] (indiqué par les flèches) mesurées dans la même expérience en coupant le faisceau test. L'intensité de  $I^{(1)}$  est, par contre, plusieurs ordres de grandeurs plus importante que celle des raies Hyper-Raman. Nous avons donc pu étudier, grâce à cette technique [79] la variation de la zone induite par laser montrée sur la figure 20 en fonction de son intensité. Dans CuCl, nous avons choisi une situation angulaire ( $\beta = 10^\circ$ ) et une énergie de photon  $\hbar\omega_p = 3.1845$  eV telle que  $\hbar\omega^{(1)}$  se trouve dans la région de dédoublement des raies Hyper-Raman. La figure 59 montre le résultat où  $\hbar\omega$  indique la position du maximum du spectre d'excitation et la flèche

la position spectrale de la raie de Hyper-Raman à faible intensité. Les courbes en pointillé donnent le résultat calculé pour les positions des raies dédoublées discutées avant. On voit bien que, pour une densité  $n_p < 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  photons du faisceau pompe, une seule solution des équations (30) et (31) existe et que pour  $n_p \geq 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  les effets de saturation interviennent. Pour ajuster la théorie aux points expérimentaux ils faudrait augmenter largement les constantes d'amortissement intervenant dans la matrice densité.



**Figure 58 :** Intensité du signal  $I^{(1)}$  en fonction de  $\hbar\omega^{(1)} = 2\hbar\omega_p - \hbar\omega_s$  pour différentes énergies de photon  $\hbar\omega_p = (3,1858 ; 3,1856 ; 3,1854 \text{ et } 3,1851 \text{ eV}$  du haut vers le bas). Les flèches indiquent les positions spectrales des raies Hyper-Raman pour les mêmes intensités d'excitation.



**Figure 59 :** Position des maxima des spectres d'excitation en fonction de l'intensité du faisceau pompe qui induit la renormalisation de la relation de dispersion.



Ces mesures ont été effectuées en utilisant des polarisations des faisceaux test et pompe linéaires et parallèles. Comme discuté avant, pour des polarisations croisées, l'anomalie due à l'absorption à deux photons disparaît et seule celle due à l'absorption induite reste. Elle donne lieu à un déplacement global de la relation de dispersion dans la région spectrale étudiée ici [79]. Cet effet a aussi pu être étudié en fonction de l'intensité d'excitation.

## 6. CONCLUSION

Dans cet article j'ai passé en revue différentes techniques utilisées en spectroscopie non linéaire. Je me suis largement appuyé sur des exemples venant du domaine de physique des semi-conducteurs et des résultats obtenus dans notre équipe de recherche. Voulant être illustratif, je n'ai pas cité le grand nombre de résultats originaux et importants obtenus par d'autres équipes de recherche et je prie le lecteur de m'en excuser. Une bibliographie plus équilibrée est présentée dans les différents articles de revue et livres cités ici.

J'espère avoir pu montrer la richesse que présente la spectroscopie non linéaire. Il ne faut pas oublier, par contre, que chaque technique ne donne que des renseignements ponctuels sur les propriétés d'un matériau et qu'il faut utiliser le plus grand nombre de techniques pour bien le caractériser et faire la part entre ses propriétés extrinsèques et intrinsèques.

## Références

- [1] Hönerlage B., Lévy R., Grun J.B., Klingshirn C. et Bohnert K., *Phys. Rep.* **124** (1985) 161 et références citées.
- [2] Klingshirn C.: "Semiconductor Optics", Springer Verlag, Heidelberg (1995) et références citées.
- [3] Born M. et Wolf E. : "Principles of Optics", Pergamon, Oxford (1977).
- [4] Masumoto Y., Unuma Y., Tanaka Y. et Shionoya S., *J. Phys. Soc. Japan* **47** (1979) 1844 ;  
Masumoto Y., Unuma Y. et Shionoya S., *J. Phys. Soc. Japan* **49** Suppl. A (1980) 393.
- [5] Reimann K. et Rübenacke St., *Phys. Rev. B* **49** (1994) 11021.
- [6] Fröhlich D., Mohler E. et Wiesner P., *Phys. Rev. Lett.* **26** (1971) 554.  
Staginnus B., Fröhlich D. et Lapes T., *Rev. Sci. Instr.* **39** (1968) 1129.
- [7] Fröhlich D. et Nieswand W., *Phil. Mag* **70** (1994) 321.
- [8] Grun J.B., Hönerlage B. et Lévy R. dans Excitons, E.I. Rashba & M.D. Sturge, éditions North Holland Publish. Comp. Amsterdam, (1982) p. 459.
- [9] Vu Duy Phach, Bivas A., Hönerlage B. et Grun J.B., *Phys. Status Solidi (b)* **86** (1978) 159.
- [10] Hönerlage B., Vu Duy Phach, Bivas A. et Ostertag E., *Phys. Status Solidi (b)* **83** (1977) 101.
- [11] Itoh T., Suzuki T. et Ueta M., *J. Phys. Soc. Japan* **42** (1977) 1069.
- [12] Hönerlage B., Bivas A. et Vu Duy Phach, *Phys. Rev. Lett.* **41** (1978) 49.
- [13] Itoh T. et Suzuki T., *J. Phys. Soc. Japan* **45** (1978) 1939.
- [14] Nagasawa N., Mita T. et Ueta M., *J. Phys. Soc. Japan* **41** (1976) 929.
- [15] Ostertag E., *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980) 372.
- [16] Mita T., Satomé K. et Ueta M., *Solid State Commun.* **33** (1980) 1135.

- [17] Hönerlage B., Rössler U., Vu Duy Phach, Bivas A. et Grun J.B., *Phys. Rev. B* **22** (1980) 797. Bivas A., Vu Duy Phach, Hönerlage B., Rössler U. et Grun J.B., *Phys. Rev. B* **20** (1979) 3442.
- [18] Vu Duy Phach et Lévy R., *Solid State Commun.* **29** (1979) 247.
- [19] Lévy R., Hönerlage B. et Grun J.B., *Phys. Rev. Lett.* **44** (1980) 1355.
- [20] Hönerlage B., Lévy R. et Grun J.B., *Phys. Rev. B* **24** (1981) 3211.
- [21] Bigot J.Y. et Hönerlage B., *Phys. Status Solidi (b)* **121** (1983) 649.
- [22] Hönerlage B. et Bigot J.Y., *Phys. Status Solidi (b)* **123** (1984) 201.
- [23] Hönerlage B. et Bigot J.Y., *Phys. Status Solidi (b)* **124** (1984) 221.
- [24] Risken H., et Vollmer H.D., *Z. Phys. B*, **39** (1980) 339.
- [25] Grun J.B., Hönerlage B. et Lévy R., *Solid State Commun.* **46** (1983) 51.
- [26] Lévy R., Hönerlage B. et Grun J.B., *Helv. Acta Physica*, **58** (1985) 252.
- [27] Itoh T., Suzuki T. et Ueta M., *J. Phys. Soc. Japan*, **44** (1978) 345.
- [28] Itoh T. et Suzuki T., *J. Phys. Soc. Japan*, **45** (1978) 1939.
- [29] Lévy R., Hönerlage B. et Grun J.B. dans "Optical Nonlinearities and Instabilities in Semiconductors, H. Haug editeur, Academic Press, New York (1988)
- [30] Lévy R., Hönerlage B. et Grun J.B., *Solid State Commun* **29** (1979) 103 ; *Phys. Rev. B* **19** (1979) 2326
- [31] Lee M., Song O., Seo J., Kim D., Suh Y.D., Jin S.M. et Kim S.K., *Chem. Phys. Lett.* **196**, (1992) 4325.
- [32] Kost A., Tutt L., Klein M.B., Dougherty T.K. et Elias WE *Opt. Lett.* **18** (1993) 335.
- [33] Schell, J. Brinkmann D., Ohlmann D., Hönerlage B., Lévy R., Joucla M., Rehspringer J.L., Serughetti J. et Bovier C. *J. Chem. Phys.* **108** (1998) 8599.
- [34] Netiksis V., Hönerlage B., Weil R., Loison J.L., Grun J.B et Lévy R. *J. Appl. Phys.* **74** (1993) 5729.
- [35] Benhmida M., Netiksis V., Robino M., Grun J.B., Petrauskas M. et Hönerlage B., *J. Appl. Phys.* **80** (1996) 4632.
- [36] Pelant I., Ohlmann D., Cregut O., Granger R., Triboulet R. et Hönerlage B., *Solid. State Commun.* **85** (1993) 815.
- [37] Ohlmann D., Cregut O., Pelant I., Granger R., Triboulet R. et Hönerlage B., *J. Lumin.* **54**, (1993) 357.
- [38] Ohlmann D., Hönerlage B., Pelant I., Weil R. et Muranevich E, *Nonlinear Optics* **5** (1993) 235.
- [39] Sheik-Bahae M., Said A.A., Wei T-H, Hagan D.J., Van Stryland E.W., *IEEE Quant. Electron.* **26** (1990) 760.
- [40] Yaviv A., "Quantum Electronics", Wiley & Sons, New York, (1975).
- [41] Gilliot P., Merle J.C., Lévy R., M. Robino et Hönerlage B., *Phys. Stat. Solidi (b)* **153** (1989) 403
- [42] Gilliot P., Moniatte J., Cregut O. et Lévy R., *Phys. Stat. Solidi (b)* **164** (1997) 441.
- [43] Moniatte J., Gilliot P., Valenta J. et Ekimov A.I., *Optical Materials* **9** (1998) 516.
- [44] Lévy R., Hönerlage B. et Gilliot P., *Proc SPIE* **3277** (1998) 71.
- [45] Valenta J., Moniatte J., Gilliot P., Hönerlage B., Grun J.B., Lévy R. et Ekimov A.I., *Phys. Rev. B*, **57** (1998) 1774.
- [46] Valenta J., Moniatte J., Gilliot P., Lévy R., Hönerlage B. et Ekimov A.I., *Appl. Phys. Lett.* **70** (1997) 680.
- [47] Benoit à la Guillaume C., Debever J.M. et Salvan F., *Phys. Rev.* **177** (1969) 567.
- [48] Magde D. et Mahr H., *Phys. Rev. Lett.*, **24** (1970) 890.

- [49] Obayaski A. et Gunshor R.L., *Phys. Stat. Sol. (b)*, **159** (1990) 443.
- [50] Hvam J.M., *Phys. Stat. Sol. (b)*, **63** (1974) 511.
- [51] Presser N., Kudlek J., Gutowski J., *J. Lumin.* **53** (1992) 435.
- [52] Hönerlage B., Klingshirn C. et Grun J.B., *Phys. Stat. Sol. (b)* **78** (1976) 599.
- [53] Haug H. et Koch S., *Phys. Stat. Sol. (b)* **82** (1977) 531.
- [54] Klingshirn C., Maier W., Hönerlage B., Haug H. et Koch S.W., *Solid State Electr.* **21** (1978) 1357.
- [55] Hönerlage B. et Rössler U., *Molecular Spectro. of Dense Phase-Proc. 12th European Congress on Molecular Spectroscopy (1975)*. Elsevier, Amsterdam (1976) p. 105.
- [56] Klingshirn C., Lévy R., Grun J.B. et Hönerlage B., *Solid State Commun.* **20** (1976) 413.
- [57] Shaklee K.L., Leheny R.F. et Nahory R.E., *Phys. Rev. Lett.*, **26** (1971) 888.  
Shaklee K.L. et Leheny R.F., *Appl. Phys. Lett.*, **18** (1971) 475.
- [58] Shaklee K.L., Nahory R.E. et Leheny R.F., *J. Lum.*, **7** (1973) 284.
- [59] Valenta J., Guennani D., Manar A. et Hönerlage B., *Solid State Comm.* **98** (1996) 695.
- [60] Vlasov Yu., Luterova K., Pelant I., Hönerlage B. et Astratov V.N., *Appl. Phys. Lett* **71** (1997) 1616.
- [61] Tomashiunas R., Pelant I., Hönerlage B., Lévy R., Cloitre T., Aulombard R.L., *Phys. Rev. B* **57** (1998) 13077.
- [62] Eichler H.J., Günter P. et Pohl D.W. "Laser Induced Gratings" Springer Verlag, Berlin (1986).
- [63] Maker P.D. et Terhune R.W., *Phys. Rev. A*, **137** (1965) 801.
- [64] Yablonovitch E., Flytzanis C. et Bloembergen N., *Phys. Rev. Letters* **29** (1972) 865.
- [65] Faller P., Netiksis V., Grun J.B. et Hönerlage B., *J. Appl. Phys.* **74** (1993) 2748
- [66] Ghanassi M., Schame-Klein M.C., Hache F., Ekimov A.E., Ricard D. et Flytzanis C., Netiksis V., Grun J.B. et Hönerlage B., *J. Appl. Phys.* **74** (1993) 2748. *Appl. Phys. Lett.* **62** (1993) 78.
- [67] Lévy R., Gomes M.J.M, Kippelen B. et Hönerlage B., *Phys. Stat. Solidi (b)* **159** (1990) 391.
- [68] Lévy R., Hönerlage B. et Grun J.B., *Phys. Stat. Solidi (b)* **150** (1988) 825.
- [69] Eichler H.J. et Massman F., *J. Appl. Phys.* **53** (1982) 3237.
- [70] Kippelen B., Grun J.B., Hönerlage B. et Lévy R., *JOSA B* **8** (1991) 2363.
- [71] Riblet P., Spiegelberg Ch., Faller P., Gilliot P., Puls J., Henneberger F. et Hönerlage B., *Optical Materials* **3** (1994) 139.
- [72] Hönerlage B., *Optical Materials* **1** (1992) 133 ; *J. Luminescence* **54** (1992) 113.
- [73] Yu P.Y. et Evangelista F., *Solid State Commun.* **27** (1978) 87.
- [74] Vanagas E., Moniatte J., Mazilu M., Riblet P., Hönerlage B., Juodkasis S., Paille F., Plenet J.C., Dumas J., Petrauskas M. et Vaitkus J., *J. Appl. Phys.* **81** (1997) 3586.
- [75] Yajima T. et Souma H., *Phys. Rev. A*, **17** (1978) 309.
- [76] Tomashiunas R., Moniatte J., Pelant J., Gilliot P. et Hönerlage B., *Appl. Phys. Lett.* **86** (1996) 3296.
- [77] Jungnickel V., Henneberger F., Riblet P. et Hönerlage B., *Proc. Int. Conf. Opt. Properties of Nanostructures, Sendai (1994)* ; *Jap. Journ. Applied Phys.* **34** (1995) 281.
- [78] Hönerlage B., Lévy R. et Grun J.B., *Optics Commun.* **43** (1982) 443.
- [79] Hönerlage B., J.Y. Bigot, Lévy R., Tomasini F. et Grun J.B., *Solid State Commun.* **48** (1983) 803.



## **Effets non linéaires en optique guidée**

G. Vitrant

*Laboratoire d'Électromagnétisme, Micro-ondes, Optoélectronique (LEMO), UMR 5530, École Nationale Supérieure d'Électronique et de Radio-Électricité de Grenoble, BP. 257, 23 avenue des Martyrs, 38016 Grenoble cedex 01, France*

**Résumé :** Les non-linéarités sont largement présentes dans le monde qui nous entoure et font l'objet d'études de plus en plus approfondies. Malgré des non-linéarités très faibles, l'optique n'est pas en reste et a permis de mettre en évidence et d'exploiter des manifestations spectaculaires, mélanges de fréquences, effets paramétriques, etc. C'est l'avènement des lasers qui a permis la découverte des non-linéarités optiques de volume, grâce à une augmentation des puissances optiques disponibles. Quant à elle, l'optique guidée a récemment permis d'ouvrir de nouveaux horizons à l'optique non linéaire, cette fois-ci en permettant de réaliser un rêve, celui de propager la lumière sur de grandes longueurs en s'affranchissant de la diffraction et de renforcer les effets non linéaires par accumulation. Toutefois ce domaine des effets non linéaires en optique guidée n'est sans doute encore qu'émergent, ainsi qu'en atteste la proportion élevée d'articles théoriques. De nombreuses réalisations expérimentales attractives demeurent irréalisables à cause d'exigences technologiques difficiles à atteindre. Le but du cours est de donner au lecteur un aperçu des résultats marquants des quinze dernières années et des tendances actuelles, en se limitant aux non-linéarités cubiques. Le choix a été fait d'aborder la plupart des aspects en privilégiant une description qualitative des phénomènes et une analyse intuitive des concepts, nécessairement incomplète, et de renvoyer le lecteur à des références pour plus de détails. La propagation en régime soliton, les non-linéarités dans les fibres, les dispositifs pour le traitement tout optique du signal, les effets spatiaux et dynamiques dans les coupleurs distribués, la spectroscopie des lignes noires figurent parmi les thèmes abordés.

### **1. INTRODUCTION**

L'apparition de l'optique comme discipline des sciences non linéaires ne date que de 1962. Cela faisait déjà longtemps que les phénomènes non linéaires étaient étudiés dans d'autres domaines de la physique, mécanique, acoustique, dynamique des fluides, électronique, ou de la chimie. En règle générale les non-linéarités optiques sont faibles et nécessitent des champs optiques importants pour être mis en évidence.

Rapidement l'optique n'a pas été qu'une nouvelle discipline non linéaire mais a constitué un nouveau champ d'investigation qui a permis de mettre en évidence de nouvelles manifestations non linéaires. La possibilité du mélange d'ondes par une non-linéarité du deuxième ordre est tout à fait générale. Par contre, le renforcement considérable de cet effet lorsque les différentes ondes en présence se propagent en synchronisme est une spécificité de l'optique. L'autofocalisation d'une onde grâce à son interaction avec le milieu non linéaire ou

l'émergence d'une onde avec une phase renversée par rapport à l'onde incidente sont des manifestations non linéaires qui étaient inconnues avant l'étude des non-linéarités en optique.

Les années 80 ont vu émerger de nouveaux thèmes de recherche particulièrement fascinants en optique non linéaire comme le développement de sources cohérentes largement accordables par oscillation paramétrique ou celui des impulsions ultracourtes. C'est aussi de cette période que date l'intérêt pour les non-linéarités dans des guides d'ondes optiques ou des fibres optiques. Il s'agit là encore d'un thème particulièrement riche. Sans l'introduction des non-linéarités en optique guidée, toute cette physique fascinante des solitons n'aurait pas été possible, sans oublier leur potentiel pour les communications longues distances.

Après une description des concepts généraux de l'optique guidée et intégrée linéaire et non linéaire dans la partie 2, le cours abordera les manifestations non linéaires. La mise en œuvre de matériaux à non-linéarités quadratiques dans des guides d'ondes fait l'objet d'un autre chapitre de cet ouvrage [1]. Aussi nous ne parlerons ici que des non-linéarités cubiques. Après une brève partie sur les modulateurs (partie 3), nous nous intéresserons aux solitons spatiaux et temporels qui constituent l'une des manifestations non linéaires les plus spectaculaires et les plus importantes en optique non linéaire guidée (partie 4). La réalisation de dispositifs non linéaires pour le traitement tout optique ultrarapide du signal constitue un autre domaine d'utilisation des non-linéarités cubiques qui doit tirer profit de l'optique intégrée. Ce sujet sera l'objet de la partie 5. Enfin les coupleurs distribués non linéaires et leurs applications pour la spectroscopie ou le renforcement des non-linéarités seront décrits dans la partie 6.

## 2. CONCEPTS GÉNÉRAUX À L'OPTIQUE NON LINÉAIRE GUIDÉE.

### 2.1 Intérêt de l'optique intégrée pour l'optique non linéaire

Les non-linéarités optiques étant généralement faibles, il est particulièrement important de les exploiter au mieux dans des configurations optiques judicieusement choisies. À cet égard, la géométrie du guide d'onde paraît très avantageuse. Elle permet de concentrer la lumière dans la faible section du guide dont la surface est typiquement de quelques microns carrés. Plus encore, la spécificité unique du guide d'onde est d'autoriser la propagation de la lumière comme s'il n'y avait pas de diffraction, c'est-à-dire de maintenir le fort confinement latéral sur une grande longueur de propagation, ce qui est impossible en optique de volume. La figure 1 illustre cet avantage en comparant la propagation en optique de volume, dans un guide planaire et dans un guide confiné dans les deux dimensions transverses. Pour la non-linéarité optique de Kerr, l'effet non linéaire total (déphasage cumulé par exemple) est proportionnel à l'éclairement et à la longueur de propagation,  $L$ . À cause de la diffraction,  $L$  est limitée dans les deux premiers cas à  $w^2/\lambda$  où  $w$  est la largeur du faisceau. La configuration planaire permet déjà de renforcer la non-linéarité dans un rapport  $w/h$  où  $h$  est l'épaisseur du guide. Dans la configuration du guide canal, il n'y a plus de diffraction et la longueur  $L$  peut être aussi grande qu'on le veut. Toutefois d'autres limitations existent, par exemple celles liées aux pertes linéaires et non linéaires de propagation qui seront analysées au paragraphe 5.1.

## 2.2 Guide d'onde linéaire – optique intégrée.

De nombreuses technologies ont maintenant acquis un degré de maturité suffisante pour qu'on puisse considérer la fabrication de composants d'optique intégrée simple comme quasiment standard. Dans tous les cas il s'agit de fabriquer une "circuiterie" optique sur un substrat

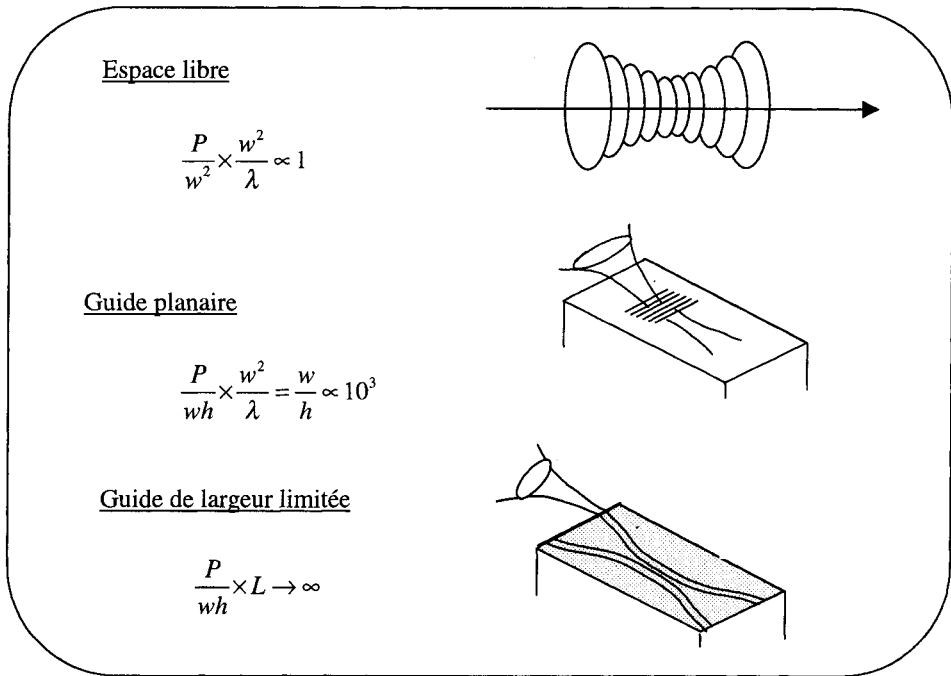


Figure 1 : Renforcement du champ dans un guide d'onde

planaire, un peu comme en microélectronique mais pour les photons. Les guides sont généralement constitués d'un cœur dont l'indice est plus élevé que le milieu environnant. La figure 2 donne une représentation schématique du profil d'indice pour des guides planaires (à gauche) ainsi que pour quelques guides de largeur limitée (à droite). La marche visible à droite des graphes pour les guides planaires figure la présence d'un prisme de haut indice. Ce prisme permet l'excitation des ondes guidées par effet tunnel optique selon une configuration appelée coupleur distribué et qui sera décrite en détail dans la partie 6

## 2.3 Guide d'onde non linéaire - intégrale de recouvrement.

En présence d'un effet non linéaire, la structure guidante sera plus ou moins sensible suivant la conception de la structure. La polarisation non linéaire induite dans la structure constitue une modification du guide d'onde. La théorie des modes couplés montre qu'il est encore possible

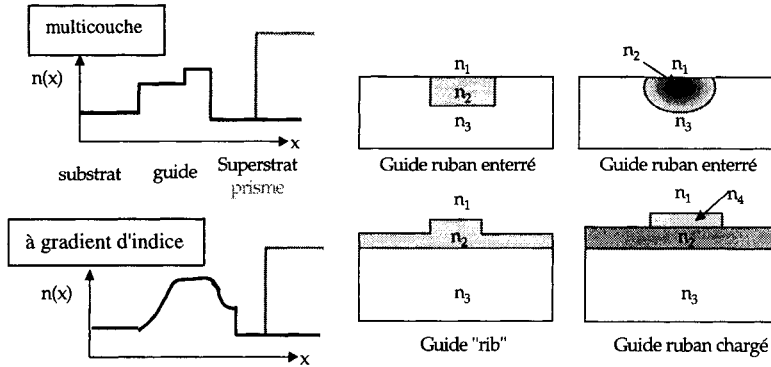


Figure 2 : Profils d'indice de guides d'ondes planaires (à gauche) et confinés (à droite).

de décomposer le champ sur les modes de la structure non perturbée, c'est-à-dire linéaire. En régime stationnaire, l'amplitude  $a_m$  d'un mode propre, par exemple un mode guidé, évolue au cours de la propagation selon  $z$ , suivant l'équation différentielle :

$$N_m \frac{da_m}{dz} = jN_m \gamma_m a_m - j\omega \langle \vec{E}_m \cdot \vec{P}^{NL} \rangle \quad (1)$$

dans laquelle  $\gamma_m$  désigne la constante de propagation du mode et  $N_m$  sa constante de normalisation. Le dernier terme de l'équation (1) représente la projection de la polarisation non linéaire (à la pulsation  $\omega$  considérée) sur la carte de champ du mode guidé et est appelé intégrale de recouvrement. Cette équation de base est donnée ici en raison de sa richesse et de sa simplicité. Délibérément nous épargnerons au lecteur l'établissement de cette équation qui nécessite de rentrer en détails dans la théorie des modes couplés. Le lecteur intéressé pourra consulter les références [2].

L'équation (1) permet de décrire tous les types d'interactions non linéaires. Il est toutefois nécessaire d'en préciser la nature pour aller plus avant dans l'analyse physique. Prenons l'exemple du mélange à trois ondes par la non-linéarité du deuxième ordre à l'origine de l'amplification paramétrique optique [3] ou de la génération de deuxième harmonique quand deux fréquences sont dégénérées. À la pulsation  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  la polarisation non linéaire est proportionnelle au produit  $[\chi^{(2)}] \cdot \vec{E}_n(\omega_1) \cdot \vec{E}_p(\omega_2)$  du tenseur non linéaire par les cartes de champ des modes  $n$  et  $p$  respectivement à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Toutes ces grandeurs sont fonctions des coordonnées transverses,  $x$  et/ou  $y$  suivant qu'il s'agit d'un guide planaire ou confiné latéralement. L'intégrale de recouvrement fait intervenir le produit des trois cartes de champ aux trois fréquences considérées. On voit ainsi apparaître la double problématique liée à la mise en œuvre des non-linéarités quadratiques dans des guides d'ondes : réaliser l'accord de phase longitudinal, comme en optique de volume, mais aussi s'assurer que l'intégrale de recouvrement est aussi grande que possible. Ces aspects sont décrits plus en détails par De Micheli dans cet ouvrage [1] à partir de réalisations expérimentales sur niobate de lithium.

Dans ce chapitre nous nous concentrerons essentiellement sur les non-linéarités d'ordre 3. L'un des effets essentiels est la non-linéarité optique de Kerr qui peut être vue comme une modification  $\Delta n(x, y)$  de l'indice de réfraction du matériau sous l'effet de la lumière :

$$\Delta n(x, y) = n_2(x, y) |E_m(x, y)|^2 \quad (2)$$



où  $n_2$  est le coefficient Kerr et  $E_m$  la carte de champ du mode guidé considéré, supposé polarisé TE. Dans ce cas particulier l'intégrale de recouvrement prend une forme simple qui se déduit aisément en traitant de manière perturbative la variation  $\Delta n$  d'indice (équation 2). En effet, dans l'approximation scalaire, les modes guidés sont donnés par les valeurs propres d'une équation de propagation qui est analogue à l'équation de Schrödinger :

$$\frac{d^2 E_m}{dx^2} + \frac{d^2 E_m}{dy^2} + [k^2 n^2(x, y) - \beta^2] E_m = 0 \quad (3)$$

avec  $k = 2\pi/\lambda$  et  $\beta = k n_{eff}$  où  $n_{eff}$  est l'indice effectif du mode guidé. La valeur de  $-\beta^2$  correspond à un niveau d'énergie dans le potentiel  $V = -k^2 n^2$ . La théorie des perturbations stationnaires [4] conduit à une expression de la variation de l'indice effectif du mode :

$$\Delta n_{eff} = \frac{1}{n_{eff}} \frac{\iint n(x, y) |E_m(x, y)|^2 \Delta n(x, y) dx dy}{\iint |E_m(x, y)|^2 dx dy} \quad (4)$$

L'équation (4) montre qu'il est nécessaire d'optimiser le recouvrement entre la variation d'indice et la carte de champ du mode. Cette équation s'applique à tous les cas de variation d'indice, qu'il s'agisse d'un capteur basé sur un effet réfractif, d'un modulateur électro-optique dans lequel l'indice d'un matériau est modifié par une tension appliquée ou d'une non-linéarité optique de Kerr. Dans ce dernier cas  $\Delta n$  doit être remplacé par l'équation (2). L'usage est de définir aussi  $n_2$  comme  $\Delta n = n_2 I$  où  $I$  est l'intensité lumineuse, au lieu de  $\Delta n = n_2 |E|^2$  ce qui ne prête généralement pas à ambiguïté. Dans le cas d'une onde guidée on peut alors écrire :

$$\Delta n = n_2 I = n_2 \frac{\epsilon_0 c}{2} n_{eff} |E_m(x, y)|^2 |A_g|^2 \quad (5)$$

où  $A_g$  est l'amplitude guidée. En reportant (5) dans (4), on peut introduire un indice non linéaire effectif tel que :

$$\Delta n_{eff} = n_{2eff} P_g \quad (6)$$

où  $P_g$  est la puissance guidée dont l'expression en polarisation TE est :

$$P_g = \frac{\epsilon_0 c}{2} n_{eff} \left[ \iint |E_m|^2 dx dy \right] |A_g|^2 \quad (7)$$

Le coefficient non linéaire effectif est alors donné par l'expression (8) dans laquelle  $n_2$  est défini en intensité. Dans le cas où le milieu non linéaire est homogène, il est intéressant d'introduire une aire effective non linéaire  $A_{eff}$ , définie par la seconde égalité de l'équation (8). Cette notion d'aire effective permet d'apprécier directement le confinement optique dans le guide d'onde.

$$n_{2eff} = \frac{1}{n_{eff}} \frac{\iint n n_2 |E_m|^4 dx dy}{\left[ \iint |E_m|^2 dx dy \right]^2} = \frac{n_2}{A_{eff}} \quad (8)$$

### 3. MODULATEURS, COMMUTATEURS ET DÉFLECTEURS.

Les recherches sur les matériaux non linéaires efficaces trouvent, entre autres, des applications dans ces dispositifs "actifs" en optique intégrée. Plusieurs effets physiques peuvent être utilisés pour modifier les conditions de propagation de la lumière : électro-optique, acousto-optique ou thermo-optique.

Le montage de base pour réaliser un modulateur électro-optique intégré consiste à utiliser un interféromètre de Mach-Zehnder réalisé dans un matériau électro-optique et dont l'indice de l'un des bras est modulé par l'application d'une tension (figure 3).

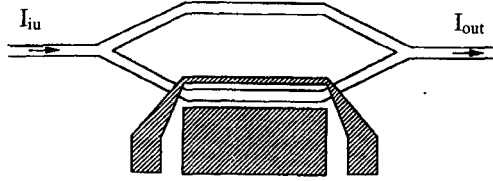


Figure 3 : Modulateur électro-optique basé sur un interféromètre de Mach-Zehnder.

La transmission est donnée par :

$$T = \frac{I_{out}}{I_{in}} = \cos^2 \left( \frac{\pi V}{2 V_{\pi}} \right) \quad \text{avec} \quad V_{\pi} = \frac{\lambda}{L} \frac{1}{n^3 r} \eta G \Gamma \quad (9)$$

dans laquelle  $V$  est la tension appliquée,  $G$  la distance entre électrodes,  $L$  la longueur de propagation,  $r$  le coefficient électro-optique et  $\Gamma$  l'intégrale de recouvrement entre le mode optique guidé et le matériau électro-optique.

L'optique guidée présente sur l'optique de volume trois avantages essentiels :

- a) réduction de la tension de commande.
- b) réduction de la puissance de commande.
- c) possibilité d'intégration de plusieurs fonctions.

La réduction de la puissance de commande constitue un avantage incontournable de l'optique guidée. En effet la puissance par bande passante consommée dans un modulateur de section  $a.b$  et de longueur  $L$  vaut :

$$P/\Delta f = \frac{4 \cdot 10^9}{\pi} \frac{\epsilon_o \epsilon \lambda_o^2}{n^6 r^2} ab \frac{1}{L} \quad (10)$$

En espace libre, les dimensions transverses  $a$  et  $b$  ne peuvent pas être réduites en dessous de  $\sqrt{2L\lambda/n}$  à cause de la diffraction. Dans un guide d'onde,  $a$  et  $b$  peuvent être réduits à des valeurs de l'ordre de  $\lambda$ . Pour  $\text{LiNbO}_3$  on obtient une puissance consommée de l'ordre de 20 mW/MHz en espace libre alors qu'elle est environ 1000 fois plus faible en configuration guidée. On a là une première illustration de l'avantage fondamental que présente l'utilisation d'un guide d'onde dans lequel la propagation se fait sans diffraction.

De nombreux efforts portent sur le développement de modulateurs électro-optiques efficaces. Des modulateurs électro-optiques sur  $\text{LiNbO}_3$  avec des bandes passantes de plus de 20 GHz sont actuellement commercialement disponibles. Une des tendances actuelles consiste à utiliser comme matériau électro-optique des polymères qu'ils soient à matrice organique ou inorganique (par exemple silice fabriquée par procédé sol-gel). L'avantage de cette approche réside dans les perspectives d'intégration de plusieurs fonctions sur un même substrat. Ceci peut être obtenu en déposant une couche de polymère sur un circuit d'optique intégré dans lequel on aura au préalable aménagé des zones d'interaction électro-optique à certains endroits, par exemple au moyen d'ouvertures dans une couche protectrice. Ainsi on peut ajouter la fonction électro-optique à des technologies bien adaptées à la réalisation de composants passifs ou amplificateurs. Parmi de nombreux travaux qu'il n'est pas possible de mentionner exhaustivement ici, citons ceux de Faderl et al. [5] qui illustrent bien les problèmes posés : l'optimisation de l'intégrale de recouvrement  $\Gamma$ , et la transition entre le

guide passif et la structure guidante électro-optique. La structure schématisée sur la figure 4 montre une transition entre un guide ruban en  $\text{Si}_3\text{N}_4$  entouré de silice (à gauche) et le même ruban recouvert d'une couche de polymère électro-optique, ici PU11. Une transmission optique de 92.5% à la transition est ainsi obtenue par un bon recouvrement des cartes de champ (figure 4b).

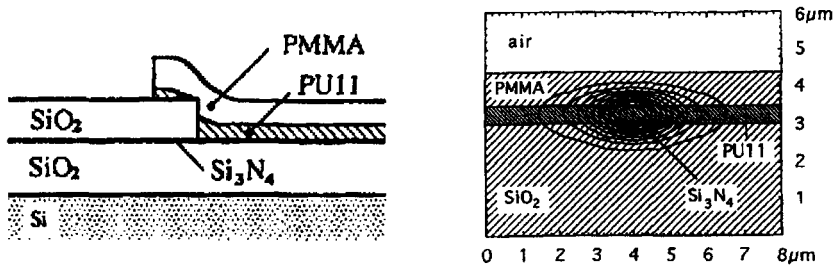


Figure 4 : Transition entre un guide passif en  $\text{Si}_3\text{N}_4$  et un guide électro-optique en polymère (d'après [5]).

D'autres solutions ont été récemment proposées. Certaines utilisent des guides en polymères réalisés par photoblanchiment [6].

La déflexion d'un faisceau lumineux est un autre exemple d'application qui peut tirer profit de la spécificité unique du guide d'onde de constituer un milieu artificiel de propagation sans diffraction. Le principe, basé sur le découplage d'un onde guidée au moyen d'un coupleur distribué (voir section 6) à prisme ou à réseau est illustré sur la figure 5. L'angle d'émergence dépend de l'indice effectif de propagation du mode guidé, lui-même lié à la variation d'indice  $Dn$  qu'il est possible de produire dans le matériau électro-optique. L'amplitude de la déflexion est alors inévitablement limitée à  $\Delta\theta_{defl} = \Gamma \Delta n / \cos(\theta)$ . Au contraire la divergence du faisceau émergent  $\Delta\theta_{div} = \lambda / (\pi L)$  est inversement proportionnelle à la longueur  $L$  de découplage. En l'absence de diffraction il est possible d'augmenter indéfiniment (avec cependant des limitations technologiques et pratiques!) la longueur de découplage et donc d'augmenter le nombre de points angulaires qu'il est possible de résoudre :  $N_{res} = \Delta\theta_{defl} / \Delta\theta_{div}$ .

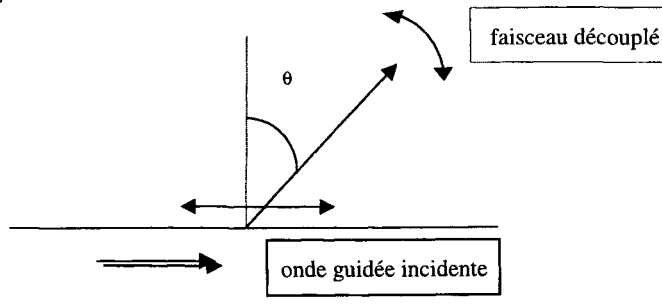


Figure 5 : Principe d'un déflecteur électro-optique.

#### 4. LES SOLITONS SPATIAUX ET TEMPORELS

La première observation d'un onde "solitaire" se propageant dans un milieu non linéaire date de J.S. Russel [7]. Il ne s'agissait pas d'optique mais d'une vague se propageant à la surface de

l'eau d'un canal. C'est sans doute grâce à l'optique guidée, notamment dans les fibres optiques, que cette manifestation "exotique" n'est pas restée une curiosité d'intérêt académique. Malgré une non-linéarité très faible ( $n_2 = 0.6 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{V}^2$ ), les faibles pertes de propagation dans les fibres optiques permettent d'obtenir des déphasages non linéaires cumulés de plusieurs  $\pi$  et donc d'explorer ce domaine extraordinaire de la propagation en régime de soliton. L'un des objectifs de cette section est de dégager les concepts nouveaux associés aux solitons et de montrer leur potentiel. De plus, les effets non linéaires cubiques, justement ceux qui sont à l'origine des solitons, sont très importants en pratique dans les systèmes de communication à fibre. Il est essentiel de comprendre quelles distorsions ils induisent sur le signal optique transporté. Les solitons eux-mêmes constituent un moyen de transporter des informations avec un haut débit temporel. Après une baisse d'engouement pour les transmissions par solitons temporels optiques au début des années 90, on assiste depuis quelques années à un retour en force de ce concept avec les fibres à dispersion contrôlée. Dans le domaine de l'optique intégrée planaire, le soliton spatial est l'équivalent spatial du soliton temporel.

#### 4.1 Introduction aux solitons [8].

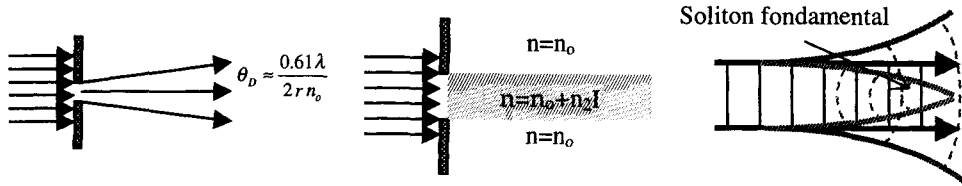
On fait généralement la différence entre onde solitaire et soliton. La différence est plus que sémantique et reflète des différences profondes dont l'exposé complet dépasse de beaucoup le cadre de ce chapitre. Une onde solitaire est une onde capable de se propager sans déformation. Il peut s'agir d'une impulsion brève qui se propage sans s'étaler dans un milieu dispersif (soliton temporel), ou d'un faisceau stationnaire qui se propage sans divergence (soliton spatial). Dans tous les cas une non-linéarité est nécessaire pour compenser l'étalement qui existe en régime linéaire. On parle alors d'onde solitaire.

En optique linéaire, par définition, deux faisceaux ou impulsions peuvent se croiser sans interagir. En régime non linéaire, il en va tout autrement puisque le terme non linéaire est justement sensible à l'intensité totale du champ et couple donc les amplitudes des différentes composantes en présence, qu'il s'agisse d'une décomposition en intégrale de Fourier ou autre. Les solitons, bien qu'existant en régime non linéaire, ont la propriété extraordinaire de pouvoir survivre à un croisement, quoique étant légèrement perturbés. Il s'agit d'une propriété essentielle qui repose sur le fait que les équations différentielles auxquelles obéissent la propagation sont intégrables [9,10].

#### 4.2 Solitons spatiaux

Un faisceau de largeur limitée se propage en obéissant aux lois de la diffraction (figure 6a), caractérisée par la longueur de Rayleigh  $L_D \approx r/\theta_D \approx 2n_o r^2/\lambda$  où  $r$  est le rayon de l'ouverture. C'est la longueur de propagation au bout de laquelle le diamètre du faisceau a été multiplié par deux. Dans le cas où un milieu à non-linéarité positive est placé à droite de l'ouverture (figure 6b), le faisceau induit une augmentation d'indice  $\Delta n = n_2 I$ . L'angle critique de réflexion totale entre les deux milieux,  $\theta_c = \sqrt{2\Delta n/n_o}$  permet de définir une longueur caractéristique d'autofocalisation,  $L_{NL} = r/\theta_c$ . L'onde solitaire (fig. 6c) correspond à un équilibre entre diffraction et auto-focalisation :  $\theta_c = \theta_D$  ou  $L_{NL} = L_D$  d'où l'on déduit l'intensité d'autofocalisation :

$$I = \frac{\pi\lambda^2}{8n_o n_2 r^2} \quad (11)$$



**Figure 6 :** Propagation d'un faisceau en régime : (a) linéaire, (b) non linéaire, (c) soliton.

Les solitons spatiaux ont la propriété remarquable d'être instables en espace libre (2D) alors qu'ils sont stables en 2D, par exemple dans un guide planaire. Cette propriété repose fondamentalement sur des considérations de stabilité de l'équation de Schrödinger non linéaire. Il est toutefois aisé d'en comprendre les fondements physiques à partir des considérations ci-dessus. En espace libre, un faisceau soliton de diamètre  $2r$  doit transporter la puissance  $P_c = \pi r^2 I$  où  $I$  est donné par l'équation (11). La puissance  $P_c$  est donc fixée. Si la puissance effectivement transportée par le faisceau est supérieure à  $P_c$ , l'autofocalisation l'emporte sur la diffraction et le faisceau converge. Dans ce modèle rien n'arrête la concentration de l'énergie qui sera limitée de fait par des termes non linéaires d'ordres supérieurs ou un claquage du matériau par exemple. Dans un guide d'onde planaire, la lumière est confinée selon la direction  $x$  perpendiculaire à la couche dans un mode de dimension  $2h$ . La puissance transportée,  $P_c = \pi r h I$  est alors inversement proportionnelle au diamètre  $2r$  du faisceau guidé. Un raisonnement analogue au précédent permet de conclure que le soliton est stable.

La première observation expérimentale de solitons spatiaux est due à Barthélémy et al. [11] qui ont utilisé un montage expérimental particulièrement ingénieux et élégant. Un système de franges d'interférences induit une stratification "optique" d'un milieu initialement homogène, de sorte que la lumière se propage comme si elle se trouvait dans un milieu bidimensionnel. Il est alors possible d'observer des solitons spatiaux stables. D'autres mises en évidence dans des guides d'ondes non linéaires ont suivi, notamment dans des verres [12,13] et plus récemment dans des guides d'AlGaAs [14].

### 4.3 Solitons temporels

Dans le cas des solitons temporels il s'agit de compenser la dispersion naturelle du milieu de propagation par l'effet non linéaire. La dispersion de vitesse de groupe se caractérise par :

$$\beta_2 = -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} = \frac{2}{c} \frac{dn}{d\omega} + \frac{\omega}{c} \frac{d^2n}{d\omega^2} \quad (12)$$

où  $n$  doit être compris comme l'indice effectif du mode dès lors qu'on parle de propagation guidée. Il y a deux cas où l'on peut observer des solitons temporels. En régime de dispersion

anormale ( $\beta_2 < 0$ ) en présence d'une non-linéarité positive. C'est le cas le plus courant que l'on rencontre en particulier dans les fibres optiques qui possèdent un régime de dispersion anormale, pour  $\lambda \geq 1.3 \mu\text{m}$ , dans la bande de transparence, grâce à la contribution de la dispersion modale. La deuxième combinaison qui permet d'obtenir un soliton temporel correspond à l'association d'une non-linéarité négative et d'un milieu de propagation de dispersion normale ( $\beta_2 > 0$ ) [15]. Dans les deux autres cas, la non-linéarité ne fait que renforcer la dispersion linéaire qui se traduit par un élargissement temporel de l'impulsion.

La figure 7 illustre le principe du soliton temporel dans le cas d'une dispersion anormale. En régime linéaire (a), la partie "bleue" du spectre se propage plus vite que la partie "rouge" de sorte que l'impulsion arrive déformée après propagation. En présence d'une non-linéarité, l'onde arrive en plus avec un déphasage non linéaire  $\Delta\phi = k.n_2.I.L$ , après propagation sur une longueur  $L$ . Ce déphasage dépend de l'intensité lumineuse et est donc plus important au centre de l'impulsion que sur les bords. Pour une impulsion gaussienne, il aura l'allure présentée sur la courbe du haut de la figure 7b. Par définition, la dérivée de ce déphasage donne la variation de la fréquence instantanée, due à la non-linéarité (fig. 7b).

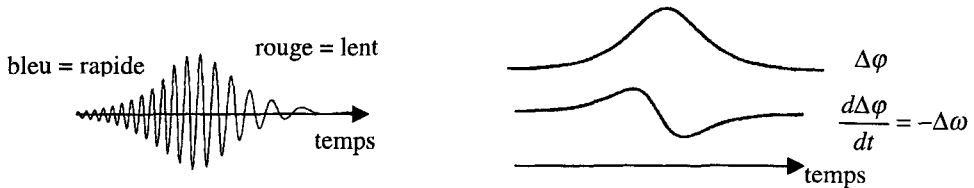


Figure 7 : Déformation d'une impulsion temporelle dans les cas : (a) linéaire, (b) non linéaire.

On voit alors que le déphasage non linéaire peut compenser l'effet de la dispersion, comme schématiquement présenté sur la figure 8.

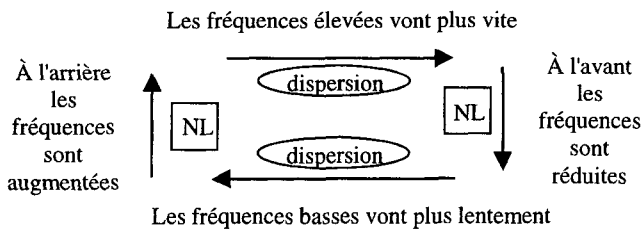


Figure 8 : Soliton temporel : équilibre entre dispersion et décalage non linéaire de fréquence.

#### 4.4 Équation de Schrödinger non linéaire.

Les sections 4.1 et 4.2 ci-dessus ont l'avantage de présenter simplement les concepts physiques en jeu mais deviennent insuffisants pour une analyse quantitative. Le parallélisme entre solitons spatiaux et temporels se retrouve dans le cadre commun de l'équation de Schrödinger non linéaire qui les décrit. Dans le cas spatial, en régime stationnaire, deux dimensions sont à prendre en compte, la direction de propagation ( $z$ ) et une dimension

transverse ( $x$ ). Dans le cas temporel il s'agira de  $t$  et de  $z$ . En régime linéaire une décomposition en ondes planes, caractérisées par la composante transverse  $k_x$  du vecteur d'onde, permet de décrire la propagation d'un faisceau dont l'amplitude du champ électrique est notée  $a(z, x)$  :

$$\frac{d}{dz} a(z, k_x) = i\beta(k_x) a(z, k_x) \quad (13)$$

La composante longitudinale  $\beta$  du vecteur d'onde est elle-même une fonction de  $k_x$  dont on peut obtenir une expression approchée :

$$\beta(k_x) = \sqrt{k_o^2 - k_x^2} \approx k_o - \frac{1}{2k_o} k_x^2 \quad \text{soit} \quad \frac{d\beta}{dk_x} = 0, \quad \frac{d^2\beta}{dk_x^2} = -\frac{1}{k_o} \quad (14)$$

Une transformation de Fourier de (13) en tenant compte de (14) donne l'équation d'évolution spatio-temporelle de l'amplitude de l'onde :

$$i \frac{\partial}{\partial z} a(z, x) + \frac{1}{2k_o} \frac{\partial^2 a}{\partial x^2} = 0 \quad (15)$$

Il reste à tenir compte du déphasage non linéaire qui est défini dans l'espace réel par :

$$\Delta a = i\kappa |a(z, x)|^2 a \Delta z \quad \text{avec} \quad \kappa = \frac{\partial k_o}{\partial |a|^2} = k_o n_2 \frac{\epsilon_o c}{2} \frac{n_{\text{eff}}}{A_{\text{eff}}} \quad (16)$$

pour obtenir l'équation d'évolution non linéaire, appelée Schrödinger non linéaire :

$$i \frac{\partial}{\partial z} a(z, x) + \frac{1}{2k_o} \frac{\partial^2 a}{\partial x^2} + \kappa |a|^2 a = 0 \quad (17)$$

Dans le cas des solitons temporels,  $k_x$  doit être remplacé par  $\omega$  dans les équations (13) et (14) qui deviennent :

$$\frac{d}{dz} a(z, \omega) = i\beta(\omega) a(z, \omega) \quad (18)$$

$$\beta(\omega) \approx \beta_o + \frac{1}{v_g} \Delta\omega + \frac{\beta_2}{2} \Delta\omega^2 \quad \text{soit} \quad \frac{d\beta}{d\omega} = \frac{1}{v_g}, \quad \frac{d^2\beta}{d\omega^2} = \beta_2 \quad (19)$$

L'équation d'évolution d'une impulsion temporelle dans un milieu dispersif obéit à l'équation (20) formellement équivalente à (17) :

$$i \frac{\partial}{\partial z} a(z, t) - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 a}{\partial t^2} + \kappa |a|^2 a = 0 \quad (20)$$

On voit toutefois apparaître une différence entre solitons spatiaux et temporels, avec le signe du terme non linéaire. Il est toujours positif dans le cas spatial (la divergence ne peut faire que s'étaler un faisceau) alors qu'il peut être positif ou négatif dans le cas temporel suivant le signe de  $\beta_2$ . De là découle le fait déjà mentionné, que les solitons temporels peuvent exister quel que soit le signe de  $n_2$ .

L'équation de Schrödinger non linéaire supporte des solutions particulières qui se propagent sans déformation, appelées ondes solitaires. Dans ce cas, il est possible de montrer que l'équation de Schrödinger non linéaire est intégrable et on peut parler de solitons.

On déduit respectivement des équations (17) et (20) l'expression du champ associée au soliton brillant fondamental qui constitue une solution particulière de ces équations. Prenons l'exemple du cas temporel (le cas spatial étant analogue) :

$$a(z,t) = A_0 \operatorname{sech} \left( \frac{t}{\tau} \right) \exp \left( i \frac{\kappa |A_0|^2}{2} z \right) \text{ avec } \frac{1}{\tau^2} = -\frac{\kappa |A_0|^2}{\beta_2} \quad (21)$$

Bien sûr, le produit  $\beta_2 \cdot \kappa$  doit être négatif. Le soliton a une enveloppe en *sech* mais une largeur quelconque. Par contre, afin d'assurer l'équilibre entre dispersion (resp. divergence) et non-linéarité, la puissance crête est inversement proportionnelle à la durée (resp. largeur) du soliton. L'énergie véhiculée dans l'impulsion que constitue le soliton temporel est alors inversement proportionnelle à la durée :

$$E = 2\tau |A_0|^2 = 2 \frac{|\beta_2|}{\kappa \tau} \quad (22)$$

La caractéristique extraordinaire des solitons, qui fait tout leur intérêt est leur robustesse. De manière assez surprenante, l'injection d'un soliton spatial ou temporel avec un profil d'excitation même assez éloigné de celui de ce soliton conduira, après une certaine distance de propagation, au profil du soliton. La raison repose sur l'intégrabilité déjà mentionnée de l'équation de Schrödinger non linéaire. En termes simples, le profil d'excitation peut se décomposer sur le soliton + d'autres ondes. Cette dernière composante va s'étaler temporellement (resp. spatialement) et donc se "diluer" par rapport au soliton qui va rester confiné.

#### 4.5 Implications pour les télécommunications optiques.

Dans les systèmes de communications optiques, les puissances utilisées peuvent être telles que les effets non linéaires d'ordre 3 ne peuvent plus être ignorés [16]. Il peut s'agir de l'automodulation de phase, responsable d'un élargissement spectral des impulsions (cf. section 4.2). Les composantes spectrales ainsi générées ne se propagent plus à la même vitesse et conduisent à un étalement temporel qui peut devenir responsable d'une augmentation du taux d'erreurs du système de transmission. Il peut s'agir aussi du mélange à quatre ondes entre les divers canaux d'un système fonctionnant en multiplexage de longueur d'onde. Cet effet sera responsable de diaphonie entre les différents canaux.

L'idée de tirer profit de la non-linéarité de la fibre optique et d'utiliser les solitons temporels pour transporter l'information remonte au début des années 70 [17]. Cette idée était rendue possible par l'introduction de la fibre optique monomode à très faibles pertes. À la fin des années 80, une autre révolution technologique a rendu cette idée de la transmission par soliton particulièrement attractive. C'est la mise au point d'amplificateurs optiques fiables par émission stimulée [18]. Une solution d'ores et déjà industriellement utilisée consiste à utiliser des fibres dopées Erbium et des solutions plus compactes en optique intégrée sont maintenant disponibles. Par exemple des systèmes de communication transatlantiques (TAT-12/TAT-13) actuellement utilisés utilisent une cascade de 140 amplificateurs optiques pour 6500 km. L'amplification tout optique s'effectue sans passage par l'électronique et le mécanisme d'amplification par émission stimulée présente une bande passante suffisamment large pour autoriser l'amplification d'impulsions solitoniques brèves (dans le domaine picoseconde).

Cette possibilité de transmission à haut débit temporel est séduisante. Toutefois jusqu'à ces dernières années, les solutions à base de solitons temporels n'avaient pas la faveur, en grande partie à cause de limitations fondamentales. La principale, appelée effet Gordon-Haus se traduit par des fluctuations temporelles inéluctables à l'arrivée des impulsions solitons [19]. L'origine de ces fluctuations appelées "gigue" réside dans la présence même des



amplificateurs optiques qui introduisent des fluctuations inhérentes au processus quantique d'amplification. Rappelons que l'amplification est indispensable pour maintenir le niveau de puissance requis pour assurer l'équilibre entre dispersion et automodulation de phase. Il est intéressant d'examiner l'expression de la variance de la gigue temporelle :

$$\langle \delta t^2 \rangle = F \frac{D}{\tau} z (z^2 + 7.4 z_c^2) \text{ avec } z_c \approx \frac{\tau^2}{4D} \quad (23)$$

dans laquelle  $\tau$  est la durée des impulsions et  $F$  est un facteur qui dépend des caractéristiques d'atténuation de la ligne dont la dispersion  $D$  est définie par :

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \frac{d\beta}{d\omega} = \frac{d\beta}{d\lambda} \quad (24)$$

L'expression (23) repose sur l'hypothèse que l'amplification compense exactement les pertes de propagation. La longueur de dispersion  $z_c$  est généralement petite devant la longueur de propagation  $z$ , de sorte, qu'aux grandes longueurs, les fluctuations croissent comme le cube de la longueur de propagation. D'autres sources de fluctuations existent, gigue d'interaction entre solitons, gigue de polarisation, gigue d'électrostriction, gigue d'intensité qui peuvent être analysées de manière analogue à la gigue temporelle [18, 20]. Rien qu'en tenant compte de l'effet Gordon-Haus, les conclusions ne sont guère optimistes puisqu'une fibre de dispersion  $D=3ps/nm/km$  ne permet de transporter un signal à 10 GHz que sur une distance de 2360 km! [19]. Ces analyses théoriques ont été expérimentalement confirmées avec un excellent accord (voir par exemple la référence [21]).

Plusieurs solutions ont été proposées notamment celles basées sur l'insertion en ligne de filtres étroits dans le but de limiter les fluctuations de la fréquence centrale des solitons qui sont associées aux fluctuations temporelles [22]. Des solutions très ingénieuses ont même été imaginées qui consistent à utiliser des filtres étroits dont la fréquence centrale est décalée le long de la ligne de transmission [23]. Dans ce cas, la robustesse des solitons leur permet de mieux franchir (c'est-à-dire avec une transmission plus élevée) ces chicanes fréquentielles que ne le fait le bruit basse puissance qui se comporte de manière linéaire, ce qui permet d'améliorer ainsi le rapport signal à bruit. Ce concept a permis en laboratoire de transporter un signal modulé à 10 GHz sur 20000 km [24].

Toutefois une révolution est survenue ces dernières années avec l'idée de ne plus utiliser des fibres homogènes mais des fibres dont la dispersion est modulée [25]. Un nouveau type de soliton peut survivre à ces modulations périodiques. En ajustant les dispersions et les longueurs des différents tronçons, on peut obtenir une "dispersion moyenne" très faible qui permet de réduire les fluctuations temporelles comme le montre l'équation (23). Les modes de transmission NRZ et solitons deviennent alors simultanément possibles avec des débits également élevés dans les mêmes systèmes de communications [26]. Cette description ne peut être complète dans un cadre aussi étroit. L'objectif est de montrer la richesse et la variété des possibilités ouvertes par les solitons. Un dernier exemple que je citerais pour montrer combien le champ est vaste est celui des solitons vectoriels. Ici, c'est la paroi de domaine qui sépare deux états de polarisations différents de la lumière qui permet son autoconfinement temporel au cours de la propagation [27].

## 5. DISPOSITIFS TOUT OPTIQUES ULTRARAPIDES.

Les effets réfractifs non linéaires permettent de contrôler la phase d'une onde au moyen de sa puissance. La puissance lumineuse du faisceau permet alors de contrôler la transmission d'un

montage interférométrique, tout comme le fait la tension de commande appliquée à un modulateur électro-optique (voir section 3). La différence principale se situe dans le fait que la non-linéarité optique de Kerr contient un mécanisme de contre-réaction inhérent : la lumière agit sur le matériau qui agit en retour sur les conditions de propagation de la lumière. Cette spécificité a conduit à imaginer des dispositifs bistables basés sur l'existence conjointe de contre-réaction et de non-linéarité. La bistabilité peut être intrinsèque lorsqu'elle exploite la contre-réaction intrinsèque de l'interaction laser-matière. Plus fréquemment la bistabilité est due à une contre-réaction optique artificiellement introduite par la présence de miroirs qui renvoient la lumière sur elle-même [28]. C'est le cas des résonateurs de Fabry-Perot non linéaires par exemple (voir la référence [3] pour une description plus détaillée).

Il y a quelques années on rêvait beaucoup de mémoires optiques ultrarapides basées sur ces effets. Il me semble que l'intérêt pour cette fonction est quelque peu retombé pour plusieurs raisons en particulier une énergie de stockage trop élevée qui n'a jamais été en faveur de l'optique. Au contraire, pour d'autres utilisations de traitement du signal, comme la commutation ou l'aiguillage de faisceaux, ou encore la gestion d'interconnexions avec de nombreuses entrées/sorties, les systèmes à non-linéarités optiques sont très étudiés et fort prometteurs.

Dans le domaine de l'optique intégrée, qui est l'objet de ce cours, les efforts portent plutôt depuis une dizaine d'années, sur la réalisation de dispositifs intégrés pour le traitement tout optique du signal. Encore une fois, les télécommunications optiques constituent un domaine d'applications privilégié, même si d'autres utilisations sont envisageables. Cette voie du traitement tout optique, par opposition au traitement hybride qui requiert une conversion électrique du signal optique, prend tout son intérêt dans le contexte d'une transmission à très haut débit temporel. C'est par exemple le cas des transmissions soliton dont nous avons parlé ci-dessus.

## 5.1 Déphasage non linéaire : figures de mérite des matériaux.

### 5.1.1 Absorption non linéaire

Les équations (2) à (8) sont valables pour un coefficient  $n_2$  (donc un coefficient effectif  $n_{2\text{eff}}$ ) complexes. L'analyse développée dans cette partie est valable aussi bien en configuration guidée qu'en propagation libre. Aussi, l'indice  $\text{eff}$  sera omis afin d'alléger la notation.

Rappelons qu'il suffit simplement de diviser  $n_2$  par l'aire effective non linéaire  $A_{\text{eff}}$  pour obtenir le coefficient non linéaire effectif guidé.

L'usage est cependant de séparer les parties réelles et imaginaires de  $n_2$  et d'introduire un coefficient d'absorption non linéaire  $\alpha_2$  aussi appelé  $\beta$  :

$$\alpha_2 = \frac{4\pi}{\lambda} \Im m(n_2) \quad (25)$$

L'équation de propagation non linéaire se réécrit alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dI}{dz} = -\alpha_2 I^2 \\ \frac{d\Phi_{NL}}{dz} = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I \end{array} \right. \Rightarrow \Phi_{NL} = \frac{2\pi}{\lambda} \int n_2 I dz \quad (26)$$

Dans le cas d'un guide planaire, l'intensité  $I$  doit être remplacée par la puissance par unité de longueur (selon  $y$ ). dans le cas d'un guide confiné à deux dimensions, elle doit être remplacée par la puissance guidée  $P_g$ .

Le problème qui nous intéresse ici est lié au fait que la puissance guidée  $P_g(z)$  décroît au cours de la propagation en raison des pertes linéaires mais aussi des pertes non linéaires. Au premier ordre les pertes non linéaires sont dues à un mécanisme à deux photons décrit phénoménologiquement par le coefficient  $\alpha_2$ . Plusieurs phénomènes physiques peuvent être ainsi décrits. Il peut s'agir par exemple d'absorption à deux photons mais tout aussi bien de l'absorption à un photon d'une onde de deuxième harmonique qui serait générée dans le milieu. Quoiqu'il en soit, l'effet non linéaire réfractif (lié à  $n_2$ ) décroît alors au cours de la propagation de manière proportionnelle à la puissance guidée.

Si l'on isole la contribution de l'absorption non linéaire, l'équation (26a) nous indique que la longueur caractéristique d'atténuation de l'onde est  $L_{2\omega} = (\alpha_2 I)^{-1}$ . C'est la longueur "effective" de propagation de l'onde à pleine puissance. La deuxième équation (26b) nous montre alors que le déphasage non linéaire maximal qu'il est possible d'induire est de l'ordre de :

$$\Phi_{NL} = \frac{2\pi}{\lambda} . I . L = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n_2}{\alpha_2} \quad (27)$$

Il faut remarquer que ce maximum est indépendant de la géométrie du guide puisque  $\alpha_2$  et  $n_2$  sont tous deux affectés du même facteur  $A_{eff}$ . Mizrahi et al. [29] ont alors introduit un facteur de mérite qui constitue une caractéristique du matériau :

$$T = \frac{\alpha_2 \lambda}{n_2} = 4\pi \frac{\Im m(n_2)}{\Re e(n_2)} < 1 \quad (28)$$

Le critère que doit satisfaire un matériau est toujours de l'ordre de  $T < 1$  mais la condition peut varier quelque peu d'un dispositif à l'autre. Disons qu'avec  $T=1$ , un faisceau lumineux est susceptible d'induire un déphasage non linéaire cumulé de  $2\pi$ . C'est grosso modo une valeur minimale pour qu'un dispositif non linéaire puisse fonctionner. Un interféromètre qu'il soit à deux ondes ou qu'il soit multiple (résonateur de Fabry-Perot par exemple) exige toujours un déphasage cumulé de  $\pi$  à la commutation. Dans le cas du Fabry-Perot, il s'agit du déphasage non linéaire cumulé sur la longueur "dépliée" du résonateur (voir la référence [3] pour une analyse détaillée du fonctionnement du Fabry-Perot non linéaire). Le lecteur pourra trouver dans la référence [30] une discussion détaillée des niveaux d'exigence comparés des différents dispositifs. Il est important de mesurer qu'un matériau doit être utilisé dans des conditions (de longueur d'onde par exemple) où le critère  $T < 1$  est satisfait pour qu'un dispositif non linéaire basé sur un effet réfractif fonctionne et que cette condition est en fait très exigeante.

### 5.1.2 Absorption linéaire

L'absorption linéaire limite la longueur effective de propagation à  $1/\alpha_1$  où  $\alpha_1$  est le coefficient d'absorption linéaire. Il faut qu'un déphasage non linéaire suffisant (de l'ordre de  $\pi$ ) soit induit sur cette longueur. Ce ne serait pas une limitation s'il n'y avait pas de saturation de la non-linéarité puisqu'il suffirait d'augmenter la puissance lumineuse pour obtenir le déphasage non linéaire requis sur la distance imposée. Malheureusement une saturation de la non-linéarité (termes d'ordres supérieurs) ou d'autres phénomènes (claquage, destruction du matériau, etc.)

sont toujours présents. Le matériau doit donc satisfaire une autre condition dans laquelle intervient l'éclairement maximal supporté ( $I_{\max}$ ) et la non-linéarité :

$$W = \frac{\Phi_{NL,\max}}{2\pi} = \frac{n_2 I_{\max}}{\lambda \alpha_1} > 1 \quad (29)$$

La condition  $W=1$  correspond à un déphasage non linéaire maximal de  $2\pi$ .

## 5.2 Quelques exemples de matériaux non linéaires

Il y a de nombreux mécanismes physiques par lesquels la lumière peut modifier l'indice de réfraction d'un matériau. Dans tous les cas les conditions (28) et (29) devront être satisfaites pour pouvoir utiliser le matériau dans un dispositif. Comme mécanisme physique on peut citer :

- Les effets thermo-optiques. Le milieu est chauffé par absorption de la lumière ce qui change son indice. La condition (28) est vérifiée car il n'y a pas d'absorption non linéaire. Par contre il faudra tenir compte de l'absorption linéaire.
- Les effets photochimiques. Dans les systèmes moléculaires, l'état occupé par une molécule peut être modifié par l'absorption d'un photon. Il peut s'agir d'un changement de conformation accompagné ou non d'une redistribution orientationnelle des molécules [31]. Dans tous les cas, le passage de la lumière s'accompagne d'une absorption qui induit un changement d'indice généralement associé à un changement de biréfringence.
- Déphasage par conversion de fréquence ("cascading"). La génération de second harmonique et le retour à l'harmonique fondamentale s'accompagnent d'un déphasage. Il est ainsi possible d'induire un déphasage non linéaire (c'est-à-dire un  $\chi^{(3)}$ ) par l'intermédiaire d'un  $\chi^{(2)}$ .
- Déphasage dans les milieux à gain. L'amplification optique par émission stimulée s'accompagne d'un déphasage de l'onde. Ce déphasage est dû au phénomène de saturation du gain à haute intensité de signal. Cette saturation se décrit par un coefficient d'amplification qui dépend de l'intensité du signal, de manière tout à fait analogue à un coefficient d'absorption qui dépend de l'intensité. En vertu des relations de Kramers-Krönig la variation de gain s'accompagne d'une variation d'indice qui produit un déphasage.
- Non-linéarités électroniques. Les systèmes organiques ou inorganiques à forte polarisabilité non linéaire électronique ont fait l'objet de recherches importantes.

Quelques exemples de non-linéarités électroniques sont données dans le tableau 1. Les pertes de propagation sont données en dB/cm ( $1\text{cm}^{-1} = 4.34\text{ dB/cm}$ ), le coefficient non linéaire  $n_2$  en  $\text{cm}^2/\text{kW}$  et l'absorption non linéaire  $\alpha_2$  en  $\text{cm}/\text{kW}$ . La silice présente une figure de mérite exceptionnellement bonne malgré une non-linéarité très faible. Le semi-conducteur AlGaAs étudié dans la référence [29] a été pris dans des bonnes proportions d'aluminium et d'arsenic pour que la longueur d'onde de 1.55 microns corresponde à une énergie juste inférieure à la moitié du gap. Dans ces conditions la figure de mérite est très bonne. Cette propriété n'est pas spécifique de l'AlGaAs. Ainsi que l'ont montré Sheik-Bahae et al. [32], tous les semi-conducteurs ont la même dépendance spectrale de la non-linéarité d'origine électronique, à des facteurs de normalisation près qui font intervenir l'énergie de gap du semi-conducteur et la force d'oscillateur de la transition interbande. En particulier, tous les semi-conducteurs présentent une zone d'énergie étroite, légèrement en dessous (en énergie) de la moitié du gap,

dans laquelle la figure de mérite est favorable [32]. Le coefficient non linéaire  $n_2$  est renforcé par la présence proche des résonances à deux photons, alors que l'absorption non linéaire  $\alpha_2$  est faible parce que l'énergie des photons est légèrement inférieure à la moitié de l'énergie du gap. Les verres de chalcogénure dont  $\text{As}_{0.38}\text{S}_{0.62}$  est un exemple sont très prometteurs. Ils présentent une excellente figure de mérite avec un coefficient non linéaire raisonnable.

**Tableau 1 : Non-linéarités de matériaux**

	Pertes linéaires	Non-linéarité	Figure de mérite
$\text{SiO}_2$	0.2 dB/km	$n_2 = 2.410^{-13}$	$T \ll 1$
$\text{AlGaAs } \lambda \approx 1.55\mu\text{m}$ [33]	0.5 dB/cm	$n_2 = 2.10^{-10}$	$T < 0.1, W > 8$
$\text{As}_{0.38}\text{S}_{0.62} \lambda > 1.32\mu\text{m}$ [34]	0.1 dB/cm	$n_2 = 4.210^{-11}$	$T < 0.1, W = 16$
DANS $\lambda \approx 1.064\mu\text{m}$ [35]	1 dB/cm	$n_2 = 1.510^{-10}$ $\alpha_2 = 8.10^{-6}$	$T = 5.5, W = 35$
DANS $\lambda \approx 1.32\mu\text{m}$ [36]	1 dB/cm	$n_2 = 8.10^{-11}$ $\alpha_2 = 10^{-7}$	$T = 0.2$
DR1 $\lambda \approx 1.32\mu\text{m}$ [37]	1 dB/cm	$n_2 = -3.610^{-10}$ $\alpha_2 = 2.10^{-6}$	$T \leq 0.5$

Dans le domaine des organiques, nous citerons l'exemple des polymères greffés avec des colorants constitués de molécules conjuguées à forte hyperpolarisabilité cubique. L'exemple du DANS montre bien la dépendance spectrale de la figure de mérite. À la longueur d'onde de 1.064 microns, une forte absorption non linéaire dégrade très fortement la figure de mérite. Ainsi, à cette longueur d'onde là, il ne sera jamais possible de réaliser un dispositif non linéaire. Plus loin dans l'infrarouge, à 1.32 micron par exemple, les conditions sont nettement plus favorables. Des polymères greffés avec du DR1 montrent aussi des conditions très favorables dans un certain domaine de longueur d'onde.

Toutefois, il faut noter que les seules démonstrations de dispositifs non linéaires d'optique intégrée ont été réalisées avec la silice et l'AlGaAs. Ceci tient pour une part à des raisons technologiques liées au haut degré d'exigence demandé aux matériaux pour l'optique intégrée. En effet la mise en forme des matériaux sous forme de guides d'ondes sans dégradation de la figure de mérite  $W$  par rapport au matériau massif constitue déjà une difficulté. D'autre part les figures de mérites effectivement observées doivent tenir compte des compétitions entre différents mécanismes physiques tels que polarisabilité électronique, effets thermiques liés à l'absorption de la lumière, etc. C'est ainsi que les déphasages non linéaires observés vont dépendre de la durée des impulsions lumineuses, mais aussi du taux de répétition.

### 5.3 Interféromètre de Mach-Zehnder: l'exemple de la silice.

Il s'agit là d'une des toutes premières démonstrations de commutateur tout optique [38]. Le schéma de principe de l'interféromètre de Mach-Zehnder est présenté sur la figure 5a. La première jonction  $Y$  divise l'onde incidente en deux voies qui sont recombinaisonnées dans la deuxième jonction. Seule la composante des ondes qui arrivent en phase dans les deux voies

du Y de sortie se retrouve dans le guide de sortie. La composante en opposition de phase est couplée dans les modes rayonnés et perdue. La transmission  $T$  du dispositif dépend alors du déphasage  $\phi$  entre les deux bras de l'interféromètre.

Le montage décrit dans la référence [38] utilise comme interféromètre les deux voies d'une fibre à double cœur de 200 m de long. Les deux bras étant non linéaires, un déphasage non linéaire différentiel entre les deux voies de sortie est produit par l'utilisation de jonctions Y asymétriques qui permettent de coupler des puissances différentes dans les deux bras. L'expérience montre bien que la transmission  $T$  du dispositif dépend de la puissance incidente. Le montage n'étant pas symétrique, la commutation n'est pas totale.

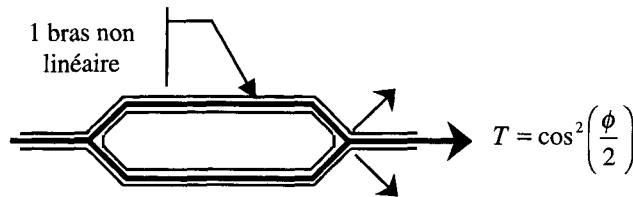


Figure 9 : Schéma de principe de l'interféromètre de Mach-Zehnder non linéaire.

#### 5.4 Coupleur directionnel : exemple de l'AlGaAs.

Le coupleur directionnel est un montage interférométrique qui présente l'avantage par rapport à l'interféromètre de Mach-Zehnder d'avoir deux voies de sortie. Il n'y a alors pas de lumière "perdue". Le schéma et le principe du coupleur linéaire sont présentés sur la figure 10. Comme deux oscillateurs couplés, deux guides identiques en interaction vont pouvoir échanger de l'énergie au cours de la propagation avec une périodicité appelée longueur de battement,  $L_b$ . Le coupleur schématisé sur la figure 10 est quant à lui coupé à la longueur de battement,  $L_b = L_c/2$ . Le fonctionnement du dispositif se comprend bien à partir des deux modes de base de la structure totale constituée des deux guides (supermodes). L'un symétrique, l'autre asymétrique (opposition de phase entre les ondes des deux guides) ont des indices effectifs de propagation différents. L'excitation d'un seul guide peut se décomposer comme une combinaison linéaire de ces deux modes qui, en se recombinant après propagation sur  $L_b$  mènent à un échange d'énergie entre les deux guides (fig. 10).

L'autre intérêt du dispositif est d'offrir une grande versatilité. L'échange d'énergie est total lorsque les guides sont identiques mais ne sera au maximum que partiel si les guides sont différents. Rien n'empêche d'avoir des guides ou un espacement entre les guides variables au cours de la propagation. Il peut même être avantageux d'utiliser des guides courbes pour réaliser des filtres en longueur d'onde [39].

En régime non linéaire, la décomposition sur les supermodes perd de sa pertinence puisque le principe de superposition ne s'applique plus. Il est alors nécessaire de recourir à des méthodes numériques. Il est toutefois possible de comprendre intuitivement l'effet d'un déphasage non linéaire sur un coupleur linéaire. Le guide dans lequel le faisceau incident est injecté aura un indice modifié par l'effet non linéaire. Les deux guides ne seront plus identiques et l'échange d'énergie empêché. Un effet de commutation analogue à celui obtenu avec le Mach-Zehnder a ainsi été observé en optique intégrée dans des guides couplés réalisés

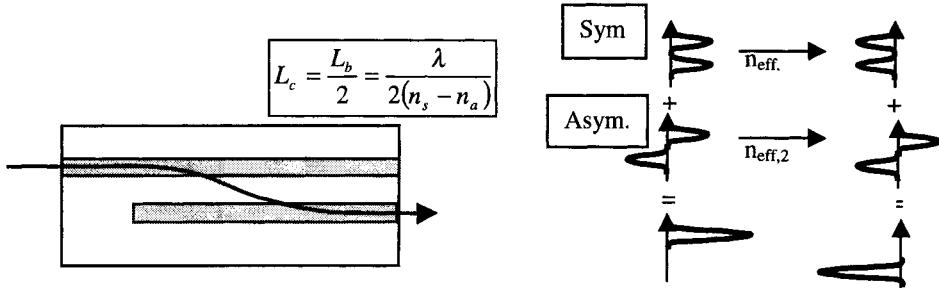


Figure 10 : Coupleur directionnel linéaire.

en AlGaAs [40]. La non-linéarité de ce matériau étant très supérieure à celle de la silice, quelques centimètres de guide suffisent au lieu de centaines de mètres.

L'optique intégrée permet de concevoir des montages optiques bien maîtrisés dans lesquels la lumière se propage sans diffraction. La propagation d'impulsions brèves met en jeu dispersion, effets non linéaires et échanges d'énergie dont la dynamique non linéaire est très riche. Nous avons là des structures de choix pour mettre en évidence de nouveaux effets de dynamique non linéaire. Un effet de cisaillement d'impulsion a par exemple été mis en évidence [41]. Le centre de l'impulsion transporte une puissance suffisamment intense pour empêcher la commutation alors que les ailes se retrouvent sur l'autre voie (fig. 11). Le coupleur directionnel peut être utilisé pour le démultiplexage temporel d'impulsions. Une impulsion de contrôle de haute intensité envoyée simultanément à une impulsion de signal empêche l'échange d'énergie de se produire [42].



Figure 11 : Cisaillement d'impulsion dans coupleur directionnel non linéaire.

## 6. COUPLEURS DISTRIBUÉS : PRINCIPE

Les coupleurs distribués constituent le moyen d'ouvrir le guide d'onde vers l'extérieur et de permettre les échanges entre l'espace libre le guide d'onde. Les configurations à prisme et à réseau sont les plus fréquentes. Dans le premier cas l'ouverture du guide se fait par effet tunnel optique à travers le gap bas indice (réflexion totale frustrée), dans le deuxième par l'existence d'ordres diffractés rayonnés qui se propagent dans le milieu supérieur.



Figure 12 : Coupleurs à prisme et à réseau.

Plusieurs aspects sont abordés dans cette partie. Tout d'abord une première section est consacrée au cas linéaire et à la spectroscopie des lignes noires. Dans une deuxième partie nous nous intéressons à la modélisation en régimes linéaire et non linéaire, principalement à partir des modes à fuite qui permettent de bien exploiter les résonances de ces structures. À ce propos il est intéressant de montrer que la notion d'onde plane est complètement inopérante en régime non linéaire et conduit à des prédictions complètement erronées. Ceci fait partie de la section 6.4

### 6.1 Spectroscopie des lignes noires.

Parce que les rayons sont quasiment rasant sur les interfaces, les coupleurs distribués constituent des résonateurs à haute finesse. Ils permettent ainsi une analyse précise des propriétés optiques de couches minces par la méthode appelée spectroscopie des lignes noires "Mlines". En régime linéaire, cette technique très sensible s'utilise indifféremment avec un faisceau convergent (fig. 13a) ou un faisceau parallèle (fig. 13b).

En éclairage convergent la ligne noire est observée sur un écran ou, de préférence, à l'infini, dans le plan focal d'une lentille. La résolution angulaire est alors fixée par le pouvoir de séparation du système de détection :  $\delta\theta = \delta x/f$ . En éclairage parallèle, la réflectivité est directement enregistrée en fonction de l'angle d'incidence grâce à un montage  $\theta-2\theta$  qui permet au détecteur de tourner deux fois plus vite que l'échantillon. La résolution angulaire est alors fixée par la qualité du faisceau incident, divergence et plus généralement spectre de Fourier des fréquences spatiales. Dans les deux cas l'homogénéité de l'échantillon conditionne la résolution de la mesure.

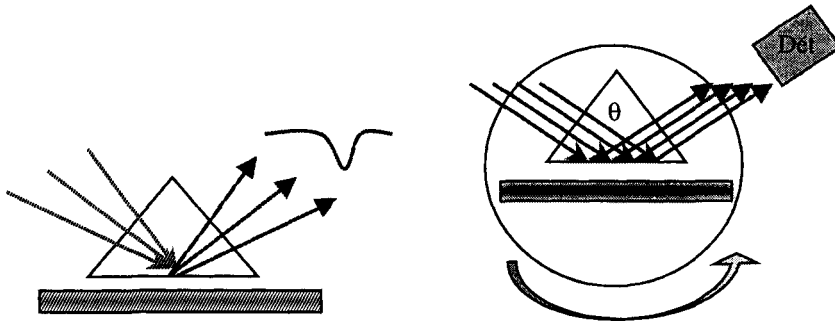


Figure 13 : Utilisation en faisceau convergent (a) ou parallèle (b)

Un exemple de résultat en régime non linéaire est donné sur la figure 14. Dans ce cas les deux montages ne sont pas équivalents et seul celui en faisceau parallèle convient. D'une part la décomposition en fréquences spatiales après l'échantillon (fig. 13a) est interdite en régime non linéaire, d'autre part elle ne permet pas de coupler suffisamment de lumière dans la couche pour que les effets non linéaires soient importants. On remarque le très bon accord entre expérience (points) et théorie (lignes). Lorsqu'une puissance lumineuse suffisamment élevée est couplée dans le guide, son indice est modifié par la non-linéarité et la réflectivité est modifiée. Le décalage angulaire est directement lié au changement d'indice. De son côté, le changement de forme est dû, d'une part à la diminution de l'efficacité de couplage en régime



non linéaire, d'autre part à l'absorption non linéaire [43]. Une analyse fine permet de déduire de ces données le coefficient non linéaire complexe, ici  $n_2 = (-3.6 + 0.25j)10^{-10} \text{ cm}^2 / \text{kW}$  [37].

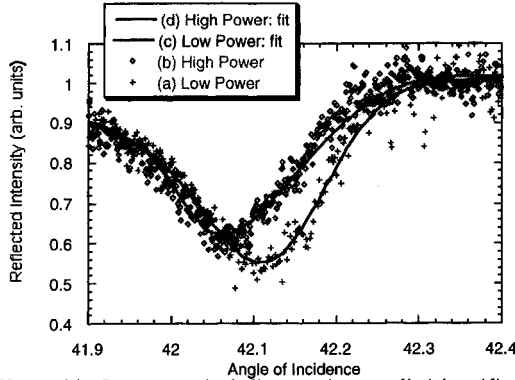


Figure 14 : Spectroscopie de lignes noires non linéaires (d'après [37])

En réalité la forme et l'existence même des lignes noires, déjà en régime linéaire, est suffisamment délicate pour qu'on s'y attarde quelque temps. Considérons tout d'abord le cas du coupleur à prisme linéaire d'un guide sans pertes de propagation. En théorie on ne devrait pas pouvoir observer de raies de résonance à l'infini. En effet, la réflectivité en onde plane d'une telle structure a toujours un module unité :  $|R(\theta)| = 1$ . Ce résultat s'obtient par un calcul électromagnétique et se comprend aisément : en l'absence de pertes la conservation impose que l'amplitude de l'onde plane émergente est égale à celle de l'onde plane incidente. Les lignes noires observées avec un coupleur à prisme sont donc dues :

- à des pertes de propagation,
- ou à une courbure de l'échantillon (gap d'épaisseur variable).

Dans le cas d'un coupleur à réseau, la situation est tout à fait différente [44]. La présence de deux faisceaux émergents (fig. 12b) au lieu d'un seul autorise des échanges d'énergie entre ces deux faisceaux. On observe ainsi généralement une ligne brillante en réflexion et une ligne noire en transmission, encore que ce ne soit pas une règle absolue et que le résultat dépende de la position de la zone modulée dans la structure guidante (voir la figure 15, section 6.2).

## 6.2 Modélisation électromagnétique : développement aux pôles.

Un faisceau incident quelconque peut être décrit par son spectre d'ondes planes. Il s'agit de la représentation longitudinale :

$$E_i(x, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_i(\gamma) \varphi_z(\gamma, x) e^{j\gamma z} d\gamma \quad (30)$$

dans laquelle  $\gamma$  est la composante longitudinale du vecteur d'onde. Comme c'est toujours le cas au premier ordre pour tout résonateur, l'amplitude guidée excitée est décrite, au voisinage de la résonance par une lorentzienne dans laquelle  $\gamma_p$  est le pôle et  $\xi$  le coefficient de couplage :

$$A_g(\gamma) = \frac{\xi A_i(\gamma)}{\gamma - \gamma_p} \quad (31)$$

En régime non linéaire,  $\gamma_p$  dépend de l'amplitude guidée excitée  $A_g(z)$  définie dans l'espace réel, donc transformée de Fourier de  $A_g(\gamma)$  :

$$\frac{dA_g(z)}{dz} = \left( \gamma_p + \zeta |A_g(z)|^2 - \gamma_o \right) A_g(z) + \xi A_i(z) \quad (32)$$

où  $\gamma_o$  est le vecteur d'onde moyen de l'onde incidente.  $\zeta$  est un coefficient non linéaire égal à  $k.n_{2eff}$ . L'équation (32) permet de calculer en tout point l'amplitude guidée excitée en régime linéaire comme non linéaire, lorsque le coupleur est excité par un faisceau de profil quelconque. Il nous reste, pour décrire la structure, à obtenir une expression des champs émergents rayonnés. Les ondes émergentes résultent de la superposition cohérente de deux termes, l'un constant provient de la réflectivité directe de l'onde incidente. Il est insensible à la résonance. L'autre est issu du découplage de l'onde guidée excitée et est résonant :

$$A_{ray}(z) = \mu A_i(z) + \nu A_g(z) = r \frac{\gamma - \gamma_z}{\gamma - \gamma_p} A_i(z) \quad (33)$$

L'addition de ces deux termes peut se réécrire en faisant apparaître un zéro  $\gamma_z$  comme dans le deuxième membre de (33). Pour  $\gamma = \gamma_z$  la réflectivité devient nulle. Notons que  $\gamma_z$  est généralement complexe alors que  $\gamma$  est réel par définition. Une réflectivité nulle ne peut être effectivement observée expérimentalement que si  $\gamma_z$  devient réel. Dans un coupleur à prisme cette situation se produit lorsque les pertes par absorption sont égales aux pertes par rayonnement. Dans un coupleur à réseau, la situation est plus complexe et des zéros peuvent apparaître sur certains ordres diffractés. Insistons sur le fait que le pôle  $\gamma_p$  est lié à la résonance et est le même pour tous les ordres rayonnés, alors que le coefficient  $r$  et le zéro  $\gamma_z$  dépendent de l'ordre émergent.

La figure 15 illustre numériquement la validité de cette approche. L'amplitude diffractée dans différents ordres d'un coupleur à réseau est tracée en fonction de l'angle d'incidence. Le calcul dit "modal" résulte de l'approche développée ci-dessus. Le calcul dit "exact" a été réalisé à partir de la méthode différentielle [45] qui consiste à résoudre numériquement de manière exacte les équations de Maxwell dans la structure diffractante. L'accord est excellent en régime linéaire comme non linéaire [46].

Nous souhaiterions finir cette partie en mentionnant les difficultés d'un traitement électromagnétique rigoureux de ces structures ouvertes non linéaires, difficultés masquées par le développement au pôle décrit ci-dessus. Justement parce que la structure est ouverte sur un milieu infini la constitution d'une base pour un développement du champ est délicate. La notion de mode guidé disparaît dès l'ouverture de la structure pour laisser la place à un mode à fuite. Toutefois ce mode à fuite est exponentiellement divergent à l'infini de sorte qu'il est non normalisable et ne peut pas être complété pour former une base. En particulier l'équation (8) ne peut pas être utilisée pour calculer  $n_{2eff}$  puisque les intégrales sont divergentes.

En régime linéaire, il est facile de résoudre le problème par un développement en ondes planes caractérisées par la composante longitudinale du vecteur d'onde (représentation longitudinale). On peut aussi développer le champ sur la base constituée des modes guidés et des modes rayonnés, caractérisés par la composante transverse (représentation transverse) (fig. 16). Dans le cas des structures ouvertes, les modes guidés n'existent plus et il ne reste plus qu'un développement sur les modes rayonnés. Cette formulation ne fait plus ressortir le rôle essentiel des résonances. Les modes à fuite associés aux résonances apparaissent comme des paquets de modes rayonnés d'amplitude plus importante.

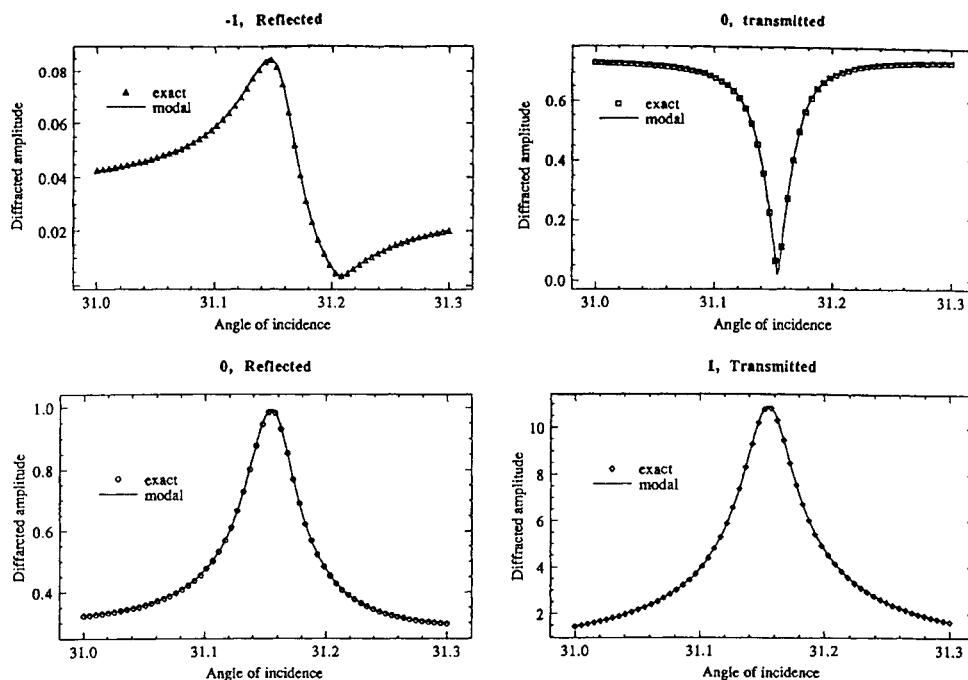


Figure 15 : Test numérique de la validité du développement au pôle pour un coupleur à réseau.

Cette situation devient très délicate en régime non linéaire, puisque tous les modes sont alors couplés par la non-linéarité dans l'espace réel et non dans l'espace de Fourier des fréquences spatiales. D'où l'intérêt d'utiliser dans ce cas un mode unique, qui décrit le champ total dans le résonateur. Ce mode a clairement un rapport avec le mode à fuite avec les difficultés dont on a déjà parlé. Ces difficultés mathématiques ont sans doute un lien avec le fait que la structure rayonnante introduit des résonances dans le continuum des modes de l'espace libre [47].

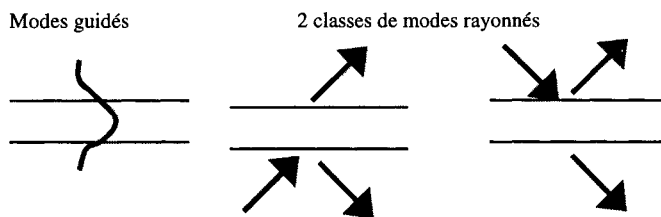


Figure 16 : Modes rayonnés.

### 6.3 Effets transverses et dynamiques

De façon évidente, un coupleur distribué est en quelque sorte un résonateur de Fabry-Perot utilisé sous incidence oblique. La valeur de l'angle d'incidence (nul ou non) joue un rôle fondamental sur lequel nous allons insister. Il est bien connu que le résonateur de Fabry-Perot non linéaire est bistable lorsqu'il est éclairé sous incidence normale. L'existence de la

bistabilité peut être vue comme due à une contre-réaction, assurée par la polarisation non linéaire qui couple les modes propres qui se propagent dans des directions contraires [48] (fig. 17).

Sous incidence oblique (angle d'incidence grand devant la largeur angulaire des résonances), la symétrie est brisée et l'une des ondes est grandement favorisée devant l'autre qui devient négligeable (fig. 17b). Il n'y a ainsi plus de contre-réaction et donc plus de possibilité de comportement bistable. Cette disparition de la bistabilité s'accompagne d'autres manifestations. Le résonateur non linéaire de Fabry-Perot éclairé par un faisceau de largeur limité en régime dynamique possède une dynamique très riche, formation de structures

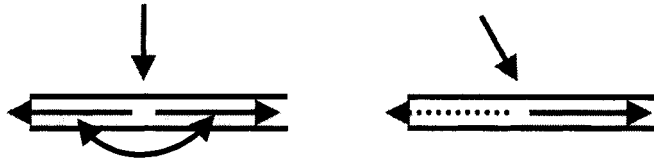


Figure 17 : Résonateur plan sous incidence normale et oblique.

spatiales auto-organisées [49] associées à une instabilité modulationnelle de l'onde plane. Dans certaines conditions ces structures spatiales ne sont pas stables et peuvent devenir auto-oscillantes. Après passage par des bifurcations de Hopf [49], il apparaît des régimes oscillants de plus en plus complexes qui conduisent au chaos. Toute cette dynamique disparaît pour une incidence suffisamment inclinée [50]. Sous incidence normale, la composante selon  $z$  (parallèle au plan des miroirs) est très faible. À mesure que l'angle d'incidence augmente, le terme de transport qui décrit la propagation de l'énergie le long de l'interface devient de plus en plus important. Il induit un "transport" selon  $z$  du profil de modulation spatiale et inhibe finalement sa formation par un effet de moyenne.

Un exemple illustre bien l'importance du mélange d'onde dans les systèmes non linéaire, c'est celui de l'approximation de l'onde plane, pour un coupleur distribué, donc sous incidence oblique. Les résultats apparaissent sur la figure 18 où on a porté la puissance transmise, proportionnelle à la puissance stockée dans le résonateur en fonction de la puissance incidente. L'approximation de l'onde plane conduit à prédire un comportement bistable. Les durées des impulsions  $T_p$  sont données en unités de temps de remplissage de la cavité,  $T_c$ . L'effet de ralentissement critique qui apparaît au voisinage du point tournant se traduit par un agrandissement du cycle de la réponse dynamique par rapport au cas stationnaire. Il est clairement visible jusqu'à des durées d'impulsions  $T_p$  aussi longues que plusieurs centaines de  $T_c$ . Pour  $T_p = 1000$  le régime stationnaire est quasiment atteint. Sur la figure de droite, tracée dans les mêmes conditions, les effets de propagation et la largeur finie du faisceau ont été pris en compte. Le cycle de bistabilité n'existe plus, quelle que soit la largeur spatiale du faisceau, il est remplacé par une commutation [51].

Ainsi, la prise en compte de l'extension du faisceau incident dans le domaine des fréquences spatiales, aussi réduite soit-elle, modifie radicalement la réponse prédite par rapport au cas de l'onde plane. Ce dernier cas revient à remplacer le profil des fréquences spatiales par une fonction de Dirac. L'approximation onde plane tire sa validité en optique linéaire du théorème de superposition. Elle n'est plus valide en optique non linéaire. L'approximation du régime harmonique, équivalent dans le domaine temporel de l'approximation onde plane dans le domaine spatial n'est pas valide non plus.

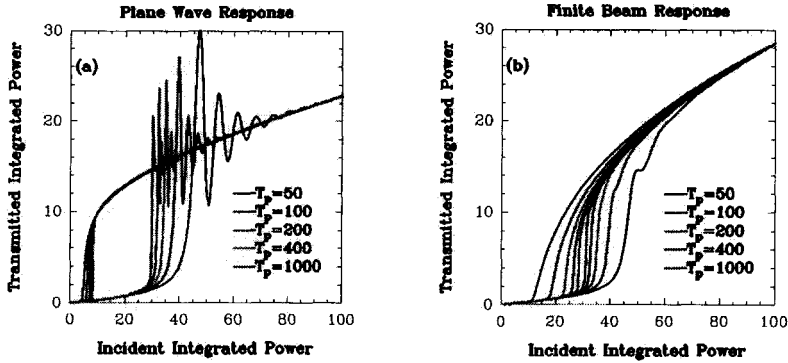


Figure 18 : Réponse onde plane (à gauche) et faisceau limité (à droite) d'un coupleur distribué (après [51]).

La prise en compte correcte des effets dynamiques dans les coupleurs distribués montre qu'il est possible d'observer des effets de commutation très brève [52] dont le temps de réponse est largement inférieur à  $T_c$ . Des expériences de conjugaison de phase dans des guides d'ondes non linéaires confirment les modélisations. Un excellent accord a été obtenu entre expérience et théorie lorsque tous les effets sont pris en compte : couplage non linéaire, absorption non linéaire au cours de la propagation, ainsi qu'absorption non linéaire croisée entre les deux faisceaux de pompe [35].

#### 6.4 Filtrage et renforcement des effets non linéaires

Le guide d'onde n'est pas l'espace libre et les atomes et molécules qui y sont placés ne voient pas un environnement isotrope. Dans le cas d'un coupleur distribué ils voient, au contraire, une densité spectrale de modes qui fait apparaître des pics au voisinage des modes à fuite. Une distribution typique est donnée sur la figure 19 en ne considérant que les modes impairs [53]. Les modes à fuites sont représentés par des lignes verticales de hauteur proportionnelle au coefficient d'atténuation.

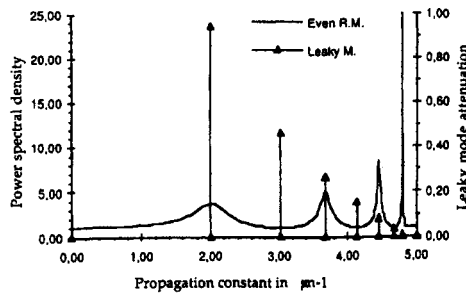


Figure 19 : Densité spectrale de modes propres dans un coupleur distribué.

Dans ces conditions, on comprend aisément qu'un atome se désexcitera préférentiellement là où la densité spectrale est la plus grande, c'est-à-dire dans les directions de découplage des modes à fuite. Cela a été très bien observé expérimentalement par exemple dans des expériences de fluorescence guidée [54] mais aussi en spectroscopie Raman renforcée [55].

Le fait que la lumière de fluorescence, par essence incohérente, soit émise dans des directions privilégiées signifie que la présence du guide induit une certaine cohérence entre les dipôles émetteurs. Cette mise en phase peut aller jusqu'à favoriser l'émergence de mécanisme d'émission stimulée. C'est ainsi qu'un régime de diffusion Raman stimulée a été observé dans des guides avec des puissances de pompe très basses [56].

## 7. CONCLUSION

Les progrès technologiques récents de l'optique intégrée pour laquelle un marché certain commence à émerger devraient pouvoir stimuler de nouvelles études, aussi pour les dispositifs non linéaires. Outre leur intérêt technologique, j'espère avoir convaincu le lecteur que les dispositifs d'optique guidée non linéaire peuvent constituer un superbe (parce que contrôlé) laboratoire pour l'étude des systèmes non linéaires.

## Références

- [1] De Micheli M.P. "Mélange de fréquences", cet ouvrage
- [2] Reinisch R., Vitrant G. et Haelterman M. "Coupled-mode theory of diffraction-induced transverse effects in nonlinear optical resonators", *Phys. Rev. B* **44** (1990) p. 7870-7878.
- [3] Roch J.F., "principes fondamentaux de l'optique non linéaire", cet ouvrage.
- [4] Cohen-Tanoudji C., Dupont-Roc J., Laloë F., "Mécanique Quantique", Ediscience.
- [5] Faderl I., Labeye P., Gidon P. et Mottier P., "Integration of an Electrooptic polymer in an integrated optics circuit on silicon," *J. Lightwave Technol.* **13**, (1995), p. 2020.
- [6] Lee M.H et al., *Thin solid Film*, 303, (1997) p. 287.
- [7] Russel J.S., "Report on waves", *Proc. Roy. Soc. Edinburgh* (1844), p. 319-320.
- [8] Boardman A., Bontemps P., Koutoupes T. et. Xie K "Temporal and spatial solitons: an overview," dans "Beam shaping and control with nonlinear optics", NATO ASI series vol 369, ed. F. Kajzar, R. Reinisch (1998).
- [9] Drazin P.G. et Johnson R.S. "Solitons: an introduction" Cambridge University Press (1983).
- [10] Gutzwiller M.C. "Chaos in classical and quantum mechanics", Springer Verlag (1990).
- [11] Barthélémy A, Maneuf S. et Froehly C., "Propagation soliton et auto-confinement de faisceaux laser par non linéarité optique de Kerr", *Optics Comm.* **55** (1985) p. 201.
- [12] Aitchison J.S., Silberberg Y., Weiner A.M., Leaird D.E., Oliver M.K, Jackel J.L., Vogel E.M et Smith P.W.E. "Spatial optical solitons in planar glass waveguides", *J. Opt. Soc. Am. B* **8** (1991), pp. 1290-1297.
- [13] Aitchison J.S., Al-Hemyari K., Ironside C.N., Grant R.S. et Sibbett W. "Observation of spatial solitons in AlGaAs waveguides", *Electron. Lett.* **28** (1992) p. 1879.
- [14] Kang J.U., Stegeman G.I., Villeneuve A. et Aitchison J.S. "AlGaAs below half bandgap: a laboratory for spatial soliton physics," *Pure and Applied Optics* **5** (1996) p. 583.
- [15] Dumais P., Villeneuve A. et Aitchison J.S. "Bright temporal solitonlike pulses in self-defocusing AlGaAs waveguides near 800nm" *Optics Letters* **21** (1996) p. 260.
- [16] Chraplyvy A.R., *Optics & Photonics News*, mai 1994, p. 16.

- [17] Hasegawa A. et Tapert F., "Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. I. anomalous dispersion," *Appl. Phys. Lett.* **23** (1973), p. 142.
- [18] Vandamme P., Thomine J.B. et Devaux F. "La transmission par solitons" *Lecho des recherches* n°166 (1996), pp. 15-28.
- [19] Gordon J.P. et Haus H.A. "Random walk of coherently amplified solitons in optical fiber transmission," *Optics Lett.* **11** (1986), p. 665.
- [20] Haus H.A. et Wong W.S. "Solitons in optical communications" *Reviews of modern physics* **68** (1996), pp. 423-444.
- [21] Shum P. et Ghafouri-Shiraz H. "Effects of Gordon-Haus jitter on soliton transmission" *Fiber and Integrated Optics* (1997), pp. 303-319.
- [22] Mecozzi A., Moores J.D., Haus H.A. et Lai Y. "Soliton transmission control", *Opt. Lett.* **16** (1991), p. 1026.
- [23] Mollenauer L.F., Gordon J.P. et Evangelides S.G. "The sliding-frequency guiding filter: an improved form of soliton jitter control", *Opt. Lett.* **17** (1992) p. 1575.
- [24] Mollenauer L.F., Lichtman E., Neubelt M.J. et Harvey G.T. "Demonstration, using sliding-frequency guiding filters, of error-free soliton transmission over more than 20 Mm at 10 Gbit/s, ..." *Electron. Lett.* **29** (1993) p. 910.
- [25] Smith N.J., Doran N.J, Forsysiak W. et. Knox F.M, *J. Lightwave Technol.* **15** (1997) p. 1808.
- [26] Jacob J.M., Golovchenko E.A., Pilipetskii A.N., Carter G.M. et Menyuk C.M. "10-Gb/s transmission of NRZ over 10 000 km and solitons over 13 500 km error-free in the same dispersion-managed system" *IEEE Photonics Technology Letters* **9** (1997) p. 1412.
- [27] Haelterman M. et Badolo M. "Dual-frequency wall solitary waves for nonreturn-to-zero signal transmission in W-type single-mode fibers" *Optics letters* **20** (1995), p. 2285.
- [28] Reinisch R. et Vitrant G., "Optical Bistability", *Prog. in Quant. Electron.*, **18** (1994) pp. 1-38.
- [29] Mizrahi V., DeLong K.W., Stegeman G.I., Saïfi M.A. et Andrejco M.J., "Two-photon absorption as a limitation to all-optical switching", *Optics Lett.* **14** (1989) p. 1140.
- [30] Stegeman G.I., Wright E.M., Finlayson N., Zanoni R. et Seaton C.T. "Third order nonlinear integrated optics", *J. Lightwave technol.* **6** (1988) p. 953.
- [31] Dumont M., Froc G. et Hosotte S. "Alignement and orientation of chromophores by optical pumping", *Nonlinear Optics* **9** (1995) p. 327.
- [32] Sheikh Bahae M., Hutchings D.C., Hagan D.J. et VanStryland E.W., *IEEE J. Quant. Electron.* **27** (1991) p. 1296.
- [33] Kang et al., *IEEE JQE* **33** (1997), p. 341
- [34] Asobe et al., *Optics Letters* **18**, (1993), p. 1056.
- [35] Malouin C., Villeneuve A., Vitrant G., Cottin P. et Lessard R.A. "Degenerate four-wave mixing for characterization of thin-film waveguides", *JOSA B* **15** (1998), p. 826.
- [36] Kim, *Applied Physics Letters* **62** (1993), p. 290.
- [37] Vitrant G., Mayollet L., Vögele B., Rameix A., Reinisch R., Stegeman G.I., Möhlmann G.R., Horsthuis W.H.G., Chollet P.A. et Kajzar F., *Nonlinear Optics* **8** (1994), p. 251.
- [38] Nayar B.K., Finlayson N., Doran N.J., Davey S.T., Williams D.L. et Arkwright J.W., *Optics Letters* **16** (1991), p. 408.
- [39] Valée R., filtres coupleurs cohérents courbes.

- [40] Al-Hemyari K., Villeneuve A., Kang J.U., Aitchison J.S., Ironside C.N. et Stegeman G.I., *Appl. Phys. Lett.* **63** (1993), p. 3562.
- [41] Stegeman G.I., Villeneuve A., Kang J., Aitchison J.S., Ironside C.N., AL-Hemyari K., Yang C.C., Lin C.H., Lin H.H., Kennedy G.T., Grant R.S. et Sibbett W., "AlGaAs below half bandgap: the silicon of nonlinear optical materials" *J. NL Opt.Phys.* **3** (1994) p. 347.
- [42] Villeneuve A., Mamayshev P., Kang J.U., Stegeman G.I., Aitchison J.S. et Ironside C.N., *IEEE J. Quantum Electron.* **31** (1995) p. 2165.
- [43] Vitrant G., Reinisch R. and Kajzar F. "M-line spectroscopy for nonlinear characterization of polymeric waveguides," *Optical Engineering* **34**, p. 3418, (1995).
- [44] Golubenko G.A., Svakhin A.S., Sychugov V.A., Tishenko A.V., Popov E. et Mashev L., *Optical and Quant. Electron.* **18** (1986) p. 123
- [45] Vincent P. "Differential methods" dans "Electromagnetic theory of gratings, ed. R. Petit, Springer Verlag (1980).
- [46] Reinisch R., Nevière M., Vincent P. et Vitrant G. "Radiated diffracted orders in Kerr-type gratings couplers" *Optics Comm.* **91** (1992) p. 51.
- [47] Prigogine I. "La fin des certitudes", ed. Odile Jacob (1996).
- [48] Haelterman M., Vitrant G. et Reinisch R. "Transverse effects in nonlinear planar resonators" *J Opt. Soc. Am B* (1990) p. 1309 et Vitrant G., Haelterman M. et Reinisch R., *J. Opt. Soc. Am B* (1990) p. 1319.
- [49] Danckaert J. and Vitrant G., "Modulation Instabilities in diffusive Kerr-type resonators", *Opt. Comm.* **104**, (1993) pp. 196-206.
- [50] Vitrant G. and Danckaert J., "Suppression of Modulational Instabilities by Optical Transport in Nonlinear Kerr-type Resonators", *Chaos, Solitons & Fractals*, **4**, (1994), p. 1369-1385.
- [51] Vitrant G., Haelterman M., Reinisch R., Comment on "Optical response of nonlinear planar resonators under pulsed beam excitation", *Phys. Rev. B* **48**, (1993) p. 15465.
- [52] Fick J. and Vitrant G., "Fast optical switching in nonlinear prism couplers," *Optics Letters* **20**, (1995) p. 1462.
- [53] Benech P. et Khalil D. "Rigorous spectral analysis of leaky structures: application to the prism coupling structure", *Optics Comm.* **118** (1995) p. 220.
- [54] Roux J.F. et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **12** (1995) p. 429.
- [55] Baltog I. et al., *Appl. Phys. Lett.* **66** (1995) p.1187.
- [56] Baltog I. et al., *J. Opt. Soc. Am. B* **13** (1995) p. 656.



## **Effets non linéaires et fluctuations quantiques**

É. Giacobino

*Laboratoire Kastler Brossel, Université Pierre et Marie Curie, École Normale Supérieure et CNRS, 4 place Jussieu, 75232 Paris cedex 05, France*

**Résumé :** Ce cours présente une description des états comprimés du rayonnement et quelques méthodes de production de ces états comprimés, basées sur des principes d'optique non linéaires. Après une brève introduction à la quantification du champ de rayonnement, nous discutons les principales conséquences de la nature quantique du champ sur les fluctuations qui apparaissent dans les mesures. Nous étudions tout d'abord la modification des fluctuations quantiques dans un système optique linéaire comme une lame semi-transparente. Puis nous traitons trois systèmes qui permettent de manipuler les fluctuations quantiques du rayonnement : l'amplificateur paramétrique qui produit un champ "vide comprimé", la cavité contenant un milieu possédant un indice non linéaire, qui produit un champ d'amplitude non nulle comprimé, et l'oscillateur paramétrique au-dessus du seuil qui produit des faisceaux jumeaux.

### **1. INTRODUCTION**

Contrairement à ce qui se passe dans beaucoup d'autres domaines de la physique, il est relativement facile d'observer les fluctuations quantiques en optique. Lorsque la lumière est produite par un laser dont toutes les fluctuations d'origine mécanique, acoustique ou électrique ont été supprimées, les fluctuations quantiques donnent lieu à un bruit rémanent sur l'intensité lumineuse détectée. Ce bruit est connu sous le nom de bruit de grenaille ("shot noise" en anglais) ou bruit quantique standard. Dans les années récentes, l'amélioration des sources lasers et des détecteurs a fait que le bruit quantique standard est de plus en plus souvent atteint dans les mesures de précision, en spectroscopie ou en interférométrie, limitant ainsi la sensibilité de la détection.

On a longtemps pensé que le bruit quantique standard constituait une limite insurmontable. Mais au milieu des années 1980, des expériences ont montré que si les fluctuations quantiques étaient inévitables, leur effet sur les mesures pouvait être contourné. Avec des faisceaux lumineux dits "non classiques", on sait maintenant atteindre des réductions de bruit allant jusqu'à 90% au-dessous du bruit quantique standard. Nous nous intéresserons ici à deux types de systèmes produisant des faisceaux lumineux à bruit quantique réduit, les amplificateurs ou oscillateurs paramétriques utilisant des milieux non linéaires d'ordre 2 ( $\chi^{(2)}$ ) et des cavités optiques contenant des milieux non linéaires d'ordre 3 ( $\chi^{(3)}$ ).

## 2. FLUCTUATIONS QUANTIQUES ET ÉTATS COMPRIMÉS

De manière simplifiée, on peut voir le bruit quantique observé sur l'intensité d'un faisceau laser idéal comme résultant de l'arrivée aléatoire des photons sur le détecteur. La distribution aléatoire des photons a une statistique de Poisson et peut se mesurer directement en régime de comptage de photons. Lorsque l'on mesure une intensité lumineuse dans un régime de fort flux où le comptage est impossible, on retrouve sur cette intensité la trace de la distribution des photons : à la valeur moyenne se superposent des fluctuations dont la valeur quadratique moyenne est proportionnelle à la racine carrée de l'intensité, ce qui est caractéristique de la distribution Poissonienne.

### 2.1 Champ électromagnétique quantique

Cependant l'image de l'arrivée aléatoire des photons ne rend pas compte de toutes les caractéristiques du bruit quantique, qui se manifeste non seulement sur l'intensité mais sur la phase ou sur les diverses composantes en quadrature du champ. Pour les représenter correctement, il faut faire appel à une théorie plus complète, où le champ électromagnétique est quantifié.

Une onde plane de fréquence  $\omega_L$  et de direction de propagation et de polarisation données, correspondant à un mode particulier du champ électromagnétique peut être décrite par son champ électrique [1]:

$$E(t) = E_1 \cos \omega_L t + E_2 \sin \omega_L t \quad (1)$$

où  $E_1$  and  $E_2$  sont les composantes en quadrature du champ. Quand le champ est quantifié, les deux composantes sont des opérateurs qui s'expriment en fonction des opérateurs de création et annihilation  $a^\dagger$  et  $a$  du mode, opérateurs qui ont pour effet d'ajouter ou de retirer un photon :

$$E_1 = \mathcal{E}_0 (a + a^\dagger) \quad E_2 = -i\mathcal{E}_0 (a - a^\dagger) \quad (2)$$

avec

$$\mathcal{E}_0 = \sqrt{\hbar\omega_L/2\varepsilon_0 V} \quad (3)$$

où  $V$  est le volume dans lequel est quantifié le champ.  $\mathcal{E}_0$  est l'ordre de grandeur du champ dans un état qui contient en moyenne 1 photon.

Le commutateur de  $a^\dagger$  et  $a$  étant :  $[a, a^\dagger] = 1$ ,  $E_1$  et  $E_2$  ne commutent pas. Ce sont des quantités conjuguées, de même que la position  $q$  et l'impulsion  $p$  d'une particule. En conséquence, elles ne peuvent pas être mesurées avec une précision infinie simultanément et la dispersion des résultats  $\Delta E_1$  et  $\Delta E_2$  obéit à une inégalité de Heisenberg :

$$\Delta E_1 \cdot \Delta E_2 \geq \mathcal{E}_0^2 \quad (4)$$

On peut représenter le champ dans "l'espace des phases" où les coordonnées sont les deux composantes en quadrature, coefficients de  $\sin \omega_L t$  et  $\cos \omega_L t$  dans l'équation (1). Dans un tel diagramme, analogue à celui de la représentation de Fresnel, un champ classique est représenté par un vecteur dont le module et l'argument sont l'amplitude et la phase. Pour un champ quantique, le résultat des mesures sur  $E_1$  et  $E_2$  fluctue de quantités  $\Delta E_1$  et  $\Delta E_2$ . L'extrémité du vecteur représentant le champ appartient à une surface dans l'espace des phases dont la dimension est supérieure à la limite donnée par l'équation (4).

L'état le plus proche d'un champ classique est celui pour lequel les fluctuations sur les deux quadratures sont égales à la limite permise par l'équation (4). L'aire d'incertitude a alors une forme circulaire de diamètre  $\mathcal{E}_0$  dans l'espace des phases, comme indiqué sur la figure 1 (sur cette figure, le champ et ses fluctuations ne sont pas à la même échelle ; un champ laser comprend de très nombreux photons, alors que les fluctuations ont pour ordre de grandeur le champ d'un photon). Un tel état d'incertitude minimum est appelé *état cohérent*. Les fluctuations qui lui correspondent sont les fluctuations quantiques standard.

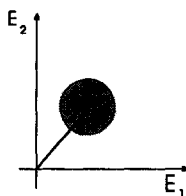


Figure 1 : Représentation d'un état cohérent dans l'espace des phases

Le champ correspondant à l'état de plus basse énergie d'un mode a une valeur moyenne nulle, mais, à cause du principe d'incertitude de Heisenberg, il ne peut avoir des fluctuations nulles. On peut montrer que cet état vide est un état cohérent particulier. Il est représenté dans l'espace des phases par un disque de diamètre  $\mathcal{E}_0$  centré sur l'origine.

## 2.2 Etats comprimés

Pour réduire les fluctuations au-dessous de  $\mathcal{E}_0$ , il faut briser la symétrie entre les deux quadratures. On peut en effet diminuer  $\Delta E_1$  pourvu que  $\Delta E_2$  augmente au dessus de  $\mathcal{E}_0$ . Des états possédant cette propriété sont dits *comprimés*

Dans l'espace des phases, un état comprimé a une forme allongée, avec une dispersion plus petite sur une des composantes que sur l'autre. Les fluctuations peuvent être comprimées en amplitude c'est-à-dire parallèlement au champ moyen (figure 2, courbe a), ou en phase c'est-à-dire perpendiculairement au champ moyen (figure 2, courbe b), ou sur une quadrature quelconque,  $E_2$  par exemple (figure 2 courbe c).

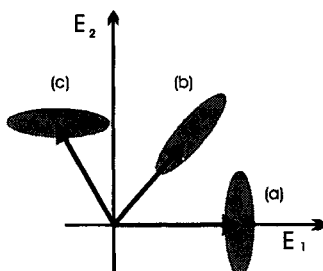


Figure 2 : Représentation d'un état comprimé dans l'espace des phases : (a) état comprimé en amplitude, (b) état comprimé en phase, (c) état comprimé en quadrature.

### 2.3 Mesures d'intensité

Si le champ moyen est bien plus grand que les fluctuations, on peut écrire les fluctuations d'intensité dans le cadre d'une approximation linéaire

$$\Delta I^2 = 4E_1^2 \Delta E_1^2 \quad (5)$$

où nous avons supposé que le champ moyen était aligné le long de l'axe  $E_1$ . Le bruit quantique standard correspond au cas où les fluctuations de d'amplitude sont égales à celles d'un champ cohérent :  $\Delta E_1^2 = \mathcal{E}_0^2$ . Le bruit de photon est donc caractérisé par une variance proportionnelle à l'intensité moyenne :

$$(\Delta I^2)_{st} = 4E_1^2 \mathcal{E}_0 \quad (6)$$

Si l'on relie l'intensité au nombre de photons  $N$

$$I = \frac{2\hbar\omega_L}{\varepsilon_0 V} N \quad (7)$$

on obtient

$$(\Delta N^2)_{st} = \langle N \rangle \quad (8)$$

On retrouve la statistique de Poisson prévue par le modèle de l'arrivée aléatoire des photons. Le bruit d'intensité peut être réduit par compression des fluctuations de la composante  $E_1$ , c'est-à-dire ici de l'amplitude du champ. Plus généralement, dans la plupart des mesures optiques, seule une composante de quadrature du champ est concernée. On peut réduire le bruit sur la mesure en comprimant les fluctuations quantiques du champ sur la quadrature correspondante.

### 2.4 Modèle de champ quantique pour un faisceau laser

Jusqu'ici nous avons seulement considéré un champ strictement monomode et ses fluctuations à la même fréquence. De fait, les mesures sont sensibles aux fluctuations dans une certaine bande de fréquence, qui est l'inverse de la constante de temps utilisée. Nous sommes donc amenés à considérer des champs quasi monomodes, avec un mode de fréquence centrale  $\omega_L$ , dont la valeur moyenne du nombre de photons peut être importante, entouré de modes de fréquences voisines qui ne comportent pas ou presque pas de photons. Ces modes sont les modes de fluctuation qui ont des fréquences non nulles par rapport à la fréquence centrale.

Pour traiter ce cas, il est commode d'introduire un champ  $\mathcal{E}(t)$  qui est une somme de Fourier des modes concernés, avec des fréquences de bruit  $\omega$  faibles par rapport à la fréquence centrale  $\omega_L$  [2]

$$\mathcal{E}^+(t) = \mathcal{E}_{\omega_L} \int \frac{d\omega}{2\pi} a_{\omega_L + \omega} \exp(-i\omega t) \exp(-i\omega_L t) \quad (9a)$$

$$\mathcal{E}^-(t) = \mathcal{E}_{\omega_L} \int \frac{d\omega}{2\pi} a_{\omega_L - \omega}^\dagger \exp(-i\omega t) \exp(+i\omega_L t) \quad (9b)$$

La relation de commutation des opérateurs transformés de Fourier  $a_{\omega_L + \omega}$  et  $a_{\omega_L - \omega'}^\dagger$  est

$$[a_{\omega_L + \omega}, a_{\omega_L - \omega'}^\dagger] = 2\pi \delta(\omega + \omega') \quad (10)$$

où  $\mathcal{E}_{\omega_L}$  est défini par

$$\mathcal{E}_{\omega_L} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_L}{2\varepsilon_0 S c}} \quad (11)$$

Dans cette expression,  $S$  est la section du faisceau lumineux. On voit que la valeur moyenne du produit  $\langle a_{\omega_L-\omega}^\dagger a_{\omega_L+\omega} \rangle$  est le nombre moyen de photons par unité de temps dans le faisceau. On peut montrer que la relation d'incertitude de Heisenberg pour la dispersion des composantes de quadrature, moyennée sur un certain temps de mesure  $T$  s'écrit maintenant

$$\Delta E_1 \Delta E_2 \geq \frac{\mathcal{E}_{\omega_L}}{T} \quad (12)$$

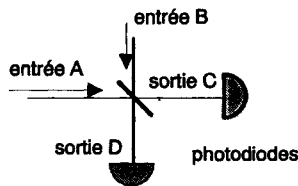
Cette expression est équivalente à l'expression (4) pour un mode de volume  $ScT$ . En utilisant cette relation pour calculer le bruit de photon (équation 6) on retrouve le résultat bien connu que le bruit est réduit si l'on moyenne les mesures sur des temps plus longs.

Dans la suite nous nous intéresserons plus spécifiquement aux composantes de Fourier des fluctuations du champ, et à leur spectre de bruit qui est directement accessible à l'expérience à l'aide d'un analyseur de spectre.

Pour montrer comment les fluctuations quantiques interviennent dans les mesures, nous allons tout d'abord étudier un système optique très simple, la lame séparatrice.

### 3. BRUIT QUANTIQUE À LA SORTIE D'UNE LAME SÉPARATRICE

Quand un faisceau laser passe à travers une lame semi-transparente (figure 3), en entrant par l'entrée A, les deux sorties C et D voient leur bruit quantique augmenté. Cela peut se comprendre comme une conséquence de la nature corpusculaire de la lumière. Chaque photon a une probabilité  $\frac{1}{2}$  d'être transmis ou réfléchi. Par suite du caractère aléatoire de ce processus de transmission/réflexion, il apparaît un bruit de partition qui est indépendant de la statistique de photon du faisceau entrant. On peut retrouver cette propriété de manière plus quantitative en calculant les fluctuations des champs aux deux sorties de la lame.



**Figure 3 :** Les champs entrant par les entrées A et B de la lame sont partiellement transmis et partiellement réfléchis et se recombinent sur les sorties C et D

#### 3.1 Détection homodyne

Considérons un dispositif souvent utilisé pour la "détection homodyne" qui comprend une lame séparatrice qui mélange les champs entrant par les voies A et B et deux photodétecteurs sur les voies de sortie C et D. Les coefficients de transmission et de réflexion en amplitude de la lame sont respectivement  $t$  et  $r$  (avec  $r^2 + t^2 = 1$ ). Les relations entre les champs quantiques entrants et sortants sont les mêmes que celles données par l'optique classique.

$$E_C = t E_A + r E_B \quad (13a)$$

$$E_D = -r E_A + t E_B \quad (13b)$$

Le signe - dans l'équation (13b) vient du déphasage de  $\pi$  entre les réflexions air-verre et verre-air. Considérons tout d'abord une lame semi-transparente. Dans ce cas, on a

$$r = t = 1/\sqrt{2} \quad (14)$$

Dans la suite, nous utiliserons la méthode "semi-classique" [3,4,5] pour traiter les champs quantiques : les champs considérés sont la somme d'un champ classique de valeur égale à la valeur moyenne du champ quantique (éventuellement nulle) et d'un champ fluctuant dont la valeur quadratique moyenne est égale à celle des fluctuations quantiques. Ainsi, si l'on n'envoie aucun champ à l'entrée d'un système optique, il faudra supposer que le champ entrant est en fait le champ fluctuant du vide. Avec ces hypothèses on montre que l'on peut appliquer les lois de l'optique classique pour déterminer le champ sortant d'un système optique.

Nous utilisons maintenant ces principes pour calculer les intensités  $I_C$  et  $I_D$  des champs en sortie de la lame semi-transparente. En supposant que le champ  $E_A$  est beaucoup plus intense que le champ  $E_B$  nous obtenons

$$I_C = 1/2(E_A^2 + E_A(E_B + E_B^*)) \quad (15a)$$

$$I_D = 1/2(E_A^2 - E_A(E_B + E_B^*)) \quad (15b)$$

où le champ  $E_A$  a été supposé réel et où  $(E_B + E_B^*)/2 = E_{B1}$  est la composante de  $E_B$  en phase avec l'oscillateur local  $E_A$ .

La différence  $I$  des intensités  $I_C$  et  $I_D$  s'écrit

$$I = I_C - I_D = E_A(E_B + E_B^*) = 2E_A E_{B1} \quad (16)$$

Cette différence d'intensité est un signal résultant de l'homodynage par le champ  $E_A$  (oscillateur local) de la composante de quadrature du champ  $E_B$  alignée avec  $E_A$ . Lorsque l'on calcule les fluctuations de  $I$ , les fluctuations de l'oscillateur local disparaissent et on obtient

$$\Delta I^2 = 4E_A^2 \Delta E_{B1}^2 \quad (17)$$

Supposons maintenant que le champ entrant en  $B$  est nul. Cela implique que les fluctuations du vide entrent en  $B$  et sont homodynées par l'oscillateur local. Le bruit sur la différence d'intensité est alors donné par

$$\Delta I^2 = 4E_A^2 \mathcal{E}_0^2 \quad (18)$$

Comparant ce résultat avec l'équation (6), on voit que ce bruit est le même que le bruit quantique standard du champ  $E_A$  de l'oscillateur local. Il est indépendant des fluctuations réelles de l'oscillateur local. Cette expérience procure donc une mesure directe du bruit quantique standard d'un champ quelconque.

Si maintenant on envoie sur l'entrée  $B$  de la lame semi-transparente un champ qui n'est plus vide mais qui est constitué de "vide comprimé", le bruit sur  $I$  n'est plus le bruit quantique standard. Si la quadrature comprimée de  $E_B$  est alignée avec  $E_A$  le bruit sur  $I$  est inférieur au bruit quantique standard. Cette propriété a été utilisée dans les expériences de génération d'états comprimés qui sont décrites plus loin pour détecter la présence de ces états du champ.

### 3.2 Effets des pertes sur la lumière comprimée

Les pertes optiques ont un effet destructeur sur la lumière comprimée. On peut modéliser les pertes optiques linéaires qui se produisent à la traversée d'un milieu matériel par une lame séparatrice ayant un coefficient de transmission en intensité  $r^2=T$ . Nous reprenons la lame de la figure 3 et nous supposons qu'un champ non nul entre par l'entrée  $A$  tandis que le vide entre par l'entrée  $B$ . Les fluctuations d'amplitude du champ transmis  $E_C$ . (fluctuations en phase avec la valeur moyenne du champ, supposé réel) valent alors

$$\Delta E_{C1}^2 = r^2 \Delta E_{A1}^2 + r^2 \mathcal{E}_0^2 \quad (19)$$

La lame semi-transparente mélange les fluctuations des deux champs. Si les fluctuations du champ entrant sont égales au bruit quantique standard ( $\Delta E_{A1}^2 = \mathcal{E}_0^2$ ), on trouve que les fluctuations du champ sortant sont également égales au bruit quantique standard car  $r^2+r^2=1$ . Cependant, si le champ entrant a des fluctuations inférieures au bruit quantique standard, les pertes tendent à ramener ses fluctuations au bruit quantique standard et donc à détruire la compression de bruit. Notons que le même raisonnement est vrai pour un champ ayant un fort excès de bruit, qui est également ramené au bruit quantique standard.

Dans un système de détection, une efficacité quantique inférieure à 1 a le même effet, puisqu'un détecteur de rendement quantique  $T$  peut être considéré comme un détecteur de rendement quantique 1 précédé d'une lame de coefficient de transmission  $T$ .

## 4. GÉNÉRATION D'ÉTATS COMPRIMÉS DU RAYONNEMENT

La plupart des méthodes utilisées pour générer des états comprimés reposent sur des processus d'optique non linéaire, qui peuvent être du second ordre ( $\chi^{(2)}$ ) ou du troisième ordre ( $\chi^{(3)}$ ). Le premier cas correspond au mélange à 3 ondes : un milieu à coefficient  $\chi^{(2)}$  non nul, irradié par un faisceau laser de pompe à la fréquence  $\omega_0$  émet deux ondes dites signal et complémentaire (*idler*), de fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$  vérifiant la condition de conservation de l'énergie,  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_0$ . Un photon pompe disparaît alors que deux photons, signal et complémentaire, sont créés.

Le second cas correspond au mélange à 4 ondes : dans un milieu à coefficient  $\chi^{(3)}$ , deux photons de l'onde pompe à la fréquence  $\omega_0$  disparaissent tandis que deux photons sont créés dans les ondes signal et complémentaire aux fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . La condition de conservation de l'énergie requiert :  $\omega_1 + \omega_2 = 2\omega_0$ . Ces deux types de systèmes peuvent être utilisés soit dans le régime non dégénéré où les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et/ou les polarisations sont différentes, soit dans le régime dégénéré où les fréquences sont égales et les polarisations identiques. Dans ce dernier cas, les champs signal et complémentaire se confondent en un seul et même champ.

La première observation de compression des fluctuations lumineuses a été effectuée en 1985, dans une expérience reposant sur le mélange à 4 ondes dégénéré dans de la vapeur de sodium [6]. La non-linéarité était exaltée en plaçant le milieu atomique dans une cavité. En 1986, de la lumière comprimée a été produite dans un système utilisant un milieu non linéaire du second ordre dans une cavité [7]. Nous décrirons dans la suite la génération de lumière comprimée dans un milieu à  $\chi^{(2)}$  utilisé en régime dégénéré, puis dans un milieu  $\chi^{(3)}$  utilisé comme un milieu possédant un indice non linéaire (effet Kerr) [8,9] et enfin le cas du mélange à trois ondes non dégénéré, qui permet de produire un autre type de lumière non classique, les " faisceaux jumeaux " [10].

## 4.1 Production de lumière comprimée par génération paramétrique dégénérée

### 4.1.1 Théorie

Nous allons traiter la compression du bruit quantique dans un milieu non linéaire par la méthode semi-classique évoquée plus haut : nous calculons les champs par les équations de l'électromagnétisme classique, en tenant compte du fait que les champs entrants ont des fluctuations aléatoires qui "simulent" celles des champs quantiques. En particulier quand le champ entrant est nul classiquement, nous considérerons que ce sont les fluctuations du vide qui entrent dans le système. Pour les interactions paramétriques de type  $\chi^{(2)}$  et  $\chi^{(3)}$ , on peut montrer [11] que ce traitement est complètement équivalent au traitement quantique standard.

Nous considérons un milieu non linéaire de coefficient  $\chi^{(2)}$  non nul, éclairé par un laser de pompe à la fréquence  $\omega_0$  placé dans une cavité optique résonante pour le sub-harmonique  $\omega_1 = \omega_0/2$ . Un tel système peut osciller comme un laser si le laser pompe a une intensité supérieure à un certain seuil [12]. Ici, nous supposons que la puissance de pompe est assez faible pour que la cavité reste au-dessous du seuil d'oscillation. L'équation qui donne la modification de l'amplitude (complexe) du champ signal  $\alpha_1$  sur un tour de cavité s'écrit :

$$\tau \frac{\partial \alpha_1}{\partial t} = -\gamma \alpha_1 + \eta \alpha_1^* + t \alpha_1^{in} \quad (20)$$

où  $\tau$  est le temps d'aller-retour dans la cavité,  $\gamma$  est l'amortissement du champ dans la cavité (sans dimension) qui est relié aux coefficients de transmission (supposé faible) et de réflexion du miroir de sortie  $r$  et  $t$  par

$$\gamma = 1 - r = t^2 / 2 \quad (21)$$

$\eta$  est le gain paramétrique, qui est proportionnel à l'intensité du champ pompe. On a supposé que le champ pompe n'est pas modifié à la traversée du milieu (pas de "déplétion" de la pompe) et que l'accord de phase est réalisé entre onde pompe et sub-harmonique. Soulignons que le gain paramétrique sur  $\alpha_1$  fait intervenir  $\alpha_1^*$ , ce qui est caractéristique de l'amplification paramétrique.

Le champ  $\alpha_1^{in}$  est le champ entrant dans le système dans le mode qui respecte la condition d'accord de phase. Ici ce champ est le champ du vide [3].

Nous exprimerons la solution en termes des composantes de quadrature

$$q_1 = (\alpha_1 + \alpha_1^*) / \sqrt{2} \quad p_1 = (\alpha_1 - \alpha_1^*) / \sqrt{2}i \quad (22)$$

avec des notations similaires pour  $q_1^{in}$  et  $p_1^{in}$ .

Nous utilisons le formalisme des champs quasi monomodes introduits à la section 2.4, et nous remplaçons  $\alpha_1$  par son expression comme somme de Fourier de modes de fréquence  $\omega_1 + \omega$  où  $\omega$  est une fréquence de bruit. La solution de l'équation (20) et de son complexe-conjugué s'écrit

$$q_1(\omega) = \frac{t q_1^{in}(\omega)}{\gamma - \eta + i\omega\tau} \quad p_1(\omega) = \frac{t p_1^{in}(\omega)}{\gamma + \eta + i\omega\tau} \quad (23)$$

Par ailleurs, le champ sortant  $\alpha_1^{out}$  est relié au champ dans la cavité  $\alpha_1$  et au champ entrant  $\alpha_1^{in}$  par une relation de réflexion-transmission semblable à l'équation (13b)

$$\alpha_1^{out} = t \alpha_1 - \alpha_1^{in} \quad (24)$$



où le coefficient de réflexion a été remplacé par 1. Ainsi le champ sortant est égal à la somme du champ dans la cavité transmis par le miroir et des fluctuations du vide réfléchies par le miroir. Utilisant les équations (23) et (24), on obtient

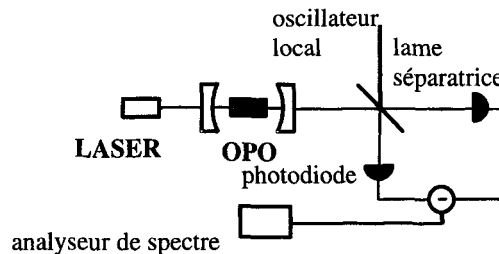
$$q_1^{out}(\omega) = \frac{\gamma + \eta - i\omega\tau}{\gamma - \eta + i\omega\tau} q_1^{in}(\omega) \quad p_1^{out}(\omega) = \frac{\gamma - \eta - i\omega\tau}{\gamma + \eta + i\omega\tau} p_1^{in}(\omega) \quad (25)$$

Ces équations montrent clairement que le champ du vide entrant a été modifié : la quadrature  $q_1$  est amplifiée tandis que la quadrature  $p_1$  est “dé-amplifiée” c’est-à-dire comprimée et tend vers 0 pour la fréquence de bruit nulle et pour  $\gamma = \eta$ , ce qui correspond au seuil d’oscillation de la cavité. La plage de fréquence de bruit sur laquelle apparaît la compression est de l’ordre de la largeur de la cavité. Au-delà de cette valeur, le bruit revient au bruit quantique standard suivant une fonction lorentzienne. Le champ du vide est ainsi comprimé par ce système. On appelle souvent l’état de sortie “vide comprimé”, bien que ce champ ne soit plus vide à proprement parler [13].

#### 4.1.2 Expériences

Le montage expérimental [7] employé pour produire le “vide comprimé” comprend un cristal non linéaire de niobate de lithium dopé oxyde de magnésium ( $\text{MgO:NiNbO}_3$ ) pompé par un laser à YAG monomode doublé à  $0.532 \mu\text{m}$ . Le cristal est placé dans une cavité résonante pour le champ sub-harmonique à  $1.06 \mu\text{m}$  (figure 4). L’accord de phase est réalisé pour ces longueurs d’ondes en chauffant le cristal. Le champ sortant de la cavité est analysé à l’aide de la détection homodyne décrite à la section 3.2, où l’oscillateur local est constitué par une partie du fondamental du laser de pompe à  $1.06 \mu\text{m}$ . Le signal de différence des photodiodes de la détection homodyne est envoyé dans un analyseur de spectre.

Le signal observé à une fréquence de bruit fixée dépend de la phase relative de l’oscillateur local et du champ émis par la cavité. L’expérience montre qu’il oscille autour du niveau du bruit quantique standard en fonction de la phase de l’oscillateur local. La compression de bruit ainsi obtenue augmente lorsque la puissance de pompe se rapproche du seuil d’oscillation de la cavité. La réduction de bruit optimum obtenu avec ce type montage est de l’ordre de 80% au-dessous du bruit quantique standard [14,15].



**Figure 4 :** Schéma expérimental utilisant la génération paramétrique dans une cavité pour produire du vide comprimé. Le vide comprimé est analysé en le recombinant avec un oscillateur local dans un détecteur homodyne fait d’une lame séparatrice 50/50 et de deux photodétecteurs

## 4.2 Production de lumière comprimée par un milieu possédant un indice non linéaire

Dans cette section, nous allons considérer un système utilisant un milieu non linéaire du troisième ordre. L'interaction d'un champ avec un tel milieu produit une compression des fluctuations après propagation sur une distance suffisante. Ce phénomène a été mis en évidence dans des fibres optiques en silice [16] et dans des semi-conducteurs [17]. Les expériences avec des impulsions très courtes ou des solitons sont particulièrement intéressantes [18]. Toutefois, l'effet est en général plus facile à observer quand le milieu non linéaire est placé dans une cavité. Quand ce système est éclairé par un laser assez intense, il peut donner lieu au phénomène de bistabilité optique. Les premières propositions pour produire de la lumière comprimée reposaient sur une telle cavité non linéaire au voisinage du seuil de bistabilité [8,9].

### 4.2.1 Théorie

Le traitement des fluctuations quantiques du champ dans une cavité non linéaire s'appuie sur la théorie semi-classique développée à la section 4.1.1 [4]. Nous considérons une cavité comprenant un miroir complètement réfléchissant et un miroir de couplage (cavité à une entrée-sortie). Classiquement, les champs entrant et sortant de la cavité sont reliés par

$$t\alpha^{in} = (1 - r e^{-i\Phi})\alpha \quad (26a)$$

$$t\alpha^{out} = (e^{-i\Phi} - r)\alpha \quad (26b)$$

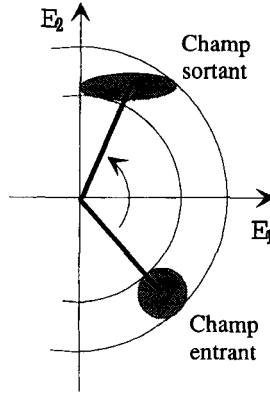
où  $r$  et  $t$  sont les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude du miroir de couplage et  $\Phi$  le déphasage total sur un aller et retour dans la cavité, qui comprend le déphasage linéaire et le déphasage non linéaire dû au milieu non linéaire (milieu Kerr) :

$$\Phi = \Phi_0 + K|\alpha|^2 \quad (27)$$

La transformation  $\alpha_1^{in} \rightarrow \alpha_1^{out}$  est une rotation dans l'espace des phases d'un angle qui dépend de l'intensité du champ dans la cavité. De ce fait tous les points de la distribution de probabilité montrée sur la figure 5 ne tournent pas du même angle et la forme de cette distribution est modifiée. Comme la surface totale est conservée dans la rotation, une élongation dans une direction entraîne une diminution dans une autre direction, et donne la compression recherchée.

Pour calculer le spectre de compression, nous écrivons comme précédemment l'équation d'évolution du champ dans la cavité. Nous supposons que la cavité a une bonne finesse et que le déphasage  $\Phi$  est faible de sorte que l'on peut développer l'exponentielle de l'équation (26). L'amortissement du champ dans la cavité (sans dimension)  $\gamma$  est relié aux coefficients  $r$  et  $t$  par l'équation (21). En conséquence, le coefficient de transmission  $t$  peut s'exprimer comme

$$t = \sqrt{2\gamma} \quad (28)$$



**Figure 5 :** Représentation dans l'espace des phases de la modification d'un champ cohérent après passage dans une cavité contenant un milieu non linéaire. Le champ subit une rotation dépendant de l'intensité qui produit une distorsion de la distribution de probabilité.

Le temps d'aller et retour dans la cavité est  $\tau$  et le taux de déclin du champ dans la cavité est  $\gamma/\tau$ . Le milieu non linéaire est dans un premier temps supposé idéal (sans pertes). Dans ces conditions l'équation d'évolution du champ s'écrit

$$\tau \frac{\partial \alpha(t)}{\partial t} = -(\gamma + i\Phi_0 + iK|\alpha(t)|^2) + \sqrt{2\gamma} \alpha^{in}(t) \quad (29)$$

où le champ entrant  $\alpha_1^{in}$  (d'amplitude moyenne non nulle dans ce cas) est relié au champ sortant  $\alpha_1^{out}$  par

$$\alpha^{out}(t) = \sqrt{2\gamma} \alpha(t) - \alpha^{in}(t) \quad (30)$$

Contrairement au cas de la section 4.1 où nous traitons des équations linéaires, nous avons maintenant une équation différentielle non linéaire. Considérant que les fluctuations sont faibles par rapport au champ moyen, nous résolvons tout d'abord l'équation stationnaire pour les champs moyens, puis nous différencions l'équation (29) autour des valeurs moyennes pour trouver les fluctuations quantiques. En prenant ensuite la transformation de Fourier comme précédemment, nous obtenons

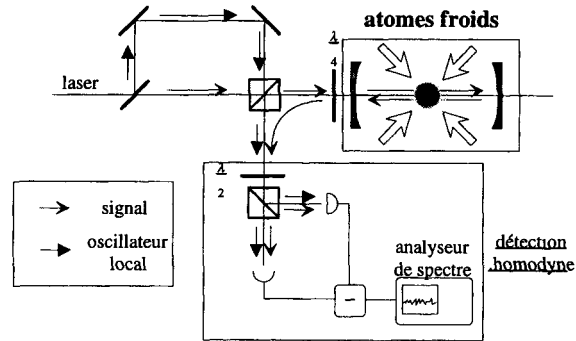
$$(\gamma + i\Phi_0 + 2iK|\alpha_0|^2 - i\omega\tau) \delta\alpha(\omega) + iK\alpha_0^2 \delta\alpha^*(\omega) = \sqrt{2\gamma} \delta\alpha^{in}(\omega) \quad (31a)$$

$$(\gamma - i\Phi_0 - 2iK|\alpha_0|^2 - i\omega\tau) \delta\alpha^*(\omega) - iK\alpha_0^{*2} \delta\alpha(\omega) = \sqrt{2\gamma} \delta\alpha^{in*}(\omega) \quad (31b)$$

où les  $\delta\alpha$  sont les fluctuations quantiques des champs,  $\alpha_0$  est la valeur moyenne stationnaire et  $\delta\alpha^{in}$  correspond aux fluctuations quantiques du champ entrant, supposé ici égal au bruit quantique standard. Les équations (31) présentent comme dans le cas de la génération paramétrique une dépendance en phase qui produit la compression de bruit. On trouve que la compression est totale pour des points de fonctionnement au voisinage des points tournants de la courbe de bistabilité. Nous ne donnerons pas ici l'expression finale qui a une forme plus compliquée que les équations (25). On trouve aussi que la plage de fréquence de bruit sur laquelle apparaît la compression est de l'ordre de la largeur de la cavité. Si on introduit des pertes dans la cavité, la compression de bruit est dégradée.

#### 4.2.2 Expériences

La génération d'états comprimés a été observée dans un système comprenant des atomes à deux niveaux dans une cavité. Pour éliminer l'effet Doppler, on utilise soit un jet atomique perpendiculaire à la cavité [19], soit des atomes refroidis par laser [20].



**Figure 6 :** Schéma expérimental montrant la production de lumière comprimée à l'aide d'une cavité contenant des atomes refroidis par laser qui constituent le milieu non linéaire.

Dans ce cas, le milieu ne peut plus être considéré comme un milieu Kerr parfait, car les atomes sont excités au voisinage d'une résonance atomique et des effets supplémentaires comme l'émission de lumière de fluorescence doivent être pris en compte dans l'étude théorique [21].

L'expérience comportant des atomes refroidis par laser est schématisée sur la figure 6. Les atomes sont illuminés par un ensemble de 6 faisceaux lasers se contre-propageant dans les 3 directions de l'espace et placés dans un gradient de champ magnétique. L'ensemble forme un piège magnéto-optique qui piège et refroidit les atomes à une température de l'ordre du mK. Les atomes sont entourés par une cavité optique proche de résonance pour le faisceau laser à comprimer. La fréquence de ce faisceau laser est décalée de la résonance atomique d'environ 10 largeurs de raie. La puissance de ce faisceau est très faible, environ  $10 \mu\text{W}$ , sur un waist de cavité de  $1 \text{ mm}^2$ . La sortie de la cavité comporte une diode optique formée par un polariseur et une lame  $\lambda/4$ , qui permet de séparer le faisceau réfléchi par la cavité du faisceau entrant. À la sortie de la cavité, le faisceau est mélangé avec un oscillateur local de puissance  $10 \text{ mW}$  issu du même laser, et détecté par un système analogue à celui présenté à la section 4.1.1. La compression de bruit obtenue avec ce montage est de 40% [20].

### 4.3 Production de faisceaux jumeaux par génération paramétrique non dégénérée

Comme nous l'avons indiqué plus haut, dans la génération paramétrique, deux photons, signal et complémentaire, sont émis en même temps, tandis qu'un photon pompe est annihilé. Les photons sont donc créés par paires, ce qui produit une corrélation au niveau quantique entre les intensités des faisceaux correspondants. Ces faisceaux, qui diffèrent par la fréquence et/ou la polarisation peuvent être séparés au moyen d'un prisme ou d'un polariseur, et leurs intensités comparées à l'aide de deux photodétecteurs. La corrélation quantique a été observée soit en simple passage [22] dans un cristal soit en cavité.

Une cavité résonante pour les ondes signal et complémentaire placée autour du cristal a l'avantage de renforcer l'effet non linéaire. Dans ce cas, la cavité est pompée par un laser intense, au-dessus du seuil d'oscillation. Elle émet deux faisceaux jumeaux, qui présentent un fort degré de corrélation quantique. Cependant la cavité introduit une certaine décorrélation entre les deux faisceaux. En effet, les deux photons d'une paire ne sortent pas nécessairement de la cavité en même temps. Si le temps de mesure est faible devant le temps de stockage dans la cavité, les photons d'une même paire ne seront en général pas détectés tous les deux. En revanche, si le temps de mesure est long devant le temps de stockage de la cavité, toutes les paires sont détectées, l'on s'attend à ce que les deux intensités ainsi mesurées présentent un fort degré de corrélation. Quantitativement, la différence des intensités doit avoir un bruit inférieur au bruit quantique standard (qui serait celui de la différence de deux faisceaux non corrélés, ayant tous deux un bruit égal au bruit quantique standard). Cela correspond, dans le domaine des fréquences, c'est-à-dire pour le signal donné par un analyseur de spectre, à un spectre de bruit au-dessous du bruit quantique standard à basse fréquence et qui remonte au bruit quantique standard pour des fréquences supérieures à la bande passante de la cavité.

#### 4.3.1 Théorie

Pour déterminer les fluctuations quantiques à la sortie d'un oscillateur paramétrique non dégénéré au-dessus du seuil, nous employons à nouveau la méthode semi-classique de la section 4.1.1 [23]. Cependant dans ce cas, il faut tenir compte de la déplétion de la pompe. Les équations sont alors non linéaires et nous utilisons la méthode de linéarisation décrite à la section 4.2.1. Comme dans l'équation (20) les termes sources pour les champ signal  $\alpha_1$  et complémentaire  $\alpha_2$  sont les fluctuations du vide entrant par le miroir de couplage. Le terme source pour le champ pompe  $\alpha_0$  est le champ cohérent  $\alpha_0^{\text{in}}$  qui a une amplitude moyenne non nulle et des fluctuations égales à celles du vide. Les équations d'évolution des trois champs dans la cavité s'écrivent

$$\tau \frac{\partial \alpha_1}{\partial t} = -\gamma \alpha_1 - \chi \alpha_2^* \alpha_0 + \sqrt{2\gamma} \alpha_1^{\text{in}} \quad (32a)$$

$$\tau \frac{\partial \alpha_2}{\partial t} = -\gamma \alpha_2 - \chi \alpha_1^* \alpha_0 + \sqrt{2\gamma} \alpha_2^{\text{in}} \quad (32b)$$

$$\tau \frac{\partial \alpha_0}{\partial t} = -\gamma_0 \alpha_0 - \chi \alpha_1 \alpha_2 + \sqrt{2\gamma_0} \alpha_0^{\text{in}} \quad (32c)$$

où  $\chi$  est le coefficient non linéaire du second ordre du cristal,  $\gamma$  et  $\gamma_0$  sont les coefficients d'amortissement des champs signal et complémentaire d'une part, pompe d'autre part et les autres notations sont analogues à celles de l'équation (20). Au-dessus d'une puissance de pompe seuil donnée par

$$|\alpha_0^{\text{in}}(\text{seuil})|^2 = \gamma_0 \gamma^2 / 2\chi^2 \quad (33)$$

les valeurs moyennes stationnaires des champs au-dessus du seuil sont

$$\alpha_0 = -\gamma / \chi \quad (34a)$$

$$|\alpha_1|^2 = |\alpha_2|^2 = (\gamma_0 \gamma / \chi^2)(\sigma - 1) \quad (34b)$$

où le paramètre  $\sigma$  vaut

$$\sigma = \sqrt{2\chi^2 / \gamma_0 \gamma^2} |\alpha_0^{\text{in}}| \quad (35)$$

Comme précédemment, on linéarise les équations autour des valeurs stationnaires, on effectue une transformation de Fourier et on introduit les composantes de quadrature des champs, définies par

$$q_i = (\alpha_i + \alpha_i^*)/\sqrt{2} \quad p_i = (\alpha_i - \alpha_i^*)/\sqrt{2}i \quad (36)$$

où  $i = 1, 2, 0$ , et les différences

$$q_- = (q_1 - q_2)/\sqrt{2} \quad p_- = (p_1 - p_2)/\sqrt{2} \quad (37)$$

Nous choisissons les phases de telle sorte que les champs moyens  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  soient réels. Les fluctuations de type  $\delta q$  sont alors de fluctuations d'amplitude alors que les  $\delta p$  sont des fluctuations de phase. Les fluctuations sur la différence des amplitudes sont données par

$$\tau \frac{\partial \delta q_-}{\partial t} = -\gamma \delta q_- + (\chi q_0 / \sqrt{2}) \delta q_- + \sqrt{2} \gamma \delta q_-^{in} \quad (38)$$

Nous voyons qu'elles ne sont pas couplées aux autres quantités et qu'elles vérifient une équation analogue à l'équation 20. En utilisant la relation d'entrée-sortie (30), on obtient

$$\delta q_-^{out}(\omega) = \frac{\gamma + \chi q_0 / \sqrt{2} - i\omega\tau}{\gamma - \chi q_0 / \sqrt{2} + i\omega\tau} \delta q_-^{in}(\omega) \quad (39)$$

Puisque  $\gamma = -\chi q_0 / \sqrt{2}$  on voit que les fluctuations sur la différence des amplitudes et sur la différence des intensités qui lui est proportionnelle, tendent vers 0 pour des fréquences nulles. Le spectre de bruit, donné par le module carré de l'équation (39), avec le bruit quantique standard (bruit entrant) normalisé à 1, est de forme lorentzienne.

$$S_{I_1-I_2}(\omega) = \frac{\omega^2 \tau^2}{\omega^2 \tau^2 + 4\gamma^2}$$

La compression de bruit obtenue ici est extrêmement robuste, puisqu'elle ne dépend ni de l'intensité des faisceaux signal et complémentaire, ni du bruit de pompe. Le seul processus qui dégrade la compression est constitué par les pertes optiques. Si  $\gamma'$  est le coefficient de perte à l'intérieur de la cavité, on montre que la compression est dégradée par le facteur  $\gamma/(\gamma+\gamma')$ . La compression prévue à fréquence nulle n'est plus parfaite, mais elle peut rester très importante avec un cristal de bonne qualité optique.

#### 4.3.2 Expériences

Le dispositif expérimental utilisé dans les références [10,24] comprend un cristal non linéaire de KTP, pompé par un laser à argon monomode ou par un laser à YAG doublé et placé dans une cavité optique résonante pour les champs signal et complémentaire, et aussi pour la pompe, mais avec une finesse moindre (figure 7).

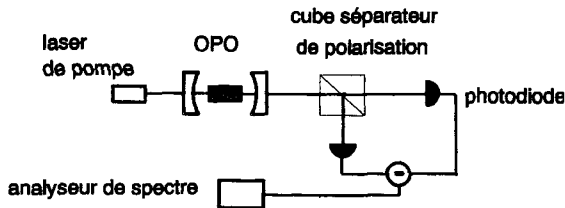


Figure 7 : Schéma du montage expérimental utilisé pour la production de faisceaux jumeaux.

Le cristal étant de type II, les champs signal et complémentaire ont des polarisations orthogonales et sont facilement séparés à la sortie de la cavité par un prisme polariseur. Les intensités des deux champs sont détectées par des photodiodes et soustraites. La différence est envoyée sur un analyseur de spectre. Le bruit sur la différence d'intensité est réduit de 86% par rapport au bruit quantique standard. La réduction de bruit est effective sur une bande de fréquence qui est de l'ordre de la largeur de la cavité.

## 5. CONCLUSION

La compression du bruit quantique a fait de gros progrès dans les dernières années. On sait maintenant réduire le bruit quantique par un ordre de grandeur. D'une manière générale, l'expérience montre que les systèmes non linéaires du second ordre donnent des taux de compression supérieurs aux systèmes du troisième ordre. Cela provient du fait qu'il existe d'excellents cristaux non linéaires possédant un fort  $\chi^{(2)}$  sans effets parasites (niveau résonant, pertes par absorption), tandis que les milieux  $\chi^{(3)}$  ont des non-linéarités plus faibles, sauf si l'on se place au voisinage d'une résonance, ce qui introduit des effets parasites de pertes et d'excès de bruit.

Un processus complètement différent a été utilisé pour produire des champs dont l'intensité est comprimée. Il ne s'agit pas d'un effet optique non linéaire mais d'un effet laser. Le bruit à la sortie du laser est réduit par la régulation du bruit de pompe. En pratique, cette idée a été réalisée sur des lasers à semi-conducteur ayant un courant électrique de pompage stabilisé. Si l'efficacité quantique de la conversion électron-photon est assez grande, on peut montrer que le laser émet un flux de photons qui est lui-même stabilisé, ce qui donne un bruit d'intensité inférieur au bruit quantique standard [25]. Cette technique a permis d'atteindre des taux de compression de l'ordre de 75% [26].

Les systèmes utilisés dans certaines des expériences utilisent des systèmes atomiques assez encombrants ou des cristaux massifs. Un premier pas sur la voie de la miniaturisation a été effectué avec l'utilisation de cavités monolithiques (les miroirs sont déposés directement sur le cristal) comprenant des cristaux de très petite taille [15]. Récemment des taux de compression importants ont été obtenus dans des fibres optiques sur des solitons [27]. Il est également envisageable d'employer des guides intégrés non linéaires à faibles pertes.

Les applications envisagées pour la compression de bruit quantique concernent la physique fondamentale avec les mesures de précision (spectroscopie de haute sensibilité [28] ou interférométrie [29] destinée à la détection des ondes gravitationnelles). La compression du bruit lumineux devrait aussi trouver des utilisations plus appliquées dans des domaines comme les télécommunications [30].

## Références

- [1] Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J., Grynberg G. (1988), *Processus d'interaction entre photons et atomes*, Interéditions/ Editions du CNRS, Paris (Atom-photon interactions (1991) Wiley, New-York).
- [2] Fabre C. in *Quantum Fluctuations* (Eds. S. Reynaud, E. Giacobino et J. Zinn-Justin, North Holland Elsevier, Amsterdam, 1997)
- [3] Reynaud S. et Heidmann A., *Opt. Commun.* **71**, 209 (1989)
- [4] Reynaud S., Fabre C., Giacobino E., Heidmann A., *Phys. Rev.* **A40**, 1440 (1989).

- [5] Reynaud S., Heidmann A., Giacobino E., Fabre C., *in Progress in Optics XXX* (Ed. E. Wolf, Elsevier New-York 1992)
- [6] Slusher R.E, Hollberg L.W., Yurke B., Mertz J.C. et Valley J.F., *Phys. Rev.Lett.* **55**, 2409 (1985); Slusher R.E., Yurke B., Grangier P., LaPorta A., Walls D.F. et Reid M., *J Optical Society Am.* **4**, 1453 (1987).
- [7] Wu L.A., Kimble H.J., Hall J.L. et Wu H., *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2520 (1986); Wu L.A., Min Xiao et Kimble H.J., *J. Opt. Soc. Am.* **B4**, 1465 (1988).
- [8] Lugiato L., Strini G., *Optics Commun.* **41**, 67 and 374 (1982).
- [9] Collett M.J., Walls D.F., *Phys. Rev. A* **32**, 2887 (1985).
- [10] Heidmann A., Horowicz R.J., Reynaud S., Giacobino E., Fabre C. et Camy G., *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2555 (1987).
- [11] Fabre C., Giacobino E., Heidmann A., Lugiato L., Reynaud S., Vadamchino M., Wang Kaige, *Quantum Semiclass. Opt.* **2**, 159-187 (1990).
- [12] Shen Y.R., *The principles of nonlinear optics* (Wiley, New-York, 1984)
- [13] Yuen H.P. et Shapiro J.H. 1979, *Optics Lett.* **4**, 334
- [14] Polzik E. S., Carri J. et Kimble H.J., *Appl. Phys. B* **55**, 279 (1992).
- [15] Schneider K., Bruckmeier R., Hansen H., Schiller S. et Mlynek J., *Opt. Lett.* **21**, 1396 (1996); Schneider K., Lang M., Mlynek J. et Schiller S., *Opt. Express* **2**, 59 (1998).
- [16] Shelby R.M., Levenson M.D, Perlmutter S.H., DeVoe R.G. et Walls D.F. 1986, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 691; Schumaker B.L., Perlmutter S.H., Shelby R.M. et Levenson M.D. 1987, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 357
- [17] Fox A.M., Baumberg J.J., Dabbicco M., Huttner B. et Ryan J.F., *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1728 (1995)
- [18] Rosenbluh M., Shelby R.M., *Phys. Rev. Lett.* **66** 153 (1991); Bergman K., Haus H.A., *Opt. Lett.* **16**, 663 (1991); Bergman K. Doerr C.R., Haus H.A., Shirasaki M., *Opt. Lett.* **18**, 643-645 (1993).
- [19] Raizen, M.G., Orozco L.A., Min Xiao, Boyd T.L. et Kimble H.J., *Phys. Rev. Lett.* **59**, 198 (1987)
- [20] Lambrecht A., Coudreau T., Steinberg A.M. et Giacobino E., *Europhys. Lett.* **36**, 93 (1996).
- [21] Reid M.D. *Phys. Rev. A* **37**, 4792 (1988); Castelli F., Lugiato L.A., Vadamchino M., *Nuovo Cimento B* **10**, 183 (1988); Hilico L., Fabre C., Reynaud S., Giacobino E., *Phys. Rev. A* **46**, 4397 (1992).
- [22] Rarity J.G., Tapster P.R. et Jakeman E. *Optics Commun.* **62**, 201 (1987); Rarity J.G. et Tapster P.R., *in IQEC Technical Digest Series Vol. 8* (OSA, Washington D.C, 1990) p. 8; Abram I., Raj R.K., Oudar J.L. et Dolique G., *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2516 (1987); Aytur O. et Kumar P., *Phys. Rev.Lett.* **65**, 1551 (1990)
- [23] Reynaud S., Fabre C. et Giacobino E., *J. Optical Society Am.* **B4**, 1520 (1987); Fabre C., Giacobino E., Heidmann A. et Reynaud S., *J. de Physique* **50**, 1209 (1989)
- [24] Debuisschert T., Reynaud S., Heidmann A., Giacobino E. et Fabre C., *Quantum Opt.* **1**, 3 (1989); Mertz J., Debuisschert T., Heidmann A., Fabre C., Giacobino E., *Opt. Lett.* **16** 1234 (1991)
- [25] Machida S. et Yamamoto Y., *Phys Rev Lett.* **60**, 792 (1988); Richardson W.H., Yamamoto Y, 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66**, (1963); Richardson W.H., Machida S., Yamamoto Y , *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2867, (1991).



- [26] Freeman M. J., Wang H., Steel D.G., Craig R. et Scifres D.R., *Opt. Lett.* **18**, 379 (1993); Kilper D.C., Steel D.G., Craig R. et Scifres D.R., *Opt. Lett.* **21**, 1283 (1996).
- [27] Friberg S.R., Machida S., Werner M.J., Levanon A. et Mukai T., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3775-3778 (1996); Spälter S. Burk M, Strössner U., Böhm M., Sizmann A. et Leuchs G., *Europhys. Lett.* **38**, 335-340 (1997).
- [28] Nabors C.D. et Shelby R.M., *Phys. Rev. A* **42**, 556 (1990); Marin F., Bramati A., Jost V. et Giacobino E., *Optics Commun.* **140**, 146-157 (1997).
- [29] Caves C.M., *Phys. Rev. D* **21**, 1963 (1981); Min Xiao, Ling-An Wu et Kimble H.J., *Phys. Rev. Lett.* **59**, 278 (1987).
- [30] Bencheikh K., Simonneau C. et Levenson J.A., *Phys. Rev. Lett.* **78**, 34 (1997).



## **Quasi-accord de phase et interactions non linéaires en optique intégrée**

M. De Micheli

*Laboratoire de Physique de la Matière Condensée, UMR 6622, Université de Nice-Sophia Antipolis, Parc Valrose, 06108 Nice cedex 2, France*

**Résumé :** Ces dernières années, l'optique non linéaire a été bouleversée par la mise au point de procédés permettant d'obtenir des matériaux présentant une modulation périodique du coefficient non linéaire. Dans ce chapitre, nous décrirons ces techniques et leurs combinaisons avec les techniques de l'optique intégrée, ce qui permet de concevoir un grand nombre de nouveaux composants, comme des sources laser accordables miniatures.

### **1. INTRODUCTION**

Ces dernières années, un effort de recherche considérable a porté sur la réalisation de sources cohérentes solides accordables. La mise au point de techniques permettant d'obtenir des cristaux ferroélectriques polarisés périodiquement [1] a permis d'utiliser de manière très efficace la technique de quasi-accord de phase proposée par N. Blombergen en 1962 [2]. Cette technique présente de nombreux avantages. Tout d'abord, elle permet d'étendre la plage spectrale d'utilisation de matériaux non linéaires bien connus comme  $\text{LiNbO}_3$  et KTP, en donnant en plus accès à leurs coefficients non linéaires les plus élevés. Deuxièmement, elle permet d'utiliser des matériaux non linéaires non biréfringents comme l'AsGa. Enfin, elle permet d'introduire en différents endroits d'un même substrat non linéaires des propriétés d'accord de phase différentes, ce qui permet de concevoir des composants entièrement nouveaux. Plusieurs processus non linéaires [3, 4] ont été démontrés dans cette configuration et en particulier l'oscillation paramétrique [5, 6].

La réalisation de guides d'ondes dans les cristaux polarisés périodiquement est un enjeu important car cette configuration permet de profiter d'un confinement de l'énergie plus important, de longueurs d'interaction plus grandes et de la possibilité d'ajuster l'accord en utilisant l'effet électro-optique.

Dans ce cours, nous commencerons donc par étudier le quasi-accord de phase et nous présenterons quelques réalisations dans des cristaux massifs qui permettent d'illustrer l'état de l'art en 1998 ainsi que les possibilités originales de la configuration de quasi-accord de phase. Dans une deuxième partie, nous nous concentrerons sur les interactions en optique guidée en nous intéressant plus particulièrement aux guides d'ondes réalisés par échange protonique (PE) [7, 8] sur niobate de lithium polarisé périodiquement (PPLN) dans lesquels ont été réalisées la majorité des expériences. Cette partie comprendra donc une présentation des

difficultés technologiques rencontrées pour réaliser des guides qui respectent à la fois la non--linéarité du cristal et l'organisation périodique des domaines.

## 2. QUASI-ACCORD DE PHASE

### 2.1 Principe

Cette technique d'accord de phase a été initialement proposée par N. Bloembergen [2] en 1962. Elle s'applique à tous les processus d'interaction paramétrique en  $\chi^2$ , mais elle est plus simple à exposer dans le cas de la génération de second harmonique. C'est donc dans ce cas que nous nous placerons, en rappelant tout d'abord qu'après une longueur d'interaction  $L$ , la puissance harmonique est donnée par :

$$P_{2\omega}(L) = P_{\omega}^2 \left| \int_0^L I_R e^{i\delta k(\omega)z} dz \right|^2 \quad (1)$$

Dans cette expression,  $P_{\omega}$  est la puissance fondamentale incidente,  $I_R$  est l'intégrale de recouvrement entre les champs des ondes en interaction et le coefficient non linéaire  $d(x,y)$  du matériau, et  $\delta k(\omega) = k(2\omega) - 2k(\omega)$  est le désaccord de phase. Après intégration le long de la direction de propagation, le terme  $e^{i\delta k(\omega)x}$  donne le facteur en  $\text{sinc}^2\left(\frac{\delta k(\omega)L}{2}\right)$  qui indique

que les seules interactions efficaces sont obtenues autour de la fréquence fondamentale  $\omega$  pour laquelle  $\delta k(\omega) = 0$ . Cette condition, dite condition d'accord de phase, correspond au cas où les deux ondes, fondamentale et harmonique, se propagent à la même vitesse. Cette condition est généralement obtenue en utilisant des matériaux non linéaires biréfringents, les ondes en interaction étant polarisées à  $90^\circ$  et voyant des indices différents. Le Quasi-Accord de Phase (QAP) consiste à introduire une périodicité associée à un vecteur d'onde  $K$ , dans l'un des facteurs de l'intégrale  $I_R$ , de manière à compenser le désaccord de phase. L'efficacité de conversion est alors maximale pour la fréquence  $\omega$  telle que  $\delta k(\omega) - K = 0$  pour laquelle on satisfait une condition de quasi-accord de phase.

Cette périodicité peut être introduite en modulant l'indice du matériau [9] ce qui a pour conséquence de moduler, avec la même période, la forme des champs des ondes en interaction et donc l'intégrale de recouvrement  $I_R$ . Ce procédé a cependant l'inconvénient de créer un réseau qui a la possibilité de coupler les modes guidés avec les modes de rayonnement introduisant ainsi des pertes à la propagation qui limitent sérieusement l'intérêt de la technique.

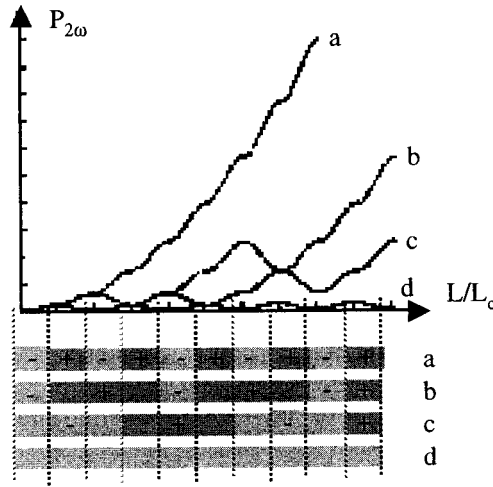
Cette périodicité peut également être introduite en modulant le coefficient non linéaire  $d$ . Une situation facile à imaginer est celle qui consiste à inverser périodiquement le signe de ce coefficient. En fonction de la direction de propagation  $z$ , il prend donc la forme d'une fonction créneau qui peut se développer en série de Fourier suivant :

$$d(z) = \sum_{n=0}^{+\infty} d_n e^{-inKz} \quad \text{avec} \quad d_0 = (2a-1)d_{33} \quad \text{et} \quad d_n = \frac{2d_{33}}{n\pi} \sin(n\pi a) \quad (2)$$

où  $a$  est le facteur de forme compris entre 0 et 1 et défini par le rapport entre la largeur du créneau et la période et  $d_{33}$  est un élément du tenseur  $\chi^{(2)}$ .

Il y donc autant de situations de quasi-accord de phase qu'il y a de solutions à l'équation  $\delta k(\omega) - nK = 0$ . (3)

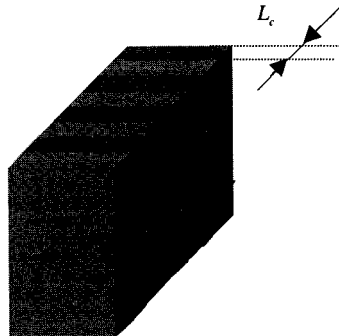
D'après l'équation (2), on voit que pour une fréquence  $\omega$  fixée, la situation la plus favorable est celle pour laquelle (3) est vérifiée au premier ordre ( $n=1$ ) avec un facteur de forme



**Figure 2.1 :** Puissance harmonique (unité arbitraire) générée en fonction de la longueur de l'échantillon (exprimée en multiple de la longueur de cohérence) et de l'ordre de quasi-accord de phase.

Les différentes courbes correspondent à :  
 (a) :  $[n=1, a=0,5]$ , (b) :  $[n=2, a=0,25]$ , (c) :  $[n=3, a=0,5]$ , (d) :  $[n=0]$ .

$a = 0,5$ . Mais, pour toutes les valeurs de  $n$  et en choisissant le facteur de forme de manière à optimiser  $d_n$ , il est possible d'obtenir un signal de second harmonique proportionnel à  $L^2$ , le coefficient de proportionnalité variant en  $\frac{1}{n^2}$  (figure 2.1). On voit également sur cette figure, que la configuration la plus favorable, le quasi-accord de phase au premier ordre, correspond à la situation où le signe du coefficient non linéaire change chaque fois que le déphasage accumulé au cours de la propagation est égal à  $\pi$ . La longueur ainsi définie est la longueur de cohérence.



**Figure 2.2 :** Cristal artificiel présentant une inversion périodique du signe du coefficient non linéaire.

D'un point de vue pratique, la possibilité d'obtenir un signal de deuxième harmonique important en satisfaisant une condition de quasi-accord de phase est extrêmement intéressante. En effet, elle permet d'utiliser des ondes présentant la même polarisation, ce qui rend utilisables les matériaux non linéaires non biréfringents comme l'AsGa et les coefficients non linéaires diagonaux qui sont souvent les plus forts. De plus, en choisissant la période de modulation du coefficient non linéaire, on peut adapter le matériau à n'importe quel ensemble de longueurs d'ondes pris dans la plage de transparence. Ceci étend considérablement la plage d'utilisation des bons matériaux non linéaires par rapport à l'accord de phase par biréfringence.

La principale difficulté est technologique, ce qui explique le délai de près de 30 années entre la publication de l'idée et les premières démonstrations expérimentales présentant des efficacités de conversion intéressantes d'un point de vue pratique. En effet, dans les matériaux non linéaires connus, et pour une interaction du type génération de deuxième harmonique dans une gamme de longueur d'onde couvrant le visible et le proche infrarouge, la longueur de cohérence est typiquement de quelques microns à quelques dizaines de microns. Il est donc très difficile, voire impossible de préparer des lames non linéaires ayant pour épaisseur cette longueur de cohérence et de les assembler après avoir périodiquement renversé leur orientation, pour constituer un matériau artificiel ayant des dimensions intéressantes pour les applications. C'est ce type d'expérience qui a été initialement tenté pour vérifier la théorie, mais il n'a jamais été possible d'assembler plus de 10 lames ayant des épaisseurs de plusieurs longueurs de cohérence de façon à les rendre manipulables. Les taux de conversion obtenus étaient donc beaucoup trop faibles pour donner lieu à des applications pratiques [10].

## 2.2 Techniques d'inversion de domaines

Il en est tout autrement aujourd'hui, depuis que l'on a montré que dans les matériaux ferroélectriques, il était possible d'introduire sur plusieurs centimètres de long, une inversion périodique du signe du coefficient non linéaire en renversant périodiquement la polarisation spontanée de ces matériaux. Plusieurs solutions ont été proposées et testées. Il s'agit principalement de diffusion ou d'échange ionique et d'application d'un champ électrique périodique. Dans tous ces cas, on utilise un masque défini par photolithographie, ce qui permet de répéter des motifs de quelques microns sur des substrats de plusieurs centimètres carrés. Deux familles de matériaux ont été plus particulièrement utilisées. Il s'agit d'une part, du KTP et des cristaux dérivés, KTA, RTA, ..., d'autre part du LiNbO<sub>3</sub> et du LiTaO<sub>3</sub>.

Historiquement, les premiers résultats ont été obtenus en optique intégrée et en utilisant des échanges ioniques ou des diffusions localisées qui permettent d'obtenir de faibles volumes de cristaux présentant une inversion périodique du signe du coefficient non linéaire. Sur KTP, la technique utilisée consiste à réaliser un guide d'onde segmenté en plongeant pendant 90 mn le cristal recouvert d'un masque dans un mélange de RbNO<sub>3</sub> (99M %) et de Ba(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> (1M%) porté à 360°C. Cela permet d'obtenir une augmentation d'indice due à un échange  $K^+ \leftrightarrow Rb^+$  et la présence de Ba permet d'inverser le signe de la polarisation et donc le coefficient non linéaire dans les zones échangées [11]. Le composant obtenu est représenté sur la figure 2.3.

Sur LiNbO<sub>3</sub>, les premiers échantillons présentant une inversion périodique du coefficient non linéaire ont été réalisés en diffusant à 1000°C, des rubans de titane sur la face Z<sup>+</sup> du cristal [12]. Ce processus s'accompagne d'un renversement de la polarisation dans le volume diffusé. Les domaines ainsi formés prennent une forme triangulaire ou trapézoïdale suivant la valeur des différents paramètres et pénètrent jusqu'à quelques microns de profondeur. La concentration nécessaire pour obtenir ce renversement est faible et ne crée pas de modulation

d'indice décelable. On peut donc ensuite utiliser l'échange protonique [13] qui ne requiert qu'une faible élévation de température (300°C) et permet de créer un guide d'onde sans effacer les domaines [14].

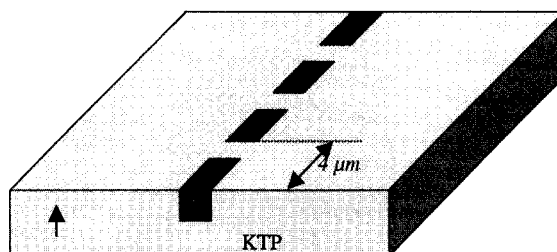


Figure 2.3 : Guide segmenté et polarisé périodiquement sur KTP adapté au doublage en fréquence des diodes laser

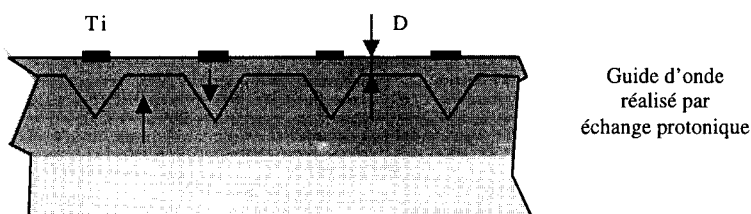


Figure 2.4 : Profil des domaines induits par diffusion de Ti dans le niobate de lithium.

À ces techniques faisant appel à la diffusion ou à l'échange ionique on tend à préférer aujourd'hui celles qui reposent sur l'application d'un champ électrique périodique [15] et qui s'adaptent, en changeant la valeur des paramètres et quelques détails, aux deux familles de matériaux. Le principe du dispositif de polarisation est représenté sur la figure 2.5. Le champ est appliqué de part et d'autre du substrat en utilisant des électrodes liquides pour éviter au maximum les problèmes liés aux effets de bord puisque les champs à appliquer sont de plusieurs kV. La périodicité est créée en définissant sur une des faces du substrat un masque diélectrique isolant qui gêne l'établissement du courant de polarisation dans les régions qu'il recouvre. Pour obtenir un renversement de la polarisation il faut appliquer au cristal un champ supérieur au champ coercitif (5 kV/mm pour KTP et 21 kV/mm pour LiNbO<sub>3</sub>). Dans les parties en contact avec l'électrode, il se crée alors des domaines en forme d'aiguille présentant une polarisation opposée à la polarisation initiale et qui traversent tout le substrat avant de s'élargir avec des parois quasi perpendiculaires à la surface. En contrôlant précisément la valeur du champ appliqué, la durée d'application du champ et divers autres paramètres comme l'état de surface, il est possible d'obtenir des substrats présentant des domaines alternativement polarisés qui reproduisent fidèlement le masque initial [16]. Cependant, le masque diélectrique ne crée une périodicité du champ que sur quelques μm de profondeur, profondeur qui est d'autant plus faible que la période est courte. Au-delà, le cristal voit un champ parfaitement homogène. De plus, au cours de la propagation, les parois des domaines peuvent être déviées par les défauts présents dans le cristal. Si l'on ajoute à cela les difficultés liées à la manipulation de champs de plusieurs dizaines de kV, on comprend parfaitement que l'épaisseur des substrats présentant une polarisation périodique soit limitée. Aujourd'hui, les

substrats de PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate) disponibles commercialement font 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur pour des périodes supérieures à 6  $\mu\text{m}$  et en laboratoire, on a atteint 1 mm. Pour le doublage des diodes lasers à 0,8  $\mu\text{m}$ , des périodes plus courtes sont nécessaires, et les substrats utilisés font en général 300  $\mu\text{m}$ .

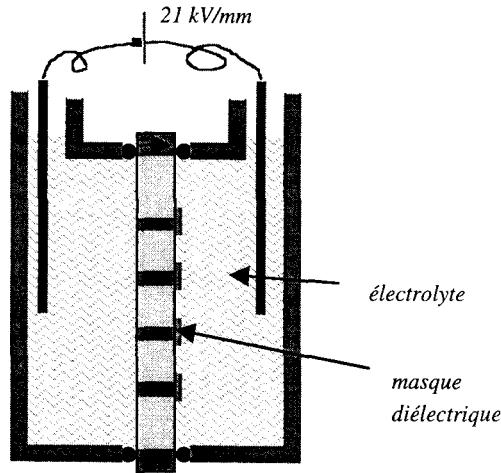


Figure 2.5 : Schéma de principe de la cellule de polarisation par champ électrique

### 2.3 État de l'art et réalisations

Initié au début des années 1990, avec la publication des premiers résultats expérimentaux sur niobate de lithium polarisé périodiquement présentant des efficacités de conversion importantes, le domaine des interactions non linéaires en configuration de quasi-accord de phase est aujourd'hui en pleine explosion. Il est donc très difficile de faire un état de l'art du domaine, et celui-ci a de fortes chances d'être périmé avant d'être imprimé. Le paragraphe suivant est donc plus une photo du domaine prise en mai 1998, puisque les réalisations choisies ont pour la plupart été présentées à CLEO'98. Dans cette sélection, une place particulière est faite aux réalisations qui soulignent les spécificités de la configuration de quasi-accord de phase. Un domaine que l'apparition des cristaux périodiquement polarisés a considérablement modifié est très certainement celui des oscillateurs paramétriques optiques (OPO). Les efficacités de conversion disponibles ont permis en particulier de réaliser de nombreux OPO continus en plaçant le cristal dans la cavité du laser de pompe [17] ou dans une cavité externe linéaire ou en anneau [18]. Le pompage par diode est également devenu possible en utilisant du PPLN [19, 20] ou du PPLT [21]. Les qualités spectrales des ondes signal et idler peuvent également être grandement améliorées, et il est possible d'utiliser ces OPO pour la spectroscopie [22]. Les matériaux polarisés périodiquement sont également utilisés avec succès pour la conversion de fréquence vers le bleu et l'ultra-violet en configuration massive ou en guides d'ondes. À côté de ces réalisations où la technique de polarisation périodique permet de réaliser des composants plus performants que les autres techniques d'accord de phase, il y a également plusieurs expériences qui mettent en évidence les possibilités nouvelles offertes par la technique de QAP [23]. En effet, il est possible par



photolithographie de définir plusieurs périodes sur le même cristal, offrant ainsi la possibilité de changer la longueur d'onde d'accord de phase en traduisant le cristal. Ces périodes différentes peuvent également être placées à la suite les unes des autres ce qui permet de réaliser plusieurs interactions non linéaires en cascade [24]. Il est également possible de réaliser un substrat sur lequel la période d'inversion évolue continuellement le long de la direction de propagation. Il est ainsi possible de doubler des sources ayant un spectre large comme les impulsions ultra-courtes [25], et même, en adaptant soigneusement la variation de la période à la dispersion du matériau et aux caractéristiques de l'impulsion incidente (spectre et décalage temporel des fréquences) il est possible de comprimer cette impulsion [26].

### 3. INTERACTIONS NON LINÉAIRES EN OPTIQUE GUIDÉE

#### 3.1 Intérêt et spécificité des guides d'ondes en optique non linéaire

En optique non linéaire, la configuration guidée présente plusieurs avantages et impose quelques conditions supplémentaires que nous allons passer en revue dans ce paragraphe.

Le premier avantage de l'optique intégrée est certainement celui du confinement de l'énergie [27] qui permet d'obtenir des efficacités importantes avec des puissances de pompe faibles ou, pour une puissance de pompe donnée, permet d'augmenter très sensiblement l'efficacité de conversion. Dans le cas de la génération de second harmonique, cette augmentation peut atteindre deux ordres de grandeurs. Un autre avantage de l'optique intégrée est de satisfaire les conditions d'accord de phase ou de quasi-accord de phase [28] entre les indices effectifs des modes et non pas entre les indices du matériau. En jouant avec le profil d'indice du guide, il est possible d'utiliser différents modes guidés [29] et même des modes de rayonnement [30] pour satisfaire les conditions de conservation. Cependant, il ne faut pas oublier que pour que l'interaction reste efficace, il faut également obtenir un bon recouvrement entre les modes en interaction et le matériau non linéaire. La forme particulière des distributions de champ des différents modes limite en fait sévèrement le nombre des combinaisons efficaces.

La figure 3.1 illustre l'amélioration du confinement obtenu en configuration guidée. Dans le matériau massif, le faisceau est focalisé au centre du cristal, puis diverge. L'optimisation consiste à adapter la section minimale  $S$  du faisceau à la longueur  $L$  du cristal pour se placer

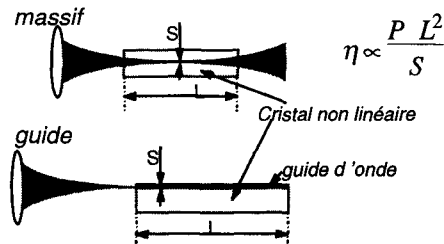


Figure 3.1 : Comparaison entre les configurations massive et guidée.

dans la configuration confocale définie par  $2L = S n / \lambda$  [31]. Dans un guide d'onde, ce couplage entre section minimale et longueur d'interaction n'existe pas. Une fois que la lumière est couplée dans le guide, elle reste confinée sur toute sa longueur qui peut être choisie en fonction du taux de conversion et des pertes à la propagation.

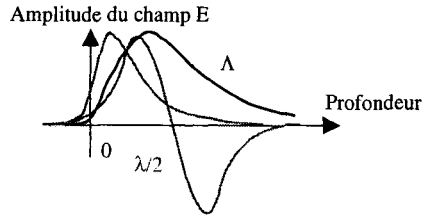


Figure 3.2 : Recouvrement entre les différents modes

La figure 3.2 illustre le problème du recouvrement dans le cas de la génération d'harmonique. Si le guide d'onde est monomode à la fréquence fondamentale, il est multimode à la fréquence harmonique. Les profils de champ correspondants sont tracés dans la figure 3.2 et l'intégrale de recouvrement  $I_R$  est donnée par :

$$I_R \propto \frac{\left( \iint_S \mathbf{d}(x,y) \cdot \mathbf{E}_\omega^2(x,y) \cdot \mathbf{E}_{2\omega}(x,y) \, dx dy \right)^2}{\left( \iint_S \mathbf{E}_\omega^2(x,y) \, dx dy \right)^2 \iint_S \mathbf{E}_{2\omega}(x,y) \, dx dy}$$

On voit donc que si l'harmonique est créé dans le mode d'ordre un, le changement de signe du champ associé fait que le recouvrement est très faible si la non-linéarité est constante

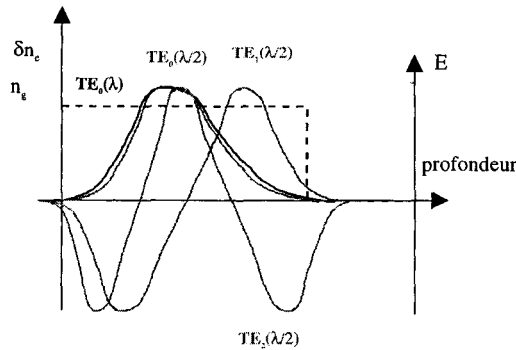
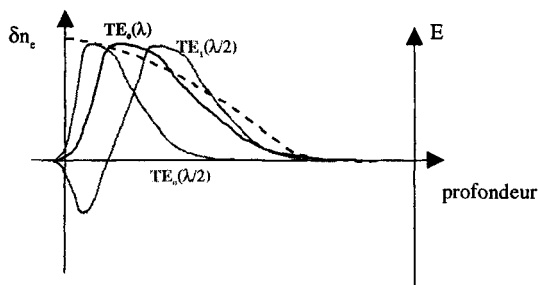


Figure 3.3 : Profil d'indice (en pointillé) et amplitudes des champs associés à la fréquence fondamentale (en noir) et à la fréquence harmonique (en gris) dans un guide à saut d'indice.

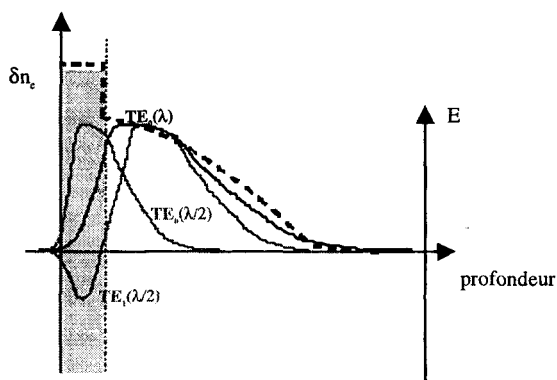
sur toute la section du guide. Le taux de conversion, qui est proportionnel à  $I_R$ , sera également très faible. Ceci est particulièrement vrai dans les guides à saut d'indice, où la forme des modes est presque indépendante de la fréquence. Le recouvrement entre les modes d'ordre zéro est donc beaucoup plus important que tous les autres (figure 3.3).

Ceci ne veut cependant pas dire que l'interaction entre les modes fondamentaux est toujours la plus efficace. En effet, la plupart des guides utilisés ont des profils à gradient d'indice, et dans ce cas, le mode d'ordre zéro à la fréquence fondamentale est très différent du mode d'ordre zéro à la fréquence harmonique (figure 3.4). Il est alors nécessaire de pouvoir disposer d'autres paramètres pour ajuster ce profil d'indice. Ceci peut être fait en déposant une couche linéaire de haut indice à la surface du guide et en ajustant son épaisseur pour que le premier lobe du mode harmonique y soit confiné (figure 3.5) permettant ainsi un bon recouvrement dans la partie non linéaire entre son second lobe et le mode fondamental à la fréquence de pompe [32].



**Figure 3.4 :** Profil d'indice (en pointillé) et amplitudes des champs associés à la fréquence fondamentale (en noir) et à la fréquence harmonique (en gris) dans un guide à gradient d'indice.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons maintenant nous concentrer sur les différentes configurations qui ont permis d'obtenir des rendements de conversion importants, en détaillant chaque fois les techniques utilisées pour réaliser le composant.



**Figure 3.5 :** Profil d'indice (en pointillé) et amplitude des champs associés à la fréquence fondamentale (en noir) et à la fréquence harmonique (en gris) dans un guide à gradient d'indice recouvert d'une couche linéaire (grisée)

### 3.2 Accord de phase parfait dans les guides d'onde

Pour déterminer rapidement les possibilités d'accord de phase d'un composant, il est utile de tracer un diagramme d'accord de phase [33] que nous définirons en nous plaçant dans le cas de la génération d'harmonique en type I. Si l'on utilise la biréfringence du matériau pour compenser la dispersion chromatique, on peut trouver la longueur d'onde d'accord de phase en traçant  $n_i(\lambda)$  et  $n_j(\lambda/2)$  en fonction de  $\lambda$ ,  $i$  et  $j$  représentant deux directions de polarisation. Le point d'accord de phase est donné par le point d'intersection entre les deux courbes (figure 3.6).

Dans le cas des guides d'onde, la situation devient plus complexe, puisque plusieurs modes peuvent exister aux différentes fréquences. Il faut alors calculer et tracer toutes les courbes  $n_{\text{eff}}^i(\lambda)$  et  $n_{\text{eff}}^j(\lambda/2)$  et répertorier tous les points d'intersection (figure 3.7).

Ceci peut être simplifié en remarquant que l'indice effectif d'un mode est toujours compris entre l'indice du substrat et l'indice maximum de la couche guidante, qui, dans la

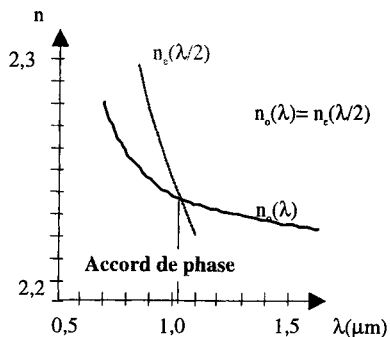


Figure 3.6 : Diagramme d'accord de phase dans un matériau biréfringent.

majeure partie des cas, est l'indice de surface. Il suffit alors de tracer  $n_{\text{sub}}(\lambda)$ ,  $n_{\text{surf}}(\lambda)$ ,  $n_{\text{sub}}(\lambda/2)$  et  $n_{\text{surf}}(\lambda/2)$ . La surface délimitée par ces quatre courbes définit la plage d'accord de phase du guide considéré (figure 3.8).

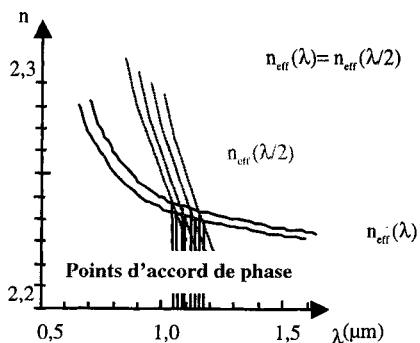


Figure 3.7 : Diagramme d'accord de phase d'un guide d'onde.

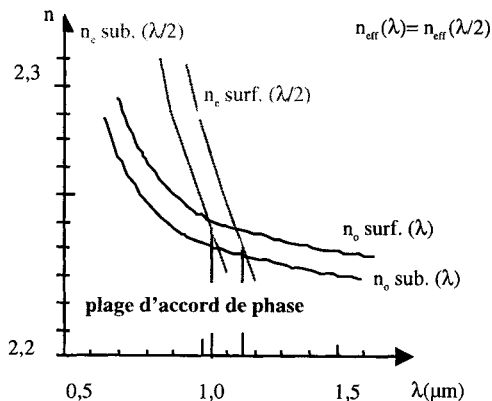


Figure 3.8 : Diagramme d'accord de phase simplifié d'un guide d'onde.

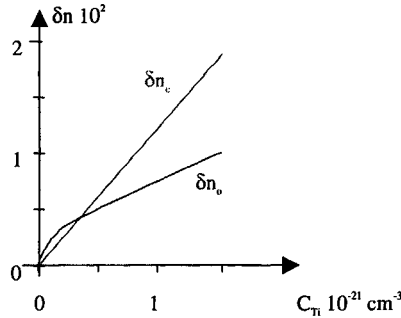


Figure 3.9 : Variation des indices ordinaire et extraordinaire en fonction de la concentration de titane.

3.2.1 Accord de phase par biréfringence

Les guides fabriqués par diffusion de Ti dans le niobate de lithium [34] ont une plage d'accord de phase située autour de 1,1 μm (figure 3.8). Elle est obtenue en utilisant la biréfringence négative, une onde fondamentale ordinaire et une onde harmonique extraordinaire couplées à l'aide du coefficient non linéaire  $d_{31}$  ( $d_{31} = 5 \text{ pm/V}$ ). La position exacte de l'accord de phase dépend de la géométrie du guide. Dans la figure 3.8, on voit que dans les guides diffusés titane où l'augmentation d'indice ne dépasse jamais 0,02, la plage d'accord de phase est très limitée autour de 1,1 μm. La dépendance en température des indices ne permet qu'un déplacement très réduit de cette plage.

Cette configuration a été utilisée par plusieurs auteurs [35] qui ont soigneusement étudié l'évolution de  $\delta n_o$  et  $\delta n_e$  en fonction de la concentration de Ti (figure 3.9) afin de pouvoir optimiser le recouvrement entre modes fondamentaux aux deux longueurs d'onde. En effet, en

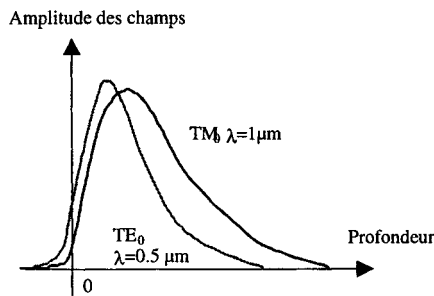
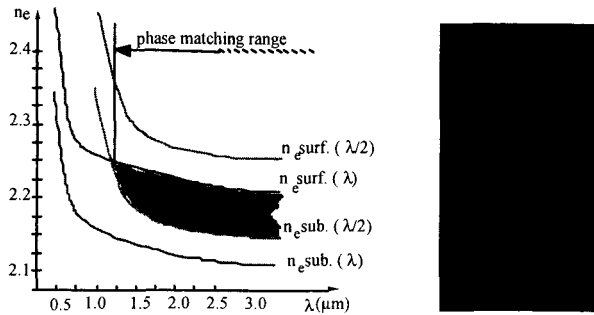


Figure 3.10 : Profil des modes dans un guide réalisé par diffusion de Ti et optimisé pour la génération d'harmonique autour de 1 μm.

utilisant le fait que la variation de l'indice ordinaire est une fonction non linéaire de la concentration de Ti et que pour les faibles concentrations  $\delta n_o$  est plus grand que  $\delta n_e$  il est possible d'accorder les formes des modes en interaction (figure 3.10).

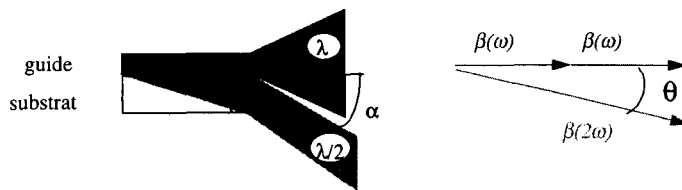
En utilisant un résonateur [36] pour augmenter encore la densité de puissance, il leur a été possible d'atteindre des efficacités de conversion atteignant les 100%/W, mais la puissance harmonique était limitée à quelques mW en raison de l'effet photoréfractif, présent malgré une température d'accord de phase de 250°C.

### 3.2.2 Accord de phase par dispersion modale



**Figure 3.11** : Plage d'accord de phase d'un guide PE présentant une forte augmentation d'indice extraordinaire et champ proche du mode harmonique dans le cas où l'accord de phase est obtenu avec le mode d'ordre 5.

Deux types d'essais ont également été faits pour utiliser le meilleur coefficient du niobate de lithium,  $d_{33} = 30 \text{ pm/V}$ , et pour éviter les limitations dues à l'effet photoréfractif en utilisant la forte augmentation d'indice ( $\delta n_e = 0,1$ ) et la bonne tenue en puissance des guides réalisés par échange protonique. Le premier type d'essais a consisté à utiliser la forte dispersion modale due au  $\delta n_e$  important, pour compenser la dispersion chromatique. La figure 3.11, montre que cela conduit à une plage d'accord de phase très étendue, mais cette configuration souffre d'une efficacité réduite par un mauvais recouvrement. En effet, la condition d'accord de phase est satisfaite entre un mode d'ordre peu élevé à la fréquence fondamentale et un mode d'ordre élevé à la fréquence harmonique. Une photo de la distribution d'énergie dans le mode harmonique est donnée sur la figure 3.11, et cela montre clairement que, dans ce cas l'intégrale de recouvrement et par conséquent l'efficacité de conversion, sont très réduites [37].



**Figure 3.12** : Configuration Cerenkov.

Le deuxième type d'essais a consisté à utiliser les modes de rayonnement dans la configuration dite "Cerenkov". Dans ce cas la polarisation à la fréquence harmonique  $2\omega$  a une vitesse de phase supérieure à celle d'une onde guidée à  $2\omega$ . Cette polarisation est donc la source d'une onde rayonnée à  $2\omega$ , qui se propage dans le substrat avec un angle  $\theta$  par rapport au guide (figure 3.12). Cet angle  $\theta$  satisfait automatiquement la condition d'accord de phase

$n_{\text{eff}}(\omega) = n(2\omega) \cos\theta$ , ce qui permet encore une fois d'avoir une plage d'accord de phase très étendue. Une conception adaptée du guide [38], ou une combinaison avec les techniques de quasi-accord de phase [39], permet de garder  $\theta$  petit ce qui maximise le recouvrement et la longueur d'interaction. Les meilleurs résultats obtenus dans cette configuration sont rapportés par K. Yamamoto [40], qui a obtenu 1,6 mW dans le bleu, à partir de 100 mW d'infrarouge couplé dans le guide. Bien que la distribution du champ harmonique soit quelque peu inusuelle, cette configuration peut s'avérer utile pour certaines applications en raison de ses propriétés d'accord de phase automatique.

### 3.3 Quasi-accord de phase dans les guides d'onde

Le quasi-accord de phase 2 est de nos jours, une des configurations les plus utilisées pour les interactions à trois ondes dans les matériaux massifs. Historiquement, elle a d'abord été utilisée en optique intégrée, configuration qui permet de n'inverser que de très petits volumes.

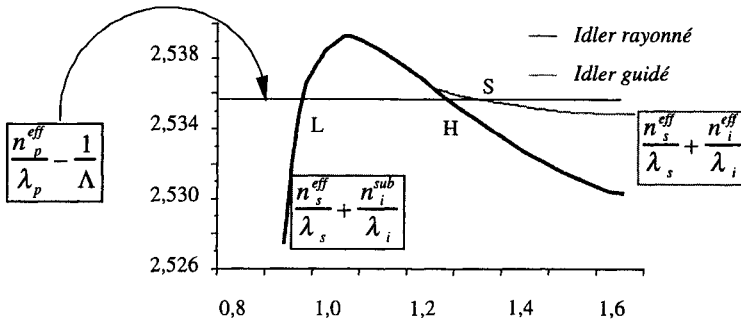
De plus, les techniques d'inversion périodique basées sur un gradient de composition et un traitement thermique peuvent également créer le guide d'onde [41]. Le principal avantage du quasi-accord de phase est qu'en ajustant la périodicité, il permet d'obtenir, à température ambiante, une interaction efficace entre n'importe quel triplet de longueur d'onde situé dans la plage de transparence du matériau et vérifiant la relation de conservation de l'énergie.

Cette configuration est particulièrement intéressante dans les matériaux ferroélectriques où la périodicité du  $\chi^{(2)}$  est obtenue en inversant périodiquement la polarisation du cristal. Depuis 1993, on a mené de nombreuses études pour parvenir à contrôler ce processus et aujourd'hui de nombreuses techniques ont été adaptées au  $\text{LiNbO}_3$ , au  $\text{LiTaO}_3$ , au KTP et au RTA [42, 43, 44, 45, 46, 47, 48]. Dans cette configuration, les guides d'onde introduisent les mêmes avantages et les mêmes exigences supplémentaires que dans le cas de l'accord de phase parfait, et les résultats obtenus en fluorescence paramétrique vont nous permettre d'illustrer leurs possibilités.

#### 3.3.1 Influence des paramètres du guide

La fluorescence paramétrique est obtenue en injectant seulement le faisceau pompe dans le guide. Si sa longueur d'onde est adaptée, elle se couple non linéairement avec les fluctuations du vide, et l'on observe deux ondes de fréquence plus basse, appelées signal et complémentaire (idler) qui vérifient les relations de conservation de l'énergie et de l'impulsion (accord de phase). Comme l'accord de phase parfait, le quasi-accord de phase peut être obtenu entre des modes guidés uniquement ou faire intervenir des modes rayonnés. La figure 3.13 présente un moyen de résoudre graphiquement les équations de conservation dans le cas où la pompe et le signal sont guidés, et où la plus grande longueur d'onde, l'idler est soit guidée soit rayonnée. Quand tous les modes sont guidés, il est possible de tracer une courbe d'accord de phase où les couples signal et idler sont reportés en fonction de la longueur d'onde de pompe.

Les simulations numériques montrent que bien que les modifications d'indice introduites par la fabrication des guides soient généralement faibles (1 à 2%), leur influence sur les courbes d'accord de phase est très importante (figure 3.14). Une analyse détaillée révèle qu'il en est de même pour tous les autres paramètres permettant de définir le profil d'indice, sa forme (figure 3.15), sa profondeur (figure 3.16) et sa largeur (figure 3.17). Cette sensibilité est tellement grande que la détermination expérimentale de la courbe d'accord de phase est un moyen extrêmement précis de déterminer le profil d'indice du guide.

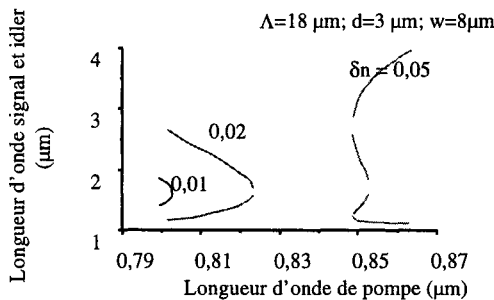


**Figure 3.13 :** Détermination géométrique de la longueur d'onde signal dans une interaction paramétrique en configuration de quasi-accord de phase. La courbe "idler rayonné" correspond au cas limite où l'angle de radiation  $\theta = 0$ .

3.3.2 Observation expérimentale de la fluorescence paramétrique

Actuellement, les générateurs paramétriques les plus efficaces sont constitués par des guides d'ondes réalisés dans du niobate de lithium polarisé périodiquement. La polarisation est obtenue soit par diffusion de titane soit par application d'un champ électrique, et les guides d'ondes fabriqués ensuite en utilisant la technique d'échange protonique. En injectant quelques mW de l'onde pompe au voisinage de 800 nm dans ces guides, on obtient en sortie deux ondes signal et idler avec une efficacité de conversion qui varie entre  $10^{-10}$  et  $10^{-6}$  suivant la qualité du guide d'onde. Bien que faible, cette fluorescence peut être très précisément analysée.

Pour cela on image le champ proche en sortie du guide sur la fente d'entrée d'un monochromateur, après avoir filtré la pompe. En sortie du monochromateur, on dispose d'un détecteur Germanium refroidi à l'azote qui permet de mesurer le signal jusqu'à 1,7  $\mu\text{m}$ . La figure 3.18 donne un exemple de spectre recueilli à la sortie d'un guide de 8mm de long réalisé sur un substrat de PPLN présentant une période d'inversion de 18  $\mu\text{m}$ .



**Figure 3.14 :** Influence de l'augmentation d'indice sur la courbe d'accord de phase.



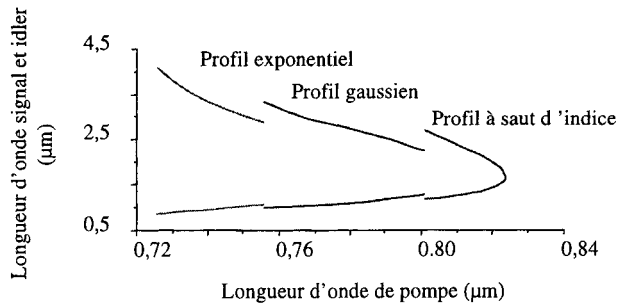


Figure 3.15 : Influence de la forme du profil d'indice sur la courbe d'accord de phase.

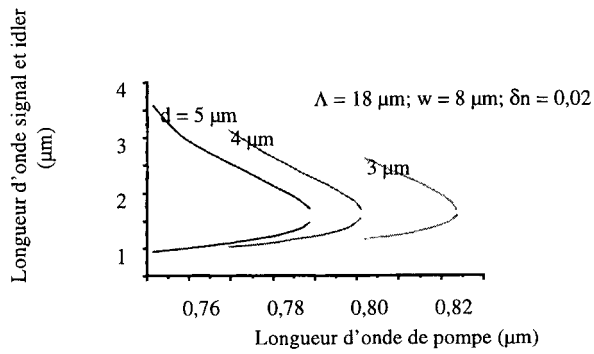


Figure 3.16 : Influence de la profondeur du guide sur la courbe d'accord de phase.

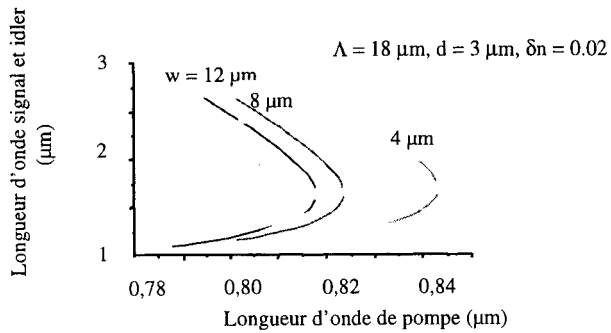
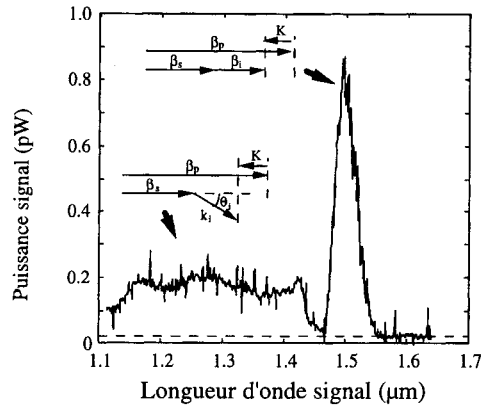


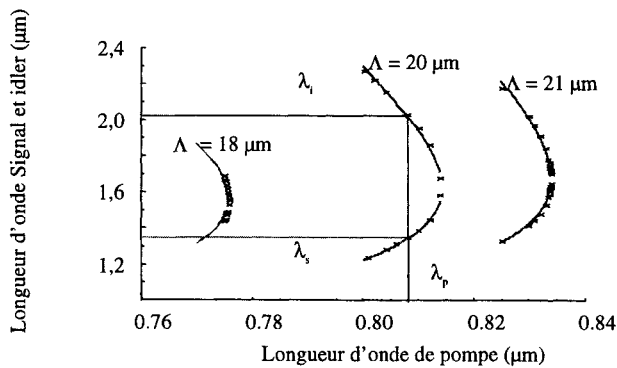
Figure 3.17 : Influence de la largeur du guide sur la courbe d'accord de phase.

Ce spectre présente un pic bien défini qui correspond au signal obtenu par interaction entre modes guidés (le pic correspondant à l'idler ne peut pas être vu car il est au-delà de la plage de détection du détecteur Ge). Il présente également à des fréquences plus élevées, un large continuum qui correspond au signal guidé associé à un idler rayonné. Du côté des courtes longueurs d'ondes, ce continuum est limité par le filtre de réjection de la pompe [49].

En faisant varier la longueur d'onde de pompe et en relevant la longueur d'onde correspondant au pic de fluorescence, on peut tracer la courbe d'accord de phase expérimentale correspondant à l'échantillon étudié. La figure 3.19 montre le déplacement de cette courbe d'accord de phase en fonction de la période d'inversion des domaines, et elle permet de constater que pour une variation de 15 nm de la longueur d'onde de pompe, on couvre une plage de plus de  $1\mu\text{m}$  avec le signal et l'idler. Comme on a pu le voir numériquement et expérimentalement, le profil d'indice peut modifier très sensiblement les courbes d'accord de phase. Ceci a deux conséquences très importantes d'un point de vue pratique. Tout d'abord en ajustant les courbes d'accord de phase numériques sur les courbes expérimentales, il est possible de déterminer avec une grande précision les paramètres du



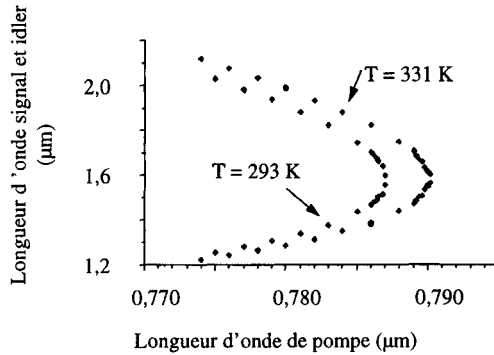
**Figure 3.18 :** Spectre de fluorescence montrant le pic signal correspondant à l'interaction entre modes guidés et le continuum correspondant à l'association avec un idler rayonné.



**Figure 3.19 :** Influence de la période de polarisation sur les courbes d'accord de phase. Les croix correspondent à des points expérimentaux et les lignes à des calculs numériques utilisant les mêmes paramètres pour le guide. Seule  $\Lambda$  est changée.

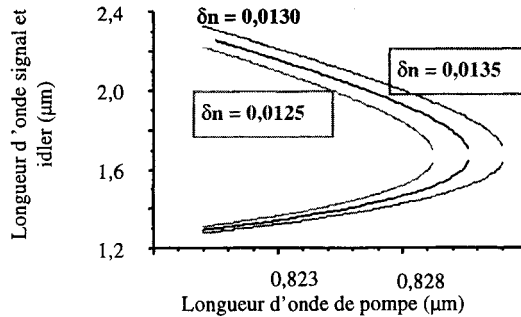
guide ( $\delta n_e \pm 0,0001$ , largeur et profondeur  $\pm 0,1 \mu\text{m}$ ). D'autre part l'extrême sensibilité aux modifications d'indice montre qu'en optique intégrée, il est possible d'envisager plusieurs processus d'ajustement fin de la longueur d'onde de sortie.

**Accordabilité.** La première possibilité est d'utiliser la température pour ajuster la longueur d'onde de sortie, et la figure 3.20 indique les variations possibles en utilisant une



**Figure 3.20 :** Influence de la température sur la courbe d'accord de phase d'un guide échange protonique recuit, réalisé sur un cristal de niobate de lithium polarisé périodiquement par diffusion de Ti.

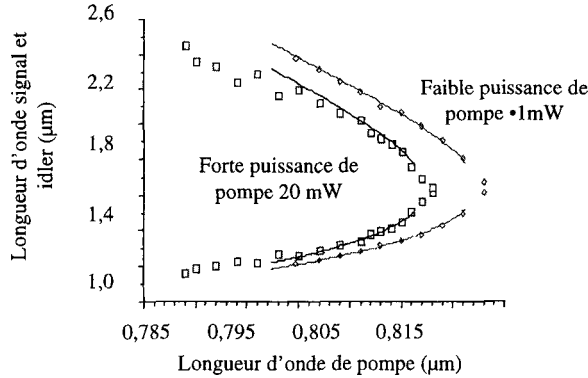
augmentation de température de  $40^\circ\text{C}$ . Les processus faisant intervenir la température sont cependant toujours lents, et le principal intérêt de chauffer les guides est de réduire très sensiblement les problèmes d'effet photoréfractif. La configuration la plus intéressante serait sans doute de profiter de la structure planaire pour utiliser l'effet électro-optique pour ajuster les longueurs d'onde signal et idler ou pour les stabiliser [50]. La figure 3.21 illustre cette possibilité, en montrant qu'une variation d'indice de  $\pm 0,0005$  permet de déplacer le signal de  $\pm 50 \text{ nm}$  et l'idler de  $\pm 100 \text{ nm}$ .



**Figure 3.21 :** Influence de l'effet électro-optique sur les courbes d'accord de phase.

**Effet photoréfractif.** À température ambiante, dans un guide recuit de  $7 \mu\text{m}$  de large ( $\Lambda=20 \mu\text{m}$ ) on a pu recueillir avec une pompe faible ( $<1 \text{ mW}$ ) une courbe d'accord de phase qui correspond à celle que l'on obtient numériquement en utilisant des profils d'indice exponentiels en profondeur et en largeur,  $\delta n = 0,0143$ ,  $d = 2,1 \mu\text{m}$  et  $w = 3,5 \mu\text{m}$ . En augmentant la puissance de pompe jusqu'à  $20 \text{ mW}$ , on déplace la courbe d'accord de phase de  $5 \text{ nm}$  vers les courtes longueurs d'onde (figure 3.22).

Le même déplacement peut être obtenu numériquement en réduisant l'augmentation d'indice de  $1,8 \times 10^{-3}$ , ce qui peut être obtenu par effet photoréfractif [51]. La plupart du temps, l'effet photoréfractif est considéré comme une perturbation puisqu'il introduit des instabilités

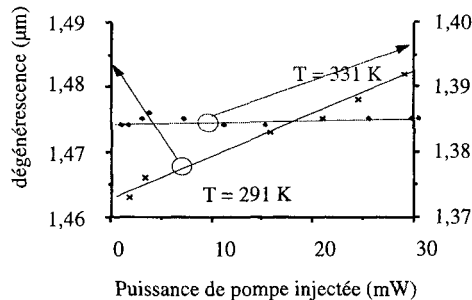


**Figure 3.22 :** Influence de l'effet photoréfractif sur la courbe d'accord de phase d'un guide échange protonique recuit réalisé sur un substrat de niobate de lithium polarisé périodiquement par diffusion de Ti.

dans le fonctionnement des composants. Par exemple, pour une longueur d'onde de pompe fixée, on a pu relever un changement important de la longueur d'onde signal (20 nm) en augmentant la puissance couplée dans le guide de 1 à 30 mW (figure 3.23).

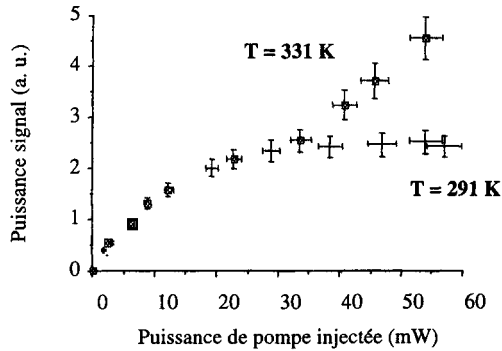
Ceci est incompatible avec la réalisation de composant du type Oscillateur Paramétrique Optique Intégré (OPOI). Cependant cet effet peut être dramatiquement réduit en chauffant le substrat de quelques dizaines de degrés. Un exemple de ce type de fonctionnement est donné sur la figure 3.23 où l'on voit que quand le substrat est porté à 60°C, la longueur d'onde signal ne dépend plus de la puissance de pompe couplée dans le guide.

L'efficacité de conversion peut également être perturbée par l'effet photoréfractif. En effet, si les indices effectifs dépendent de la puissance couplée, il en est de même des



**Figure 3.23 :** Suppression de l'effet photoréfractif en chauffant le substrat d'un guide échange protonique recuit réalisé sur un substrat de niobate de lithium polarisé périodiquement par diffusion de Ti.

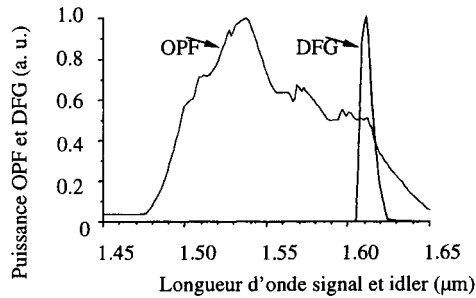
distributions des champs et donc de l'intégrale de recouvrement. Ceci peut être observé en traçant la puissance de signal en fonction de la puissance de pompe couplée, et l'on a pu observer qu'à température ambiante et au-delà de quelques dizaines de mW injectés, la puissance signal sature contrairement à la théorie qui prévoit une dépendance linéaire. Cette dépendance peut cependant être observée quand le substrat est porté à 60°C (figure 3.24).



**Figure 3.24 :** Influence de l'effet photoréfractif et de la température sur la puissance de sortie d'un guide échange protonique recuit sur un substrat de niobate de lithium polarisé périodiquement par diffusion de Ti.

### 3.3.3 Génération de différence de fréquence

Les mesures effectuées en fluorescence paramétrique permettent de déterminer la longueur d'onde de pompe qu'il faut choisir pour obtenir dans un guide donné et à partir d'un signal fixé, une onde idler créée par différence de fréquence (DFG). On peut alors mesurer les puissances signal et idler en fonction de la puissance de pompe. Pour mesurer, à l'aide d'une détection synchrone, le signal amplifié il faut moduler le signal injecté et la pompe, mais pour



**Figure 3.25 :** Signal obtenu par différence de fréquence (DFG) comparé au spectre de fluorescence paramétrique (OPF) obtenu dans le même guide

mesurer l'idler créé il vaut mieux ne moduler que la pompe pour éviter les perturbations dues au signal car les deux longueurs d'onde sont proches (60 nm) mais la puissance idler est trois à quatre ordres de grandeur inférieure à celle du signal. La figure 3.25 montre le pic idler obtenu par DFG, superposé au signal de fluorescence paramétrique obtenu dans le même guide. En dépit de ces possibilités très attrayantes, et du nombre de réalisations, il reste encore un certain travail à faire sur les guides d'ondes réalisés dans les matériaux polarisés périodiquement, puisque tous les composants réalisés montrent des efficacités de conversion qui restent inférieures aux prédictions théoriques. Pour comprendre cette difficulté il faut entrer dans le détail des processus de fabrication, et comme la majorité des composants réalisés à ce jour sont basés sur l'échange protonique dans le PPLN ou PPLT, nous nous concentrerons sur ces deux matériaux.

#### 4. FABRICATION DES GUIDES DANS LE NIOBATE ET LE TANTALATE DE LITHIUM POLARISÉ PÉRIODIQUEMENT.

En optique non linéaire, ces deux cristaux occupent une place toute particulière et sont considérés comme une référence par de nombreux auteurs. En effet, la plupart des composants qui ont été réalisés reposent sur l'un des deux. Pour apprécier l'état de l'art en optique intégrée non linéaire, il est donc important de connaître les avantages et les inconvénients des différentes techniques disponibles pour réaliser des guides d'ondes dans ces cristaux.

Sur niobate de lithium, la plus fréquemment utilisée est la diffusion de Ti qui permet d'augmenter l'indice ordinaire et l'indice extraordinaire. Cette technique nécessite cependant de chauffer le cristal au voisinage (pour  $\text{LiNbO}_3$ ) et au-dessus (pour  $\text{LiTaO}_3$ ) de sa température de Curie, ce qui la rend difficilement compatible avec la polarisation périodique. C'est pour cette raison que la plupart des tentatives visant à obtenir des guides dans PPLN ou PPLT ont fait appel à l'échange protonique pour créer les guides d'onde dans des substrats préalablement polarisés périodiquement.

Evidemment, en utilisant la technique de polarisation par champ électrique on pourrait procéder dans l'autre sens, en tentant de polariser le cristal après avoir créé les guides d'onde. L'influence des différents types d'échange protonique sur la réponse à la polarisation du  $\text{LiNbO}_3$  a été récemment mentionnée [52, 53], mais étant donné la complexité de l'échange protonique et le nombre de modifications que cet échange [54] peut introduire dans le cristal, cette étude n'en est qu'au tout début.

##### 4.1 Diagramme de phase des couches échangées

En utilisant un large éventail de paramètres de fabrication et plusieurs orientations cristallines, nous avons pu identifier 5 phases cristallines pour le composé  $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{TaO}_3$  et 7 pour le composé  $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_3$ . Les échanges étaient réalisés sur des substrats de qualité optique dont

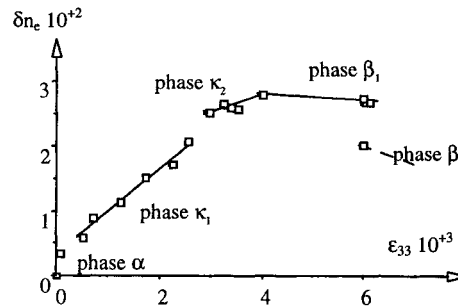


Figure 4.1 : Diagramme de phase d'une couche de  $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{TaO}_3$  à la surface d'un cristal orienté  $Z \perp$

la surface était perpendiculaire soit à l'axe X ( $X \perp$ ) soit à l'axe Z ( $Z \perp$ ), en utilisant comme source de protons des bains de différentes acidités. Certains échantillons ont également été recuits entre  $320^\circ$  et  $400^\circ \text{C}$  pour redistribuer les protons.

Les guides plans ainsi obtenus ont été caractérisés par la technique du coupleur à prisme qui permet de mesurer les indices effectifs des modes à partir desquels les profils d'indice sont reconstitués en utilisant la technique IWKB [55]. Nous avons ensuite reconstitué la structure cristalline à la surface de ces mêmes échantillons en utilisant la technique des rayons X rasants pour mesurer les distances entre différents plans cristallins [56].

Les diagrammes de phase, présentés sur les figure 4.1 et 4.2, sont le résultat de la compilation des résultats obtenus. Dans ces diagrammes, les transitions de phase sont

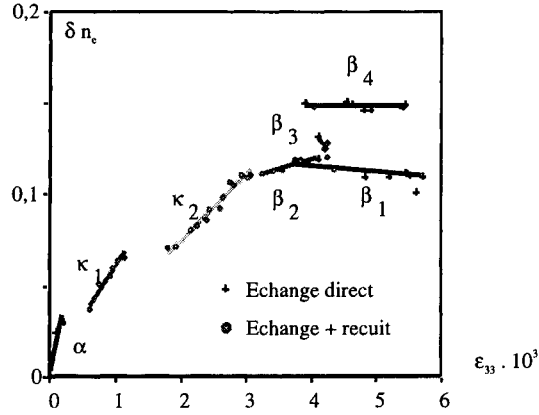


Figure 4.2 : Diagramme de phase d'une couche de  $H_xLi_{1-x}NbO_3$  à la surface d'un cristal orienté  $Z\perp$ .

caractérisées par des discontinuités qui affectent les variations d'indice ( $\delta n_e$ ). Cependant, certaines transitions comme la transition  $\beta_1$ - $\beta_2$  sur les substrats de  $LiNbO_3$   $Z\perp$  ne peuvent être mises en évidence qu'en étudiant les déplacements dans les plans perpendiculaires à la surface et en traçant par exemple  $\epsilon_{23}$ .

Ces diagrammes de phase montrent que si dans chaque phase la variation d'indice varie

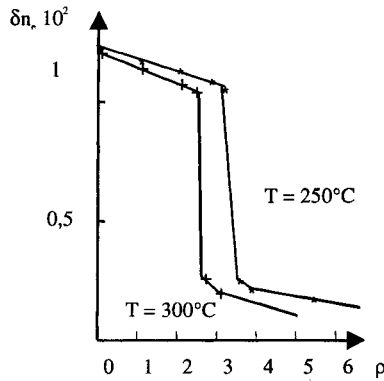


Figure 4.3 : Influence de la température du bain et de sa teneur  $\rho$  en benzoate de lithium sur la variation d'indice maximale induite par l'échange protonique.

linéairement avec la déformation qui est supposée proportionnelle à la concentration de protons, le coefficient de proportionnalité varie de manière très importante d'une phase à l'autre. De plus, ils nous ont permis d'expliquer les propriétés optiques des guides produits en utilisant différents types d'échanges protoniques [57,37].

#### 4.1.1 Échange direct

Les phases  $\alpha$  et  $\beta$  sont obtenues par échange direct en utilisant des bains d'acidités différentes. Cette acidité peut être choisie en utilisant un bain d'acide benzoïque contenant un pourcentage massique  $\rho$  de benzoate de lithium. Les phases  $\beta$  sont obtenues avec l'acide pur ou contenant peu de sel de lithium. En augmentant cette concentration au-delà d'un seuil  $\rho_c$ , qui dépend de la température du bain, on passe brutalement à la phase  $\alpha$  (figure 4. 3).

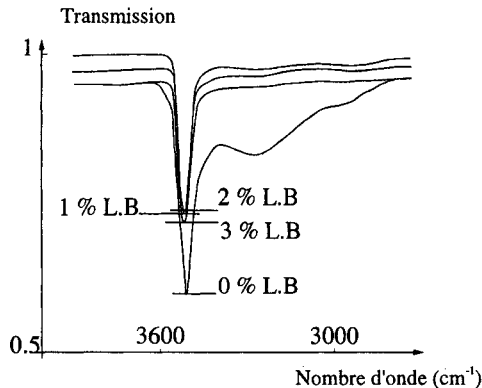
#### 4.1.2 Recuit

Les effets des recuits sur les guides protons peuvent être assez complexes, puisqu'ils peuvent provoquer aussi bien une diminution qu'une augmentation d'indice. Ce comportement compliqué peut cependant être interprété en regardant les diagrammes de phase et en admettant qu'un recuit provoque toujours une réduction de la concentration en proton et donc une diminution de la contrainte  $\epsilon_3$ . Cependant, durant le recuit, le composé  $H_xLi_{1-x}NbO_3$  ou  $H_xLi_{1-x}TaO_3$  peut soit évoluer au sein d'une même phase, soit connaître plusieurs transitions de phases. L'évolution du profil d'indice peut donc être assez compliquée mais parfaitement prédite si l'on connaît exactement la phase de la couche de départ. Par exemple, si l'échange initial a permis d'obtenir une couche de  $H_xLi_{1-x}TaO_3$  en phase  $\beta_2$ , l'augmentation d'indice  $\delta n_e$  et la profondeur du guide vont augmenter ce qui correspond à une évolution en phase  $\beta_2$  suivie d'une transition en phase  $\beta_1$  ou  $\kappa_2$  (figure 4. 1). En continuant le recuit on obtiendra alors une augmentation de profondeur accompagnée d'une réduction du  $\delta n_e$ , ce qui correspond à l'évolution au travers des phases  $\kappa_2$ ,  $\kappa_1$  et  $\alpha$ .

Le recuit est la seule façon d'obtenir des couches de type  $\kappa$ , mais elles ne sont pas très intéressantes puisque qu'elles présentent des pertes à la propagation importantes qui peuvent être dues soit à une mauvaise qualité cristalline soit à une interface perturbée.

## 4.2 Absorption infrarouge

Une autre caractéristique importante des couches échangées peut être étudiée par absorption IR. En effet, après l'échange, les couches obtenues sur les substrats XL, présentent une bande d'absorption importante au voisinage de  $3 \mu m$ , associée aux vibrations de la liaison OH [58].



**Figure 4.4 :** Spectres d'absorption IR des liaisons OH présentes dans des guides réalisés à 250°C avec des bains plus ou moins acides

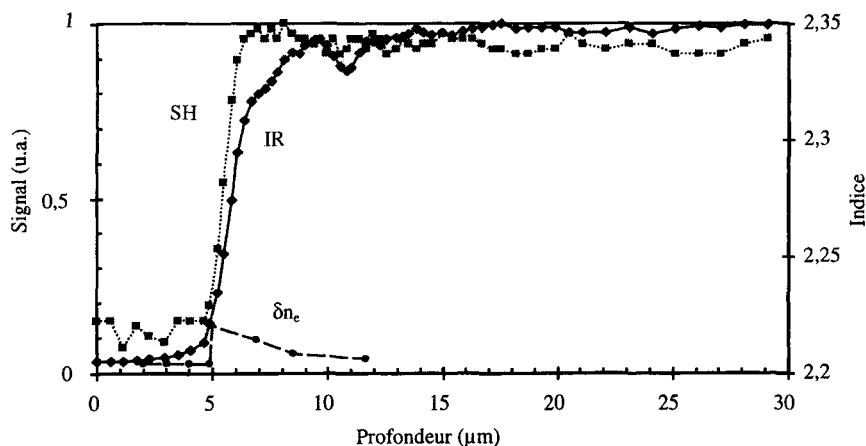


Suivant les paramètres de fabrication, le spectre présente un pic bien défini centré à  $3510\text{ cm}^{-1}$  accompagné ou non d'une large bande autour de  $3280\text{ cm}^{-1}$  (figure 4.4) qui tend à disparaître lorsqu'on réduit l'acidité du bain ou au cours des recuits. La corrélation précise entre les spectres d'absorption et les diagrammes de phase reste à faire. Cependant nous avons pu observer [59], que dans le cas des guides élaborés en phase  $\alpha$ , l'absorption est faible (cette phase correspond à une faible concentration en protons) et centrée à une fréquence légèrement différente ( $3490\text{ cm}^{-1}$ ). Bien que très qualitatives, ces observations sont primordiales car elle révèlent l'existence de plusieurs phonons susceptibles de modifier les propriétés du cristal ou des dopants que l'on peut y introduire.

### 4.3 Propriétés non linéaires des guides réalisés par échange protonique sur niobate de lithium.

Les études des effets de l'échange protonique sur les propriétés non linéaires du cristal ont conduit à une certaine controverse. En effet, tous les auteurs s'accordent à trouver que l'échange protonique peut réduire voire détruire le coefficient non linéaire, mais une partie d'entre eux prétend qu'il est possible de restaurer les propriétés du cristal par un recuit [60, 61], l'autre partie observant des dégradations permanentes [62]. Pour clarifier cette situation, nous avons étudié [63] l'influence de l'échange protonique sur le  $\chi^{(2)}$  en mesurant le signal de deuxième harmonique réfléchi par la face d'entrée polie d'un guide [64]. Cette étude nous a permis de montrer qu'il est possible de réaliser des guides par échange protonique direct qui ne présentent aucune réduction du coefficient non linéaire. De plus, ces résultats préliminaires combinés avec ceux qui ont été publiés précédemment tendent à indiquer que la possibilité de restaurer les propriétés du cristal par un recuit, dépend des paramètres utilisés pour réaliser le guide initial.

Pour le guide PE<sub>III</sub> dont le profil d'indice est indiqué sur la figure 4. 5, nous avons utilisé

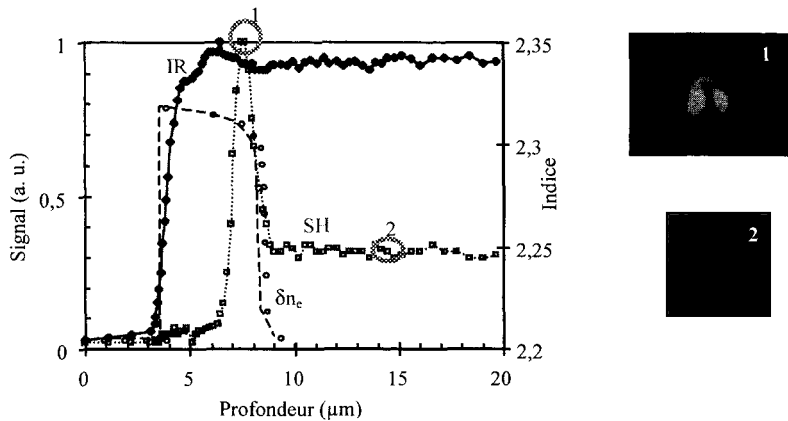


**Figure 4.5 :** Profil d'indice et signaux (fondamental et deuxième harmonique) réfléchis obtenus sur un guide PE<sub>III</sub> (3%B.L., 300°C, 70h°)

un bain faiblement acide (3% de benzoate de lithium) pour rester en phase  $\alpha$  et un temps d'échange de 70 h pour obtenir la profondeur d'échange nécessaire. L'enregistrement du signal non linéaire permet de voir qu'il n'y a aucune différence d'intensité ou de qualité de

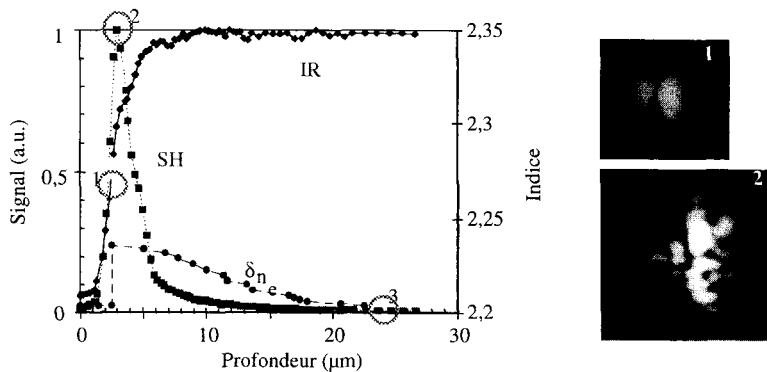
faisceau entre la zone échangée et le substrat. Ce type de processus ne perturbe donc pas les propriétés non linéaires du cristal.

Pour un guide PE<sub>1</sub> préparé en utilisant un bain contenant 1% de benzoate de lithium, (phase  $\beta_1$ ), le résultat est complètement différent. En effet, en enregistrant le signal de deuxième harmonique obtenu en déplaçant le point de focalisation du fondamental en partant du substrat, on constate que celui-ci disparaît quasiment quand on atteint les couches échangées puisqu'il est inférieur à 5% du signal mesuré dans le substrat (figure 4.6), ce qui le signe d'un coefficient non linéaire réduit à 20% de sa valeur dans le massif. À l'interface entre le substrat et la zone échangée, le signal harmonique augmente fortement alors que la qualité du faisceau réfléchi se dégrade sévèrement. Ce fait est encore plus important sur les guides recuits.



**Figure 4.6 :** Profil d'indice et signaux (fondamental et deuxième harmonique) réfléchis obtenus sur un guide PE<sub>1</sub> (1%B.L., 300°, 5 h). Les photos sur la droite sont celles du faisceau réfléchi prises aux différentes positions repérées par des chiffres.

Sur un des échantillons testés qui a été recuit en plusieurs étapes de traitement à 330°C et 350°C, le signal à l'interface est cent fois plus grand que celui qui provient du substrat (figure 4.7). Dans ce cas aussi, l'augmentation du signal harmonique est accompagnée d'une

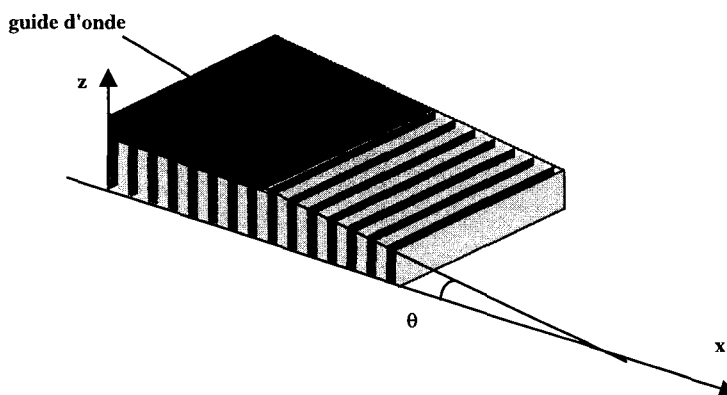


**Figure 4.7 :** Profil d'indice et signaux (fondamental et deuxième harmonique) réfléchis obtenus sur un guide PE<sub>1</sub> (1% B.L., 300°C, 5 h), recuit en plusieurs paliers de une ou deux heures à 330°C et 350°C. Les photos sur la droite sont celles du faisceau réfléchi prises aux différentes positions repérées par des chiffres. La photo correspondant au spot en 3 n'est pas représentée, mais elle est identique à la photo n°2 de la figure 4.6.

forte dégradation de la qualité du spot. L'observation au microscope de la face des échantillons indique qu'ils sont de qualité équivalente, et nous pensons donc que la différence des spots réfléchis s'explique par la qualité cristalline de la couche échangée ou par celle de l'interface entre le guide et le substrat. En dépit de ces difficultés d'interprétation, ces résultats indiquent cependant que le coefficient non linéaire est au moins restauré dans la partie initialement échangée. Nous pensons que cela est dû au fait que le guide initial est réalisé en phase  $\beta_1$ , et non pas en phase  $\beta_2$ , qui est celle que l'on obtient en utilisant les paramètres d'échange choisis par les autres auteurs [3,4,5] (acide benzoïque pur à 200°C). Des études plus approfondies sont en cours pour tenter d'éclaircir ces points et d'éviter la dégradation du faisceau réfléchi en utilisant d'autres traitements thermiques pour le recuit.

#### 4.4 Structure des domaines dans les guides réalisés par échange protonique sur niobate de lithium

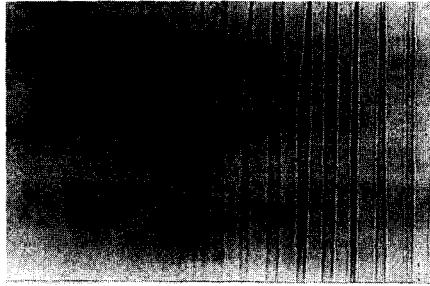
Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'influence de l'échange protonique sur l'organisation périodique des domaines dans le PPLN et montrer que le processus de type  $PE_{III}$  [65] qui permet de respecter le coefficient non linéaire permet également de respecter l'organisation



**Figure 4.8** : Schéma des échantillons de PPLN échangés et polis avec un faible angle par rapport à la surface initiale

périodique. Pour cette étude, nous avons préparé des guides  $PE_I$  et  $PE_{III}$  identiques à ceux qui ont été utilisés pour les mesures du coefficient non linéaire. Le guide recuit avait été échangé pendant 25 mn dans un bain à 300°C contenant 1% de benzoate de lithium et recuit pendant 6 h à 350°C pour atteindre la phase  $\alpha$ . Les surfaces de ces échantillons ont ensuite été polies en inclinant le plan de polissage d'environ 0,3° par rapport à la surface initiale (figure 4.8). Ceci permet en observant l'échantillon par dessus, d'observer à la fois les régions ayant subi l'échange et les régions restées vierges. Une attaque chimique à l'aide d'un mélange  $HF/HNO_3$  qui attaque beaucoup moins vite les zones orientées  $Z^+$  que les zones orientées  $Z^-$  permet ensuite de révéler l'orientation des domaines [66]. Les figures 4.9 à 4.11 sont les photos après attaque des trois échantillons étudiés.

Pour le guide  $PE_I$  (figure 4.9), toute la partie de l'échantillon qui correspond à la zone échangée ne présente plus de structure périodique, ce qui montre que le processus d'échange a effacé cette organisation.



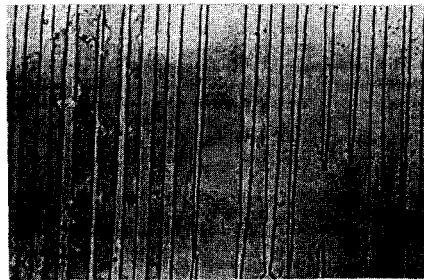
**Figure 4.9.** Vue de dessus, après polissage en biais et attaque chimique d'un échantillon de PPLN ayant subi un échange protonique de type  $PE_I$ . La partie échangée ne présente plus de structure périodique.

Pour le guide recuit (figure 4.10), la photo est similaire à la précédente, ce qui montre que le processus de recuit standard que nous avons utilisé pour cet échantillon ne permet pas au cristal de retrouver la structure périodique présente dans le substrat. Cependant cette expérience ne permet pas de dire si les domaines ont été effacés sur toute la profondeur du guide ou simplement sur une partie de celle-ci.



**Figure 4.10.** Vue de dessus, après polissage en biais et attaque chimique d'un échantillon de PPLN ayant subi un échange protonique de type  $PE_I$ , suivi d'un recuit. La partie échangée ne présente plus de structure périodique.

Enfin, dans le cas du guide  $PE_{III}$  (figure 4.11), on voit que les domaines existent sur toute la surface de l'échantillon, échangé ou non. Ce processus de fabrication qui n'entraîne aucun changement de phase cristalline permet donc de réaliser des guides sans effacer la structure périodique du PPLN.



**Figure 4.11.** Vue de dessus, après polissage en biais et attaque chimique d'un échantillon de PPLN ayant subi un échange protonique de type  $PE_{III}$ . La partie échangée présente une structure périodique intacte.

#### 4.5 Efficacité de conversion

Ces résultats permettent de comprendre pourquoi les générateurs et les oscillateurs paramétriques réalisés jusqu'à présent en configuration optique intégrée présentent des efficacités inférieures à celles qui sont prédites théoriquement, alors que les versions "optique massive" atteignent fréquemment les performances prédites. En effet, depuis 1993, on est passé des substrats polarisés par diffusion de titane aux substrats polarisés par champ électrique ce qui a permis d'améliorer le recouvrement et de gagner deux ordres de grandeur sur l'efficacité de conversion dans les expériences de fluorescence paramétrique [67]. Cependant, le seuil d'oscillation le plus bas obtenu pour un OPOI (Oscillateur Paramétrique Optique Intégré) est de l'ordre de 1,5 W alors qu'il ne devrait pas dépasser les 10 mW pour un composant optimisé. De même les générateurs de fréquence basés sur le principe de la différence de fréquence présentent des rendements de  $375 \% W^{-1}$ , alors que la théorie prévoit  $800 \% W^{-1}$  pour un guide de cette longueur.

Tous ces composants ont en effet été réalisés en utilisant la technique d'échange plus recuit pour créer les guides d'onde, ce qui perturbe la structure des domaines. Ce degré de perturbation dépend fortement des paramètres utilisés pour fabriquer le guide, mais d'une façon qu'il est difficile de prévoir *a priori*. Notre étude de l'influence des différents types d'échange protonique sur le coefficient non linéaire et sur l'organisation des domaines, permet de penser qu'il y a un moyen de réaliser un OPOI présentant les performances prédites théoriquement. Il ne reste plus qu'à résoudre le problème technologique posé par la mise au point d'un processus de masquage compatible avec un échange de type  $PE_{III}$ . Il y a cependant encore beaucoup de travail à faire pour comprendre complètement l'influence de l'échange et des recuits sur la forme des domaines.

## 5. CONCLUSION

La disponibilité de cristaux non linéaires polarisés périodiquement a profondément modifié le domaine de l'optique non linéaire. Le nombre de publications relatant la réalisation de composants faisant appel à cette technique est en pleine explosion. Dans ce chapitre, nous avons mentionné un certain nombre de ces réalisations qui devraient permettre à l'optique non linéaire de sortir du domaine des laboratoires pour trouver des applications dans le domaine des télécommunications, ou des capteurs basés sur des analyses spectroscopiques.

À côté de l'amélioration des performances des composants qui ont été réalisés dans les laboratoires et de leur éventuelle industrialisation, la communauté scientifique doit encore faire face à deux défis importants :

- la réalisation de composants non linéaires en optique intégrée pour bénéficier du confinement de l'énergie et réaliser des composants non linéaires fonctionnant avec très peu de puissance
- la mise au point de nouveaux matériaux non linéaires plus performants ou couvrant d'autres parties du spectre.

## Références

- [1] Webjörn J., Pruneri V., Russel P, Barr J.R.M. et Hanna D.C., "Blue light generation in bulk lithium niobate electrically poled via liquid electrode", *Electron. Lett.* **30** (1994) 894
- [2] Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J. et Pershan P.S., "Interactions between light waves in nonlinear dielectric", *Phys. Rev.*, **127** (1962) 1918-1939

- [3] Lim E.J., Fejer M.M. et Byer R.L., "Second harmonic generation of green light in periodically poled lithium niobate waveguide", *Electron. Lett.*, **25** (1989) 174
- [4] Webjörn J., Laurell F. et Arvidsson G., "Blue light generated by frequency doubling of laser diode light in a lithium niobate waveguide", *IEEE Photonics Tech. Lett.*, **1** (1989) 316-318
- [5] Myers L.E., Eckardt R.C., Fejer M.M, Byer R.L. et Pierce J.W., "CW-diode pumped optical parametric oscillator in bulk periodically poled LiNbO<sub>3</sub>", *Electronics Letters*, **31** N°21 (1995) 1869-1870
- [6] Bosenberg W.R., Dobshoff A., Alexander J.I., Myers L. E. et Byer R.L., "Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO<sub>3</sub>" *Optics Letters*, **21** (10) (1996) 713-715
- [7] Jackel J.L., Rice R.E. et Veslka J.J., "Proton exchange for high index waveguides in LiNbO<sub>3</sub>", *Appl. Phys. Lett.*, **41** (1982) 607
- [8] De Micheli M., Botineau J., Neveu S., Sibillot P., Ostrowsky D.B. et Papuchon M. "Independent control of index and profiles in proton exchanged lithium niobate guides" *Opt. Lett.*, **8** (1983) 114-115
- [9] Bierlein J.D., Laubacher D.B., Brown J.B., van der Poel C.J., "Balanced phase matching in segmented KTiOPO<sub>4</sub> waveguides." *Appl. Phys. Lett.* **56** (18) (1990) 1725-1727,
- [10] Okada M., Takizawa K., Ieiri S., " Second harmonic generation by periodic laminar structure of nonlinear optical crystal", *Opt. Comm.* **18**(3) (1976) 331-334,
- [11] Eger D., Oron M., Katz M. , Zussman A, "Highly efficient blue light generation in KTiOPO<sub>4</sub> waveguides", *Appl. Phys. Lett.* **64**(24) (1994) 3208-3209
- [12] Webjorn J., Laurell F., Arvidsson G., " Fabrication of periodically domain inverted channel waveguides in lithium niobate for second harmonic generation.", *J. Light. Tech.* **7**(10) (1989) 1597-1600
- [13] cf paragraphe 3.1
- [14] Armani F., Delacourt D., Lallier E., Papuchon M., He Q., De Micheli M., Ostrowsky D.B., "First order quasi-phase matched LiNbO<sub>3</sub> waveguides." *Electron. Lett.* **28** (1992) 139-140
- [15] Yamada M., Nada N., Saitoh M., Watanabe K., "First-order quasi-phase matched LiNbO<sub>3</sub> waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation.", *Appl. Phys. Lett.* **62** (5) (1993) 435-436
- [16] Miller G.D., Batchko R.G., Fejer M.M., Byer R.L., "Visible quasi-phase matched harmonic generation by electric-field-poled lithium niobate", *SPIE Proc. Vol. 2700*, (1996) 34-45
- [17] Edwards T.J., Turnbull G.A.; Dunn M.H., Ebrahimzadeh M., Karlson H., Arvidson G., Laurell F., « Continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled RbTiOAsO<sub>4</sub>. », CLEO'98, paper CMK1, San Francisco, May 98
- [18] Batchko R.B., Weise D.R., Plettner T, Miller G.D., Fejer M.M., Byer R.L., "Continuous-wave 532 nm pumped singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate.", *Opt. Lett.* **23** (3) (1998) 168-170
- [19] Myers L.E., Eckardt R.C., Fejer M.M., Byer R.L., Bosenberg W.R., Pierce J.W., *J. Opt. Soc. Am. B* **12** (1995) 2102)
- [20] Lindsay I.D., Turnbull G.A., Dunn M.H, Ebrahimzadeh M., " Doubly resonant cw PPLN optical parametric oscillator pumped by injection-locked broad area diode laser.", CLEO'98, paper CMK3, San Francisco, May 98

- [21] Klein M.E., Lee D.H, Meyn. J.P., Beier B, Boller K.J., Wallenstein R., "Diode pumped cw optical parametric oscillator with large temperature tunability based on periodically poled lithium tantalate" CLEO'98, paper CMK2, San Francisco, May 98
- [22] Schneider K., Kramper P., de Natale P., Inguscio M., Schiller S., Mlyneck J., "Widely tunable parametric oscillator for high resolution spectroscopy", CLEO'98, paper CMK5, San Francisco, May 98
- [23] Fejer M.M., Magel G.A., Jundt D.H., Byer R.L., "Quasi-phase-matched second harmonic generation : tuning and tolerances.", *J. Quant. Elec.* **28** (11) (1992) 2631-2654
- [24] Becouarn L., Lallier E., Brévignon M., Lehoux J., " Cascaded second-harmonic and sum-frequency generation of a CO<sub>2</sub> laser using a single quasi-phase-matched GaAs crystal." CLEO'98, paper CTuM23, San Francisco, May 98
- [25] Galvanauskas A., Hariharan A., Harter D., Arbore M.A, Fejer M.M., " Micro laser pumped, engineerable bandwidth parametric chirped-pulse amplifier using electric-field-poled LiNbO<sub>3</sub>", CLEO'98, paper CME2, San Francisco, May 98
- [26] Reid D.T., Loza-Alvarez P., Ebrahimzadeh M., Rafailov E.U., Faller P., Birkin D.J., Sibett W., Karlson H., Laurell F., " Femtosecond pulse compression by second harmonic generation in aperiodically poled KTP.", CLEO'98, paper CME3, San Francisco, May 98
- [27] Boyd J.T., (1972) *J.Q.E.* **8** 788
- [28] Bloembergen N., " Conservation laws in nonlinear optics", *J. Opt. Soc. Am.* **70** (12) (1980) 1429-1436
- [29] Stegeman G.I. et Seaton C.T., "Nonlinear integrated optics", *J. Appl. Phys* **58** (12) (1985). R57-R78
- [30] Hayata K., Sugawara T. et Koshiha M. "Modal analysis of second harmonic electromagnetic field generated by the Cerenkov effect in optical waveguides.", (1990), *J. of Quan. Elect.* **26** (1) 123-134
- [31] Yariv A. "*Quantum Electronics*", (1975), Wiley, New York
- [32] Ito H. and Inaba H., "Efficient phase matched second harmonic generation method in four layered optical waveguide structures.", *Opt. Lett.* **2** (6) (1978) 139-141
- [33] De Micheli M., Botineau J., Sibillot P., Neveu S., Ostrowsky D.B. et Papuchon M., " Extension of second harmonic phase matching range in Lithium Niobate guides", *Opt. Lett.* **8** (1983) 116-118
- [34] Schmidt R.V. et Kaminov I.P., " Metal diffused optical waveguides in LiNbO<sub>3</sub>." *Appl. Phys. Lett.* **25** (8) (1974) 458
- [35] Sohler W. p. 449, et Suche H. p. 480. "*New directions in Guided Waves and Coherent Optics*", Ed. By D.B. Ostrowsky and E. Spitz, Martinus Nijhoff Ed., The Hague (1984),
- [36] Hermann H. et Sohler W., "Difference-frequency generation of tunable, coherent mid-infrared radiation in Ti:LiNbO<sub>3</sub> channel waveguides.", *J. Opt. Soc. Am. B* **5** (2) (1988) 267-277
- [37] He Q., De Micheli M.P, Ostrowsky D.B., Lallier E., Pocholle J.P., Papuchon M., Armani F., Delacourt D., C. Grezes-Besset C. et Pelletier E.; "Self-frequency-doubled high  $\delta n$  proton exchanged Nd:LiNbO<sub>3</sub> waveguide laser, *Opt. Comm* **89** (1) (1992) 54-58
- [38] Li M.J., De Micheli M.P. et Ostrowsky D.B., "Cerenkov configuration Second Harmonic Generation in Proton Exchanged Lithium Niobate waveguides", *J. Quant. Elect.* **26** (8) (1990) 1384-1393
- [39] Thyagarajan K., Mahalakshmi V. et Shenoy M.R, " Performance comparison of different configuration for second harmonic generation in planar waveguides.", *Int. Journal of Optoelectronics*, **8** (4) (1993) 319-332

- [40] Taniuchi T. et Yamamoto K., " Mignaturized light sources of coherent blue radiation." Proc. CLEO'87, p.198
- [41] Bierlein D., Roelofs M.G., Brown J.B. Tohma T. et Okamoto S., " KTiOPO<sub>4</sub> Blue laser using segmented waveguide structures." *Compact Blue-Green Lasers'94*,
- [42] Yamada M., Nada N., Saitoh M et Watanabe K., " First order quasi-phase matched LiNbO<sub>3</sub> waveguides periodically poled applying an external field for efficient blue second harmonic generation." *Appl. Phys. Lett.*, **60** (1993) 435-436
- [43] Fujimura M. et al. , *Electron. Lett.*, **28** (1992) 1868-1869
- [44] Delacourt D., Armani F. et Papuchon M. " Second harmonic generation efficiency in periodically poled LiNbO<sub>3</sub> waveguides." *J. of Quan. Elect.* **30** (4) (1994) 1090-1099
- [45] Machio S. Nitanda F., Ito K et Sato M., " Fabrication of periodically inverted domains structures in LiTaO<sub>3</sub> and LiNbO<sub>3</sub> using proton exchange." *Appl. Phys. Lett.* **61** (26) (1992).3077-3079
- [46] Gupta M.C., Risk W.P., Nutt A.C.G. et Lau S.D., " Domain inversion in KTiOPO<sub>4</sub> using electron beam scanning." *Appl. Phys. Lett.* **63** (9) (1993) 1167-1169
- [47] Myers L. E., PhD dissertation (G. L. n° 5396, Stanford University) (1995),
- [48] Chen Q et.. Risk W.P, " Periodic poling of KTiOPO<sub>4</sub> using an applied electric field." *Electron. Lett.*, **30** (18) (1994) 1516-1517
- [49] Baldi P., Nouh S., De Micheli M.P., Ostrowsky D.B., Delacourt D. Banti X. et Papuchon M., Efficient quasi phase-matched generation of parametric fluorescence in room temperature lithium niobate waveguides, *Elect. Lett.* **29** (17) (1993) 1539
- [50] Baldi P., Aschieri P., Nouh S., De Micheli M. et Ostrowsky D.B.; Delacourt D. et Papuchon M., " Modelling and experimental observation of parametric fluorescence in periodically poled lithium niobate waveguides." *J. of Quan. Elect.* **31** n°6 (1995) 997-1008
- [51] Mueller C.T., et Garmire E., "Photorefractive effect in LiNbO<sub>3</sub> directional couplers", *App. Opt.*, **23** (1984) 4348-4351
- [52] Baron C., Cheng H. et Gupta M.C., " Domain inversion in LiTaO<sub>3</sub> and LiNbO<sub>3</sub> by electric field application on chemically patterned crystals." *Appl. Phys. Lett.* **68** (4) (1996) 22
- [53] Aboud I., De Micheli M. et Ostrowsky D.B.; Smith P.G.R. et Hanna D., " Etude de l'influence de la fabrication des guides d'ondes sur l'inversion de la polarisation dans le niobate de lithium ", JNOG'97 - Saint Etienne - France
- [54] Korkishko Yu. N., Fedorov V.A, De Micheli M., El Hadi K., Baldi P., Leycuras A., "Relationships between structural and optical properties of proton-exchnaged waveguides on Z-cut lithium niobate." *Applied Optics*, **35** N° 36 (1996) 7056-7060
- [55] White J.M. et Heidrich P.F., "Optical waveguide refractive index profiles determined from the measurement of mode indices: a simple analysis", *Appl. Opt.* **15** (1976) 151
- [56] Fedorov V.A., Ganshin V.A. et Korkishko Yu. N., " New method of double-crystal X-Ray diffractometric determination of the strained state in surface-layer structures." *Phys. Status Solidi (a)* **135**(1993) 493
- [57] El Hadi K., Baldi P., Nouh S.. De Micheli M P, Leycuras A., Fedorov V A. et Korkishko Yu. N., "Control of proton exchange for LiTaO<sub>3</sub> waveguides and crystal structure of H<sub>x</sub>Li<sub>1-x</sub>TaO<sub>3</sub>", *Opt. Lett.* **20** (16) (1995) 1698-1700
- [58] Chen S., De Micheli M.P., Baldi P., Ostrowsky D.B., Leycuras A., Tartarini G. et Bassi P., "Hybrid modes in Proton Exchanged waveguides realized in LiNbO<sub>3</sub>, and their dependance on Fabrication parameters", *J. Light. Tech.* **12** (5) (1994) 862-871
- [59] Chen S., PhD dissertation, Nice 1992



- [60] Bortz M.L., Eyres L.A. et Fejer M.M., "Depth profiling of the  $d_{33}$  nonlinear coefficient in annealed proton exchanged LiNbO<sub>3</sub> waveguides", *Appl. Phys. Lett.* **62** 2012-2014
- [61] Cao X., Srivastava R., Ramaswamy R.V. et Natour J., "Recovery of second order optical nonlinearity in annealed proton-exchanged LiNbO<sub>3</sub>", *Photon. Technol. Lett.* **3**, (1993)
- [62] Laurell F., Roelofs M.G, et Hsiung H., "Loss of optical nonlinearity in proton-exchanged LiNbO<sub>3</sub> waveguides", *Appl. Phys. Lett.* **60** (1992) 301-303
- [63] El Hadi K., Sundheimer M., Aschieri P., Baldi P., De Micheli M.P. et Ostrowsky D.B.; Laurell F., "Quasi-phase-matched parametric interactions in proton exchanged lithium niobate waveguides", *J. of Opt. Soc. of Ame. B*, **14** (11) (1997) 3197-3203
- [64] Ahlfeldt H., "Non-linear optical properties of proton-exchanged waveguides in Z-cut LiTaO<sub>3</sub>", *J Appl. Phys.* **76** (6) (1994) 3255-3260
- [65] Li M.J., De Micheli M., Ostrowsky D., et Papuchon M., " Fabrication et caractérisation des guides PE présentant une faible variation d'indice et une excellente qualité optique", *J. Optics (Paris)* **18** (3) (1987) 139-144
- [66] Nassau K., Levinstein H.J, et Loïcano G.M., "Ferroelectric lithium niobate 1: Growth, domain structure, dislocations and etching », *J. Phys. Chem. Solids* **27**(1966) 983-988..
- [67] Baldi P., Aschieri P., Nouh S., De Micheli M., Ostrowsky D. B., Delacourt D., et Papuchon M., "Modeling and Experimental observation of Parametric Fluorescence in Periodically Poled Lithium Niobate Waveguides", *IEEE J. of Quan. Elect.*, **31** (6) (1995) 997-1008



## **L'effet photoréfractif**

G. Pauliat et G. Roosen

*Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, UMR 8501, Centre Scientifique d'Orsay, bâtiment 503, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France*

**Résumé :** La souplesse d'emploi des matériaux photoréfractifs est un de leurs principaux attraits. Un même échantillon est sensible sur une plage de longueurs d'onde de plus de 100 nm avec des temps de réponse s'étageant de moins d'une nanoseconde à plus d'une seconde en fonction de la puissance optique mise en jeu. Cette richesse explique le succès de l'effet photoréfractif et aussi les centaines de publications annuelles sur ce sujet. De nombreux matériaux photoréfractifs aux caractéristiques très diverses sont disponibles commercialement. Bien qu'il ne soit pas possible de résumer ici l'ensemble de ces résultats, nous présentons les notions indispensables à la compréhension de ce phénomène non-linéaire, à l'utilisation de ces matériaux, et au choix des échantillons. Nous n'abordons pas le vaste domaine des applications.

### **1. INTRODUCTION**

#### **1.1 Historique**

L'effet photoréfractif fut découvert expérimentalement par des chercheurs des Laboratoires Bell. Ils observèrent qu'un faisceau "laser" visible ou ultraviolet focalisé dans certains cristaux transparents, tels que le niobate de lithium ( $LiNbO_3$ ), en modifie l'indice de réfraction. Dès leur première publication, en 1966 [1], ils montrèrent et soulignèrent les caractéristiques suivantes qui font l'intérêt de l'effet photoréfractif.

- i) Contrairement à la plupart des autres phénomènes optiques non-linéaires, la variation d'indice induite dépend de l'énergie reçue et non pas de la puissance de l'onde optique. Une même variation d'indice peut donc être induite avec des faisceaux de faibles puissances et au bout d'un temps long ou avec des faisceaux de plus fortes puissances et au bout d'un temps plus court.
- ii) Un même échantillon est sensible à toutes les longueurs d'onde d'une gamme spectrale.
- iii) La variation d'indice induite persiste dans l'obscurité mais peut être effacée soit en éclairant le cristal uniformément, soit en le chauffant à température modérée (de l'ordre de 170°C pour  $LiNbO_3$ ).
- iv) L'amplitude de la variation d'indice peut être contrôlée par l'application d'un champ électrique à l'échantillon.

Ce changement d'indice photoinduit produit une distorsion du front de l'onde optique. Il détériore les performances des modulateurs électro-optiques et des doubleurs de fréquence construits avec ces matériaux. Cet effet indésirable fut d'abord appelé "dommage optique". Depuis, de nombreux travaux ont eu pour objectif de réduire ce dommage optique afin de pouvoir construire des modulateurs et des doubleurs de fréquence. Parallèlement à ces recherches, d'autres études ont montré comment tirer profit de cet effet qui prend alors le nom d'effet photoréfractif. Ainsi, dès 1968 des hologrammes ont été enregistrés dans des matériaux photoréfractifs [2-4] en temps "quasi" réel. Étant donné la réversibilité de ce mécanisme d'enregistrement, ces hologrammes peuvent être effacés ou remis à jour en permanence pour s'adapter à des fronts d'onde qui fluctuent. Un traitement approprié permet parfois d'obtenir une fixation et une lecture non destructive de l'hologramme. La première application envisagée fut donc la réalisation de mémoires optiques de haute capacité. Les données sont d'abord regroupées sous la forme d'images avant d'être enregistrées holographiquement. Des difficultés, principalement liées d'une part à l'absence de composants dynamiques pour afficher les images sur un faisceau et, d'autre part au fait que l'enregistrement (et la lecture) d'une image efface partiellement les images précédemment enregistrées, ont limité le développement de ces travaux. Ces études recouvrent un nouvel intérêt actuellement. Vers la fin des années 70 et le début des années 80, on se rendit compte de l'avantage qu'apporte cette réversibilité de l'enregistrement pour le traitement en temps réel de l'information, la conjugaison de phase et l'amplification de faisceaux et d'images. De nombreuses applications ont été démontrées. En raison de sa souplesse d'emploi, l'effet photoréfractif est très souvent utilisé pour des démonstrations de laboratoire. Cependant, seules quelques applications industrielles ont vu le jour.

L'effet photoréfractif a tout d'abord été observé dans de nombreux cristaux inorganiques qui sont nécessairement électro-optiques et photoconducteurs. Un effort considérable a été fourni pour optimiser ces cristaux. Les mécanismes physiques responsables de l'effet photoréfractif sont maintenant mieux compris. Récemment des matériaux totalement nouveaux ont été conçus pour présenter un effet photoréfractif.

Voici une liste non exhaustive des matériaux les plus étudiés et utilisés.

\* Les cristaux inorganiques isolants, sensibles dans le spectre visible : ferroélectriques  $LiNbO_3$ ,  $BaTiO_3$ ,  $KNbO_3$ ,  $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$  (SBN); sillenites (paraélectriques)  $Bi_{12}SiO_{20}$  (BSO),  $Bi_{12}GeO_{20}$  (BGO),  $Bi_{12}TiO_{20}$  (BTO);  $KTa_xNb_{1-x}O_3$  (KTN).

\* Des céramiques dans l'ultraviolet.

\* Les cristaux inorganiques semi-conducteurs, sensibles dans le proche infrarouge, depuis 1984 :  $GaAs$ ,  $InP$ ,  $CdTe$ ,  $CdZnTe$ .

\* Les alliages, puits quantiques, depuis 1990 :  $GaAs / GaAlAs$ ,  $InP / InGaAsP$ .

\* Un cristal organique synthétisé en 1990.

\* Les matériaux polymères amorphes depuis 1990.

\* Les cristaux liquides nématiques depuis 1995.

\* Des sols gels dopés avec des molécules organiques et également des verres organiques depuis 1996.

## 1.2 Architecture du document

Pour clarifier la présentation de l'effet photoréfractif, nous allons décomposer l'interaction lumière matière en différentes étapes. Nous montrerons que l'effet photoréfractif provient de la création d'un champ électrique interne à partir d'une figure d'illumination; ce champ induit la variation d'indice.

Nous adoptons la présentation suivante.

- Dans le chapitre 2, nous allons montrer comment se crée un champ électrique interne à partir d'une figure d'illumination n'évoluant pas dans le temps. C'est le cas de la propagation d'une onde dans un milieu photoréfractif suffisamment mince pour que les variations d'indice induites ne modifient pas la propagation.

- Au chapitre 3, nous introduirons les différents effets électro-optiques qui sont responsables de la création d'une variation d'indice induite par ce champ électrique. Nous montrerons comment calculer ces modulations d'indice.
- Nous traiterons de la diffraction d'une onde optique sur un réseau d'indice statique dans le chapitre 4. Ce traitement est justifié car la période de l'onde est toujours très inférieure à la constante de temps de croissance de l'effet photoréfractif. Nous regrouperons ensuite tous les résultats obtenus pour étudier la propagation de deux (chapitre 5) et quatre (chapitre 6) faisceaux qui inscrivent un réseau et qui simultanément s'autodiffractent sur ce réseau induit.
- Pour finir, dans le chapitre 7, nous présenterons les caractéristiques de quelques matériaux photoréfractifs.

## 2. ENREGISTREMENT D'UN RÉSEAU DE CHAMP ÉLECTRIQUE

### 2.1 Présentation de l'effet photoréfractif

Le mécanisme physique responsable de l'effet photoréfractif a été compris [3] peu après sa découverte. Il apparaît toujours dans des matériaux électro-optiques et photoconducteurs. L'absorption d'un photon permet à une charge électrique (électron ou trou) de passer d'un site à un autre. Ce déplacement peut s'effectuer sans étape intermédiaire par un saut direct d'un site à l'autre, ou alors par l'entremise de porteurs de charge libres se déplaçant sous l'effet de l'agitation thermique ou d'un champ électrique. Pour une illumination non uniforme, la redistribution des charges électriques engendre un champ électrique modulé spatialement dit de charge d'espace. C'est ce champ qui produit une variation de l'indice de réfraction par un effet électro-optique.

Cette description sommaire suffit à faire ressortir les caractéristiques principales de l'effet photoréfractif.

\* Il est sensible à l'énergie reçue ce qui permet d'induire des variations d'indice aussi bien avec des faisceaux laser continus de faibles puissances qu'avec des faisceaux laser impulsionnels brefs et plus puissants.

\* Contrairement à ce qui se passe pour des plaques photographiques, il n'y a aucun blanchiment de l'effet. Un équilibre est atteint lorsque le champ de charge d'espace créé par le déplacement des charges électriques s'oppose à tout nouveau déplacement de charge.

\* Il possède une certaine inertie. Le temps nécessaire pour construire le champ de charge d'espace (donc la variation d'indice) dépend de l'efficacité du mécanisme de transfert de charge et de la rapidité avec laquelle est délivrée l'énergie optique. Par exemple après passage d'une impulsion lumineuse, la variation d'indice met un certain temps pour se construire, temps nécessaire pour que les charges excitées se déplacent significativement.

\* Il est totalement réversible. Toute variation locale d'indice est effacée par un éclairage uniforme qui redistribue les charges dans le matériau. L'excitation thermique redistribue également ces charges uniformément ce qui efface aussi la variation d'indice. Le chauffage du matériau accélère cette redistribution.

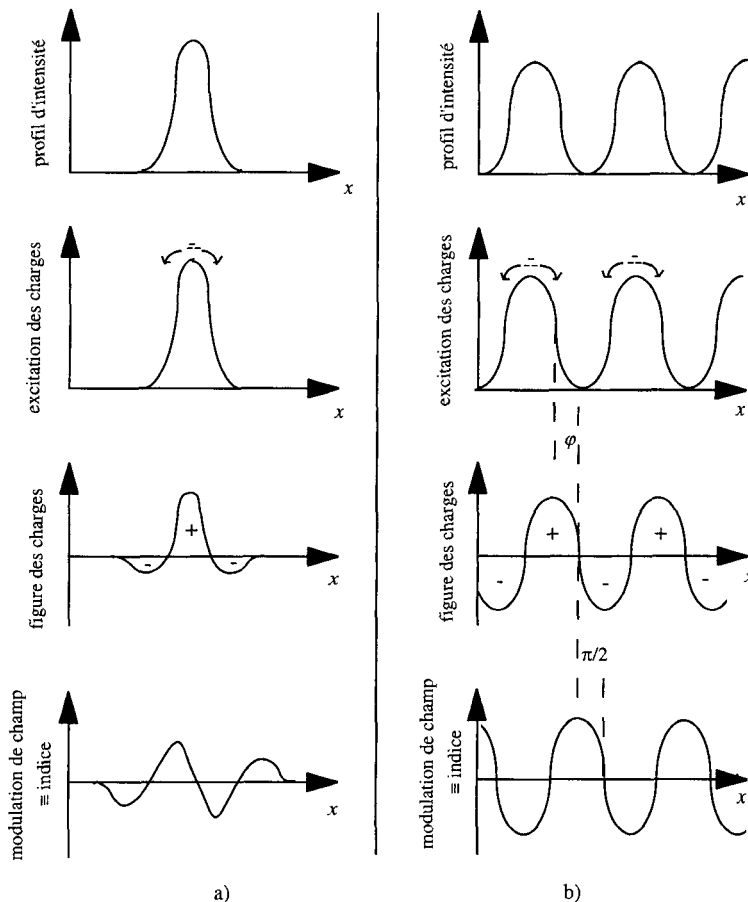
\* Il possède un effet mémoire. Dans l'obscurité, la distribution de charge est figée et la variation d'indice induite persiste. La durée de mémorisation dépend de la conductivité dans l'obscurité. Si pour certains matériaux elle est inférieure à la seconde, elle peut atteindre plusieurs années dans d'autres.

\* Les matériaux photoréfractifs sont sensibles sur une large plage de longueurs d'onde. La gamme de sensibilité varie d'une classe de matériaux à une autre (en général visible pour les isolants à grande largeur de bande interdite, proche infrarouge pour les semi-conducteurs). Pour les cristaux, elle dépend aussi du dopage. Pour tous, la sensibilité décroît aux grandes longueurs d'onde. La lecture non destructive de la variation d'indice (récupération de l'information stockée sans effacement) est possible au moyen de faisceaux de longueurs d'onde supérieures à celle utilisée pour l'enregistrement.

\* Il est non local dans le sens où il résulte d'un transport de charge. Il est également non local dans un second sens où, suite à la loi de Poisson liant les distributions de charge et de champ, la figure d'indice ne reproduit pas la distribution de charge. Ainsi pour des réseaux d'illumination, la modulation d'indice sera spatialement déphasée (i.e. décalée) par rapport à la modulation d'intensité qui lui a donné naissance. Cela conduira à un transfert cohérent d'énergie entre les ondes qui se propagent dans le cristal.

\* Il peut être modifié et contrôlé par un champ électrique externe appliqué au cristal.

Il est important de remarquer que la figure d'indice engendrée par un faisceau de profil quelconque est en général inutilisable. En effet, la plupart du temps il n'existe pas de relation simple entre l'information enregistrée sous forme de variation d'indice et le profil du faisceau d'écriture. Par exemple sur la figure 1.a, nous avons représenté l'effet photoréfractif induit par un faisceau à profil gaussien. L'axe  $x$  représente la coordonnée d'espace suivant le profil du faisceau.



**Figure 1 :** Développement d'une figure d'indice à partir d'un éclairage non uniforme; a) cas d'un éclairage gaussien; b) cas d'un éclairage sinusoïdal.

La figure est tracée en supposant que les charges électriques libérées sont des électrons. Si ces électrons ne se déplacent que sous l'effet de l'agitation thermique, la distribution de charge qui résulte de ce déplacement présente un maximum positif au centre (déficit d'électrons) et des minima sur les bords du faisceau gaussien. Le champ électrique créé par

cette distribution de charge se calcule à partir de l'équation de Poisson. Sa forme diffère totalement du profil gaussien du faisceau. En particulier elle possède deux maxima et deux minima qui vont se comporter, en première approximation, comme des lentilles convergentes et divergentes. Ces lentilles déforment le front d'onde du faisceau incident. Il faut noter que ce processus d'interaction du faisceau avec la variation d'indice induite se produit dans toutes les tranches du matériau suivant la direction de propagation. À la sortie de l'échantillon photoréfractif et pour des variations d'indice importantes, le profil du faisceau est très difficilement prévisible. Nous venons de décrire le "dommage optique".

Il existe un cas particulier où la relation entre la figure d'illumination et le profil d'indice est simple. Il s'agit de la figure d'intensité quasi-périodique produite par l'interférence d'une onde signal avec une onde référence. Ainsi qu'illustré sur la figure 1.b, la variation d'indice reproduit la figure d'interférence sous la forme d'un réseau de phase de même période. Sur cette figure nous avons introduit un déphasage  $\varphi$  entre le réseau d'illumination et la figure de charge. Ce déphasage peut provenir de l'application d'un champ électrique au matériau.

L'information portée par l'onde signal sous forme d'une variation de phase ou d'amplitude est alors codée sur la variation de phase ou d'amplitude du réseau d'indice. Ce réseau d'indice peut être modifié en temps réel par les ondes d'écriture ou par d'autres faisceaux. L'information ainsi traitée peut être extraite simultanément en observant par exemple l'onde diffractée dans la direction de l'onde signal. Ce type d'expériences est appelé holographie dynamique.

Sauf exception, pour mettre à profit l'effet photoréfractif il est nécessaire de passer par l'intermédiaire d'un réseau d'illumination.

## 2.2 Présentation du modèle

Deux modèles distincts ont été développés pour rendre compte de la variation d'indice optiquement induite dans les matériaux électro-optiques. Ils diffèrent par le mécanisme responsable du transport de charge mais tous les deux considèrent l'existence de charges électriques piégées dans des "sites" ou "niveaux" dus à des défauts de la maille cristalline ou à des impuretés. L'origine et la nature de ces sites ou niveaux ne sont pas toujours bien connues et des travaux de spectroscopie sont activement développés pour les déterminer.

Le modèle de transport par saut de la charge d'un site à un autre avec une probabilité de saut dépendant de la différence de potentiel entre ces sites a été développé en 1980 par R.W. Hellwarth et col. [5, 6]. Ce modèle, bien que décrivant parfaitement l'effet photoréfractif, possède l'inconvénient de devoir définir une fonction "différence de potentiel entre sites", inconnue a priori. Certaines de ces fonctions permettent de reproduire les prédictions du second modèle dit de "transport par les bandes". Pour expliquer les résultats expérimentaux observés lors de l'application au matériau d'un champ électrique [7, 8], la forme de cette fonction doit être très complexe. Étant donné que ces résultats sont très facilement décrits par le modèle de transport par les bandes, le modèle de transport par saut est présentement délaissé. Il pourrait retrouver un intérêt pour l'étude des matériaux organiques photoréfractifs.

Le modèle de transport par les bandes est largement utilisé à l'heure actuelle. Il décrit le transport de charge dans des matériaux cristallins et considère que celui-ci s'effectue par l'intermédiaire des porteurs libres se déplaçant dans la bande de conduction et/ou dans la bande de valence. Ce modèle de transport s'inspire de ceux utilisés pour décrire la photoconduction dans les semi-conducteurs. Il fut proposé dès 1969 pour décrire l'effet photoréfractif [3]. Il a d'abord été résolu pour des cas particuliers [9-18] (longueurs de diffusion très petites ou très grandes devant la période de la variation d'intensité lumineuse). Le développement le plus utile fut donné par Kukhtarev et col. en 1979 [19, 20].

Les longueurs d'onde d'excitation correspondant au domaine de transparence du matériau, on a admis l'existence de niveaux photoexcitables situés dans la bande interdite du cristal. Ces niveaux sont partiellement remplis d'électrons. Ils sont dus à des centres dits profonds qui existent sous au moins deux états de valence. L'existence, en l'absence

d'excitation lumineuse, de niveaux inoccupés est due à la présence d'autres types d'impuretés ou de défauts (accepteurs ou donneurs superficiels) qui produisent des niveaux électroniques situés au voisinage des bandes. Nous admettons que ces niveaux superficiels ne sont pas photoexcitables et ne participent pas à l'effet photoréfractif. Ils assurent la neutralité électrique du matériau et seule compte leur densité totale. Si l'un des états des centres profonds est neutre par rapport au réseau cristallin et l'autre ionisé (positivement ou négativement), la densité de centres superficiels est égale à la densité de centres profonds ionisés ; peu important leur niveau d'énergie et le nombre de types distincts.

On arrive à des configurations différentes suivant que la photoconduction s'effectue par électrons et trous ou par un seul type de porteur de charge. Sur les figures 2.a.b.c, nous avons illustré les schémas d'énergie en fonction d'une coordonnée spatiale pour différents cas possibles.  $N$  est la densité totale de centres profonds. Ces centres se présentent sous deux états de charge. Le premier a une densité  $N - N^i$ . S'il est neutre par rapport au réseau cristallin, le second de densité  $N^i$  est alors ionisé positivement pour une photoconduction par électrons (figure 2.a). La transformation de l'un en l'autre s'effectue par excitation et recombinaison d'un électron et/ou d'un trou suivant le type de matériau.  $N_A$  est la densité de centres superficiels chargés négativement et situés près de la bande de valence. On aurait également pu introduire des centres donneurs superficiels  $N_D$  chargés positivement.

Il convient de garder à l'esprit que tous ces dessins sont des représentations schématiques qui ne rendent que très partiellement compte de la complexité des processus de transfert de charge [21]. En effet, généralement plusieurs types de centres profonds et superficiels existent. Des transferts de charge peuvent avoir lieu entre ces centres soit directement soit par l'intermédiaire des bandes de conduction et de valence. Néanmoins, dans un premier temps, nous nous contenterons de cette approche simplifiée qui permet de rendre compte de nombreux résultats observés. Elle peut être aisément complétée pour s'adapter à tous les cas particuliers.

Pour illustrer nos propos, nous considérons un échantillon de  $BaTiO_3$  non intentionnellement dopé et tel qu'obtenu après la croissance cristalline. Dans un tel échantillon, de multiples niveaux énergétiques existent [21-23]. Nous n'avons représenté sur la figure 3.a que les principaux niveaux d'énergie électroniques. Il s'agit de niveaux donneurs superficiels associés à des lacunes en oxygène et de niveaux profonds associés à du fer qui se trouve toujours présent en faible quantité dans les matériaux de base employés pour la cristallogénèse. L'énergie qu'il faut apporter pour créer une paire électron-trou par une excitation bande à bande est de 3,1 eV, bien plus grande que les énergies des photons utilisés lors des expériences photoréfractives. Dans ces échantillons, le niveau de Fermi se situe aux alentours de 0,9 eV, c'est-à-dire que les niveaux associés à la transition  $Fe^{4+}/Fe^{3+}$  sont partiellement occupés et que les niveaux associés aux transitions de plus grande énergie sont principalement vides d'électron. Du fait de la faible valeur de cette énergie de Fermi, la conduction dans l'obscurité se fait par les trous dans la bande de valence. L'énergie d'ionisation de 0,9 eV associée à la transition  $Fe^{4+}/Fe^{3+}$  est l'énergie thermique  $E_h$  minimale qu'il faut absorber lors de la transition  $Fe^{4+} + E_h \rightarrow Fe^{3+} + h$ , c'est-à-dire produire un trou dans le haut de la bande de valence et  $Fe^{3+}$  dans son état de plus basse énergie.

Pour modéliser l'effet photoréfractif on tient compte du fait que pour cet échantillon et pour les longueurs d'onde utilisées (domaine vert du spectre), la photoconduction ne s'effectue que par les trous et met principalement en jeu la transition  $Fe^{4+}/Fe^{3+}$ . On simplifie donc le schéma énergétique comme montré sur la figure 3.b. Le niveau  $N_D$  prend en compte tous les niveaux de haute énergie.  $(N - N^i)/N^i$  représente le niveau associé à la transition  $Fe^{4+}/Fe^{3+}$ . Sur ce schéma on a également représenté l'énergie minimale  $E_{ph}$  que doit avoir le photon absorbé pour exciter la transition  $Fe^{4+} + E_{ph} \rightarrow Fe^{3+} + h$ . Cette énergie est bien supérieure à  $E_h$ . Cet écart est connu sous le nom de décalage Franck Condon et provient de ce que l'ion  $Fe^{3+}$  dans son état fondamental n'est pas dans la position spatiale occupée par  $Fe^{4+}$  dans son

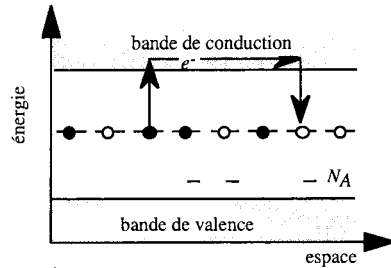


état fondamental. Lors d'une transition optique, l'ion n'a pas le temps de se déplacer. Il est donc produit dans un état excité  $Fe^{3+*}$ . La différence d'énergie entre  $Fe^{3+*}$  et  $Fe^{3+}$  correspond à la différence  $E_{ph} - E_{th}$ .

a) Photoexcitation d'électrons

$N-Ni$  ● occupés par un électron

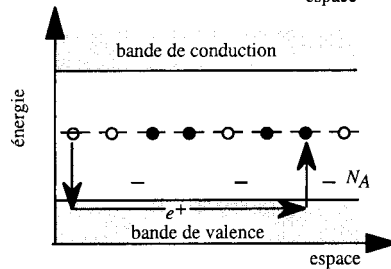
$Ni$  ○ vides d'électron



b) Photoexcitation de trous

$N-Ni$  ○ occupés par un trou

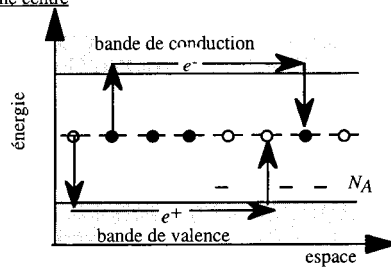
$Ni$  ● vides de trou



c) Photoexcitation d'électrons et de trous à partir d'un même centre

$N-Ni$  ● occupés par un électron

$Ni$  ○ occupés par un trou



d) Schéma d'énergie dans un polymère photoréfractif avec excitation de trous

○ orbitales moléculaires inoccupées du photogénérateur

● agents de transport de trous

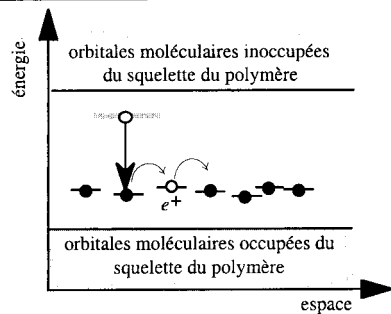


Figure 2 : Exemples de schémas d'énergie utilisés pour décrire l'effet photoréfractif dans les cristaux a,b,c); dans les polymères d).

Cette illustration montre combien le schéma utilisé dépend non seulement de la longueur d'onde employée, du type de matériaux ( $BaTiO_3$ ,  $LiNbO_3$ ...) mais également, dans une même famille de matériaux, des propriétés spécifiques de l'échantillon. On peut par exemple doper l'échantillon lors de la croissance pour créer d'autres niveaux profonds, effectuer des

oxydations et des réductions pour modifier le niveau de Fermi. Ainsi une réduction de l'échantillon de  $BaTiO_3$  présenté ci-dessus permet de remplir partiellement les niveaux  $Fe^{3+}/Fe^{2+}$  [23]. La photoconduction s'effectue alors par les électrons excités à partir de ces niveaux. Les propriétés photoréfractives en sont totalement modifiées. Ces divers traitements, dopages et oxydoréduction, permettent d'optimiser les échantillons.

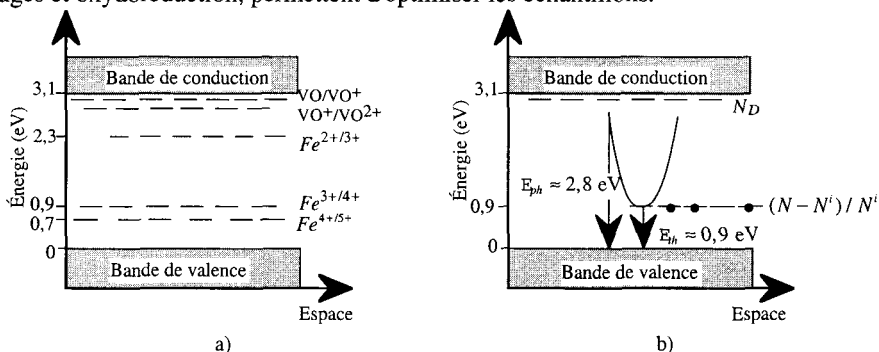


Figure 3 : a) Schéma des niveaux électroniques d'un échantillon de  $BaTiO_3$  brut de croissance; b) schéma simplifié pour décrire l'effet photoréfractif.

Pour les matériaux non cristallins, ces schémas énergétiques doivent être adaptés. Pour les polymères, on pourra consulter avec profit l'article de revue de la référence [24] et le modèle développé en [25]. Nous avons représenté sur la figure 2.d, le schéma d'énergie en fonction d'une coordonnée d'espace associé à un polymère photoréfractif [24]. L'énergie des photons est inférieure à l'écart énergétique entre les plus hautes orbitales moléculaires occupées (highest occupied molecular orbitals, HOMO) et les plus basses orbitales moléculaires inoccupées (lowest unoccupied molecular orbitals, LUMO) de la chaîne principale du polymère. Les charges (des trous sur la figure 2.d) sont excitées à partir d'un photogénérateur vers les sites de transport de charge. Elles se déplacent ensuite par saut entre ces sites avant de se recombiner dans des pièges ou de s'accumuler au voisinage des électrodes [25]. Le chromophore nécessaire à l'obtention de l'effet électro-optique ne participe pas à la création du réseau de champ photoréfractif.

### 2.3 Équations du transport de charge

Dans un souci de clarté et pour alléger la présentation, nous considérerons que seuls les électrons participent au transport de charge et qu'il n'existe qu'un seul type de centres photoexcitables. Le schéma énergétique correspondant est celui de la figure 2.a. Si la photoconduction s'effectue par les trous, figure 2.b, le développement est identique. La dérivation des équations de base dans le cas d'une photoexcitation simultanée d'électrons et de trous à partir d'un même centre, figure 2.c, est similaire [26, 27]. Un second modèle de transport par électrons et trous a été développé. Dans celui-ci [27] les électrons sont photoexcités à partir d'un premier centre profond et les trous à partir d'un second centre profond. L'introduction d'une photoconduction par électrons et trous est souvent nécessaire par exemple pour les semi-isolants  $GaAs$  ou  $InP$  [28], les ferroélectriques [29], etc. Nous y reviendrons ultérieurement dans le paragraphe 2.6.2.7. Des modèles ont également été développés pour rendre compte de l'existence de plusieurs centres photoactifs profonds, ou d'un centre photoactif profond et d'un centre superficiel excitable thermiquement avec un seul type de porteurs de charge [30-33]. Plus récemment ces modèles ont été étendus pour décrire l'effet photoréfractif lorsque les centres profonds existent sous trois états de valence [34-36].

Du fait de la complexité du processus d'excitation et de transport de charge, la description de l'effet photoréfractif dans les matériaux organiques, par exemple figure 2.d, n'est pas encore complète. Des débuts d'analyse sont proposés dans les références [24, 25,

37]. Ces analyses sont des adaptations du modèle de transport par les bandes que nous présentons ci-dessous pour les cristaux inorganiques.

L'établissement du modèle de transport par les bandes tel que nous allons le présenter est le résultat de nombreux travaux au cours desquels les mécanismes importants pour rendre compte de la dynamique de l'effet photoréfractif ont été sélectionnés. Simultanément certains phénomènes ont été volontairement exclus de ce modèle afin d'arriver à des expressions simples et facilement exploitables. La plupart du temps ceux-ci peuvent très facilement être réinsérés dans les équations pour décrire plus finement l'effet photoréfractif. Dans la présentation suivante nous allons, pour chaque équation, souligner les principales hypothèses ou approximations faites.

### 2.3.1 Définition de l'intensité optique

Dans ce qui suit, nous utiliserons les notations complexes et nous noterons le champ électrique d'une onde optique sous la forme :

$$\vec{E}^\omega = 0,5 \left[ A \hat{e} e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} + cc \right] \text{ et } A = \|A\| e^{i\psi}, \quad (2.1)$$

où  $A$ ,  $\hat{e}$ ,  $\psi$  et  $\vec{k}$  représentent l'amplitude complexe, le vecteur unitaire, la phase et le vecteur d'onde de cette onde de fréquence angulaire  $\omega$ . Nous considérerons très souvent que l'illumination résulte de l'interférence de deux ondes planes ou plus. Nous repèrerons alors leurs grandeurs respectives soit par les indices  $_{1,2,3,4}$  ou soit par  $_{R,S}$ .

Dans cette équation, nous avons utilisé le point pour symboliser le produit scalaire entre deux vecteurs. Nous conserverons cette notation pour exprimer les produits scalaires entre des vecteurs de composantes réelles. Pour des vecteurs  $\vec{u}$ ,  $\vec{v}$  de composantes complexes, et afin de lever toute ambiguïté, nous emploierons le produit matriciel, dénoté sans le point, de sorte que le produit scalaire  $\vec{u} \cdot \vec{v}$  sera noté :  $\vec{u} \cdot \vec{v} \equiv \vec{u}^{*t} \vec{v}$ ; l'exposant  $^t$  représentant l'opération de transposition et  $^*$  la conjugaison complexe.

L'effet photoréfractif est dû à des transitions optiques réelles. Nous désirons que ce nombre de transitions par unité de temps et de volume soit proportionnel à une intensité que nous cherchons à définir. Une quantité importante à prendre en compte est donc la puissance dissipée localement par l'onde optique [38, 39]. Cette puissance dissipée par unité de volume est égale à la valeur moyenne temporelle du produit matriciel  $\omega \varepsilon_0 \vec{E}^{\omega t} [\varepsilon_{\omega,im}^r] \vec{E}^\omega$  avec  $[\varepsilon_{\omega,im}^r]$  la partie imaginaire de la matrice diélectrique relative aux fréquences optiques et  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide. En fait, tous les photons absorbés n'excitent pas toujours un électron vers la bande de conduction ; ils ne participent donc pas tous à la construction du champ de charge d'espace. Pour tenir compte de ce que certains de ces photons sont perdus pour l'effet photoréfractif, nous introduisons la matrice  $[\varepsilon_{\omega,im}^Q]$  telle que ses coefficients, repérés par l'indice  $_{ij}$  soient proportionnels aux coefficients de  $[\varepsilon_{\omega,im}^r]$ . Nous notons :

$$\varepsilon_{\omega,im,ij}^Q = Q_{ij} \varepsilon_{\omega,im,ij}^r. \quad (2.2)$$

Les coefficients de proportionnalité  $Q_{ij}$  sont appelés efficacités quantiques. Ils représentent, pour chaque composante du champ optique, le rapport entre le nombre de charges excitées qui participent à l'effet photoréfractif et le nombre de photons absorbés. Nous pouvons maintenant définir une puissance utile, telle que le nombre de charges excitées par unité de temps et de volume lui soit proportionnel :

$$P = \left\langle \omega \varepsilon_0 \vec{E}^{\omega t} [\varepsilon_{\omega,im}^Q] \vec{E}^\omega \right\rangle_t, \quad (2.3)$$

les crochets  $\langle \rangle_t$  signifiant valeur moyenne temporelle sur une période.

En toute rigueur, c'est cette puissance utile qu'il faudrait employer pour développer le modèle de l'effet photoréfractif. Cette expression n'est pas toujours facile à utiliser car elle dépend de la polarisation de l'onde optique. Ainsi, si la figure d'illumination est créée par

interférence de deux ondes planes, cette polarisation varie spatialement. Afin d'avoir des expressions faciles à résoudre, nous n'allons pas prendre en compte cette dépendance dans les expressions qui vont suivre. Ce sera rigoureusement vrai si la matrice  $[\epsilon_{\omega,im}^Q]$  est diagonale. Ce sera encore valide même si cette matrice est non diagonale pourvu que la polarisation de l'onde optique varie peu spatialement. Sous cette condition, la puissance utile est proportionnelle à l'intensité de l'onde optique que nous définissons par :

$$I = \langle \vec{E}^{\omega'} \vec{E}^{\omega} \rangle_t \epsilon_0 \bar{n} c, \quad (2.4)$$

$c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,  $\bar{n}$  est la moyenne spatiale de l'indice de réfraction  $n$  vu par le champ électrique. Cette équation (2.4) n'est qu'une définition. La normalisation par  $\bar{n}$  est utile pour faire en sorte que cette intensité coïncide, pour une onde plane dans un milieu isotrope, avec le flux du vecteur de Poynting. Pour celle-ci l'indice moyen correspond en effet à l'indice vu par l'onde en tout point du matériau. Dans un milieu anisotrope ou pour une onde non plane, cette intensité n'est généralement plus égale au flux du vecteur de Poynting.

Pour la figure d'interférence de deux ondes planes, nous obtenons :

$$I = 0,5 \epsilon_0 \bar{n} c \left[ \|A_1\|^2 + \|A_2\|^2 + \left( A_1 A_2^* \hat{e}_2^{*t} \hat{e}_1 e^{+i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + cc \right) \right], \quad (2.5)$$

avec  $\vec{k}_r = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$  le vecteur d'onde du réseau d'interférence de nombre d'onde  $k_r = 2\pi/\Lambda$  et de pas  $\Lambda$ .

En posant  $I_0 = 0,5 \epsilon_0 \bar{n} c (\|A_1\|^2 + \|A_2\|^2)$ , l'illumination peut alors se réécrire soit sous forme complexe :

$$I = I_0 \left[ 1 + 0,5 \left( M e^{+i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + cc \right) \right] \text{ avec } M = 2 \hat{e}_2^{*t} \hat{e}_1 A_1 A_2^* / (\|A_1\|^2 + \|A_2\|^2), \quad (2.6)$$

soit sous forme réelle,

$$I = I_0 \left[ 1 + m \cos(\vec{k}_r \cdot \vec{r} + \psi_{1-2}) \right] \text{ avec } m = \|M\|, \quad (2.7)$$

avec  $\psi_{1-2} = \psi_1 - \psi_2$  la phase relative de l'onde 1 par rapport à l'onde 2,  $M$  le taux de modulation complexe, et  $m$  le taux de modulation réel.

La figure d'intensité (équations (2.5), (2.6)) pourrait tout aussi bien provenir des interférences entre plusieurs ondes ou résulter de la projection en lumière incohérente d'une mire de transparence sinusoidale. Le champ de charge d'espace, et donc la variation d'indice induite, seraient les mêmes.

Sans restreindre notre analyse, nous choisirons souvent notre repère tel que le vecteur d'onde du réseau soit orienté suivant l'axe  $x$ ,  $\hat{x} = \hat{k}_r = \vec{k}_r / \|\vec{k}_r\|$ .

Dans l'équation (2.5), l'intensité  $I$  peut porter de l'information si les valeurs des amplitudes  $A_{1,2}$  dépendent des coordonnées spatiales. On considérera que l'on a toujours un réseau si leurs variations sont lentes sur une distance de l'ordre du pas  $\Lambda$  de la figure d'interférence.

### 2.3.2 Équation de génération de centres ionisés

Nous rappelons que suivant les notations de la figure 2,  $N$  est la densité totale de centres participants à l'effet photoréfractif. Ces centres peuvent se trouver dans deux états, par exemple sous forme ionisée positivement et donc vides d'électron; ils sont alors susceptibles d'en accepter un. Leur densité est notée  $N^i$ . Dans le second état, ils sont neutres et aptes à libérer un électron. Leur densité est alors  $N - N^i$ . Typiquement, pour les cristaux ferroélectriques et les sillénites, nous avons en valeurs moyennes sur tout l'échantillon photoréfractif :  $\langle N \rangle \approx 10^{24}$  centres.m<sup>-3</sup> et  $\langle N^i \rangle > 10^{21}$  centres.m<sup>-3</sup>. Pour des semi-conducteurs

tels que *GaAs*, *CdTe*, *InP*, on trouve généralement  $\langle N \rangle \approx \text{quelques} \langle N^i \rangle \approx 10^{22} \text{centres.m}^{-3}$ . Ainsi, si les grandeurs physiques varient peu sur des volumes de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}^3$ , le nombre de centres mis en jeu est toujours supérieur à  $10^3$ . Pour l'analyse de l'effet photoréfractif il suffit donc d'employer une approche macroscopique et de n'étudier que les variations des densités de centres. Ces densités dépendent des trois coordonnées d'espace et du temps. Pour alléger les notations nous omettons ces dépendances et notons par exemple  $N(x, y, z, t) = N$ .

Localement, en un point  $(x, y, z)$  la densité de centres ionisés augmente par excitation d'électrons à partir de centres neutres vers la bande de conduction et, diminue par recombinaison de ces électrons vers les centres ionisés. En notant  $n$  la densité d'électrons dans la bande de conduction, nous pouvons écrire l'équation de génération-recombinaison suivante :

$$\frac{\partial N^i}{\partial t} = sI(N - N^i) - \gamma n N^i, \quad (2.8)$$

avec  $s$ , la section efficace de photoionisation vers la bande de conduction en  $\text{m}^2.\text{J}^{-1}$ ,  $\gamma$  le taux de recombinaison des électrons en  $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$ ,  $N$  et  $n$  en  $\text{m}^{-3}$  et  $I$  l'intensité optique en  $\text{W.m}^{-2}$  que nous avons définie dans le paragraphe 2.3.1.

Le taux de photoproduction  $sI(N - N^i)$  représente le nombre d'électrons excités vers la bande de conduction par unité de temps et de volume. Il est relié à l'absorption optique  $\alpha$  et à l'énergie  $h\nu$  d'un photon par la relation :

$$s(N - N^i) = Q\alpha/h\nu, \quad (2.9)$$

$Q$  est l'efficacité quantique qui représente encore le rapport entre le nombre de charges excitées qui participent à l'effet photoréfractif et le nombre de photons absorbés. Cette efficacité quantique dépend de la longueur d'onde. Elle peut atteindre l'unité pour des cristaux inorganiques comme les sillenites ou les semi-conducteurs. Dans ces cristaux inorganiques de forte permittivité diélectrique, l'efficacité quantique est indépendante du champ électrique. Dans les matériaux de faible permittivité diélectrique, elle en dépend fortement. Cet effet est décrit par le modèle d'Onsager [40, 41]. L'attraction coulombienne entre une charge excitée et le centre à partir de laquelle elle a été excitée lui donne une probabilité non nulle de se recombiner dans ce centre. S'il y a recombinaison, cette charge ne participe pas à l'effet photoréfractif. Un champ électrique peut faciliter cette séparation et augmenter ainsi cette efficacité quantique. Une première analyse de l'effet photoréfractif prenant en compte une expression simplifiée de la dépendance de  $Q$  avec le champ est présentée dans la référence [40]. Dans les calculs qui vont suivre, nous supposons que l'efficacité quantique est indépendante du champ.

Pour écrire l'équation (2.8) les hypothèses suivantes ont été faites.

i) L'absorption, proportionnelle à  $s(N - N^i)$ , est supposée isotrope. Dans de nombreux matériaux, spécialement les matériaux polymères, cette absorption est anisotrope et dépend de la polarisation du champ électrique de l'onde optique. Dans ce cas, le terme de création  $sI(N - N^i)$  doit être remplacé par une relation matricielle (paragraphe 2.3.1). Des détails sont donnés dans les références [38, 39].

ii) Le taux d'excitation thermique  $\beta$ , en  $\text{s}^{-1}$ , des électrons a été omis. C'est-à-dire que nous avons négligé la conductivité du matériau dans l'obscurité par rapport à la photoconductivité. Pour la prendre en compte il suffit de remplacer le taux  $sI(N - N^i)$  de photoproduction d'électrons vers la bande de conduction par :

$$(sI + \beta)(N - N^i) \text{ en } \text{s}^{-1} \text{ m}^{-3} .$$

Nous voyons que dans les résultats il sera facile de réintroduire le taux d'excitation thermique en remplaçant  $I$  par  $I + I_{\text{noir}}$  avec  $I_{\text{noir}}$  "l'intensité" équivalente de l'obscurité telle que  $I_{\text{noir}} = \beta/s$ . À titre d'exemple la conductivité  $\sigma$  en  $\Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$  à la longueur d'onde de 514 nm d'un échantillon de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ , qui est un semi-isolant, s'exprime de la façon suivante avec  $I$  en  $\text{W.cm}^{-2}$  :

$$\sigma \approx 10^{-15} + 10^{-7} I .$$

Pour cet échantillon la photoconductivité égale la conductivité dans le noir pour une intensité  $I \approx 10 \text{ nW.cm}^{-2}$ . Pour des échantillons semi-conducteurs tels que  $\text{GaAs}$  et  $\text{CdTe}$ , la photoconduction égale la conductivité dans le noir pour  $I \approx 1 \text{ mW.cm}^{-2}$  à la longueur d'onde de  $1 \mu\text{m}$ . L'introduction du terme d'excitation thermique  $\beta$  ne suffit pas toujours à rendre compte de la conductivité dans l'obscurité. En effet pour certains matériaux la photoconductivité est due à un déplacement d'électrons dans la bande de conduction alors que la conductivité dans l'obscurité provient des trous se déplaçant dans la bande de valence (ou vice versa).

iii) L'écriture de l'équation (2.8) suppose implicitement que la section efficace  $s$  est une constante. Nous négligeons par exemple les processus d'absorption à plusieurs photons.

iv) Les électrons dans la bande de conduction se recombinent sur les centres  $N^i$  avec une constante de temps  $\tau_R = 1/\gamma N^i$ . Le taux  $\gamma$  de recombinaison est supposé indépendant de  $n$ , recombinaison linéaire, ce qui est valable aux faibles illuminations ( $n \ll N^i$ ). Si les centres sur lesquels se recombinent les charges ne sont pas électriquement neutres, le taux de recombinaison est inversement proportionnel à la mobilité (théorie de Langevin). Dans certains matériaux pour lesquels la mobilité dépend du champ électrique, par exemple les polymères, les taux de recombinaison dépendent également de ce champ. Nous ne prendrons pas cette dépendance en compte dans les calculs suivants.

### 2.3.3 Équation de conduction

Dans la bande de conduction, les électrons peuvent se déplacer "librement" (électrons de conduction). Plusieurs processus de migration sont à considérer.

\* La diffusion isotrope est due à l'agitation thermique. D'après la loi de Fick, la densité de courant de diffusion s'écrit :

$$\vec{j}_D = eD \vec{\text{grad}} n \text{ avec } D = \mu k_B T/e , \quad (2.10)$$

où  $\mu$ , en  $\text{m}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$ , est la valeur absolue de la mobilité de la charge,  $T$  la température absolue en  $\text{K}$ ,  $k_B$  la constante de Boltzmann en  $\text{J.K}^{-1}$ ,  $n$  la densité électronique photoinduite et  $e$  la valeur absolue de la charge de l'électron. L'expression de la constante de diffusion  $D = \mu k_B T/e$  est appelée "relation d'Einstein". Cette relation d'Einstein est bien vérifiée pour la majorité des cristaux photoréfractifs et pour des porteurs de charge thermalisés. Elle ne s'applique plus dans le cas où les porteurs non thermalisés participent majoritairement au transport de charge comme dans certains matériaux très peu photoconducteurs, par exemple le niobate de lithium. Elle pourrait également être remise en question pour des matériaux organiques. La diffusion joue un rôle d'autant plus appréciable que le gradient de concentration d'électrons est notable, c'est-à-dire lorsque la répartition lumineuse présentera des fréquences spatiales élevées (enregistrement de figures d'interférence de petit pas).

\* L'entraînement par un champ électrique  $\vec{E}$  donne naissance à une densité de courant d'entraînement :

$$\vec{j}_E = \mu n e \vec{E} . \quad (2.11)$$

Le champ  $\vec{E}$  est le champ macroscopique interne dont une partie provient du champ de charge d'espace photoinduit dans le matériau. L'autre partie peut être due à une tension électrique appliquée aux bornes du matériau. Ce champ  $\vec{E}_0$  est souvent nommé "champ appliqué" bien qu'il corresponde en fait au champ interne dû à la différence de potentiel appliquée aux bornes du matériau. Dans les cristaux ferroélectriques et en régime impulsif, il faut éventuellement inclure dans le champ électrique, le champ pyroélectrique résultant de l'échauffement [42].

Dans le cas que nous allons considérer la mobilité est une constante et le courant d'entraînement sous champ est régi par la loi d'Ohm. Ce n'est plus exact à forts champs dans certains matériaux comme *GaAs*, *InP* ou *CdTe* qui présentent de l'effet Gunn [43]. Cependant cette approximation permet d'interpréter très facilement la plupart des expériences dans ces matériaux semi-conducteurs. Par contre elle s'avère totalement fautive pour les matériaux organiques polymères pour lesquels la dépendance de la mobilité avec le champ électrique doit absolument être prise en compte [24, 25, 37].

\* La photoexcitation des électrons peut donner lieu à un courant de diffusion anisotrope dans certains cristaux (très important dans *LiNbO3*, plus faible dans *BaTiO3*). Cet effet est appelé photovoltaïque ou également photogalvanique. Il semble également exister dans des matériaux organiques qui ont été polarisés sous de forts champs électriques [44]. La dissymétrie du matériau est suffisante pour orienter la migration des charges et pour faire naître un courant photovoltaïque. Ce courant dépend de la polarisation des ondes optiques. Il est proportionnel au produit tensoriel d'un tenseur d'ordre 3 avec  $\vec{E}^\omega \vec{E}^\omega$ . On a néanmoins pris l'habitude de décomposer ce produit tensoriel sous la forme de deux termes. Il s'écrit alors [45-47] :

$$\vec{j}_{ph} = \left[ [\beta^s] : \hat{e} \hat{e} + i [\beta^a] (\hat{e} \wedge \hat{e}^*) \right] I, \quad (2.12)$$

avec  $[\beta^s]$  le tenseur photovoltaïque symétrique d'ordre 3,  $[\beta^a]$  le tenseur photovoltaïque antisymétrique d'ordre 2,  $I$  l'intensité totale et  $\hat{e}$  le vecteur unitaire du champ électrique (équation (2.4)). Ces deux tenseurs photovoltaïques sont réels de sorte que le courant est également réel. Ils sont proportionnels au nombre de centres photoexcitables ( $N - N^i$ ). Il existe plusieurs définitions des constantes photovoltaïques, certaines sont normalisées par l'absorption et d'autres ne le sont pas. Grâce à cet effet photovoltaïque, il est possible d'inscrire des réseaux d'indice à partir d'une figure d'éclairement uniforme mais de polarisation modulée spatialement. Nous le montrerons au paragraphe 2.7.2.

Dans certains cas particuliers, cette expression peut se réduire à :

$$\vec{j}_{ph} = \alpha G I \hat{u}, \quad (2.13)$$

avec  $G$  une constante dite de Glass [11],  $\hat{u}$  un vecteur unitaire qui dépend de l'orientation des polarisations des faisceaux optiques et  $\alpha$  l'absorption proportionnelle à la densité en centres profonds conformément à la formule (2.9). Dans ce cas, l'effet photovoltaïque est équivalent à celui d'un champ "appliqué". Ce champ, dit photovoltaïque, peut atteindre  $E_{ph} = 100$  kV/cm dans le *LiNbO3* et pour de courtes longueurs d'onde (bleues). Nous reviendrons sur ces notions de champ photovoltaïque dans le paragraphe 2.7. La résolution des équations doit inclure les conditions aux limites; matériau avec des faces court-circuitées ou isolées [48].

En sommant toutes les contributions, nous obtenons le vecteur densité de courant :

$$\vec{J} = \vec{j}_E + \vec{j}_D + \vec{j}_{ph} = e n \mu \vec{E} + e D \vec{\text{grad}} n + \vec{j}_{ph}. \quad (2.14)$$

La mobilité  $\mu$ , dont dépend  $D$ , est a priori une matrice  $[\mu]$ . La résolution des équations en tenant compte de ce caractère matriciel ne soulève pas de difficulté supplémentaire pour une illumination quasi-périodique. Les surfaces équicharges étant des équipotentielles, le champ électrique  $\vec{E}$  est normal à ces surfaces même dans un milieu anisotrope (le lecteur peut s'en convaincre en développant l'équation de Maxwell  $\vec{\text{rot}} \vec{E} = \vec{0}$ ). Il est donc parallèle au

vecteur d'onde  $\vec{k}_r$  du réseau. Par symétrie, la densité  $n$  ne dépend également que de la coordonnée suivant ce vecteur d'onde. Les équations se résolvent alors en calculant la densité de courant suivant ce vecteur d'onde et en introduisant une mobilité effective définie par le produit matriciel suivant :

$$\mu_{eff} = \hat{k}_r^t [\mu] \hat{k}_r \text{ avec } \hat{k}_r = \vec{k}_r / \|\vec{k}_r\|. \quad (2.15)$$

Pour simplifier l'écriture des équations, nous omettons l'indice  $_{eff}$  à partir de maintenant.

### 2.3.4 Équation de continuité (conservation de la charge)

L'équation de conservation de la charge est valable dans tous les matériaux. Pour le schéma énergétique de la figure 2.a, elle s'écrit sans approximation :

$$\text{div } \vec{J} = -\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\left( -e \frac{\partial n}{\partial t} + e \frac{\partial N^i}{\partial t} \right), \quad (2.16)$$

soit,

$$\boxed{\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\text{div } \vec{J}}{e} + \frac{\partial N^i}{\partial t}} \quad (2.17)$$

### 2.3.5 Équation de Poisson

L'équation de Poisson s'écrit quel que soit le matériau :

$$\boxed{\text{div}(\epsilon_0 [\epsilon_s^r] \vec{E}) = -e [n + N_A - N^i]}, \quad (2.18)$$

avec  $[\epsilon_s^r]$  la matrice de permittivité relative statique.

Lorsqu'il n'existe pas de champ de charge d'espace (après une illumination uniforme par exemple), le matériau est électriquement neutre localement. Dans l'obscurité,  $n \approx 0$ , nous obtenons alors :  $N^i(I=0) = N_A$ . Si un champ électrique est inscrit dans le matériau, mais toujours dans l'obscurité, la neutralité électrique est assurée en moyenne spatiale sur tout le volume du matériau seulement et nous obtenons  $\langle N^i(I=0) \rangle = N_A$ . La charge électrique positive des centres profonds ionisés est compensée par la charge négative des accepteurs superficiels (près de la bande de valence).

Les coefficients de la matrice de permittivité peuvent être très différents les uns des autres. Par exemple dans le titanate de baryum nous avons  $\epsilon_{11} = \epsilon_{22} \approx 2000$  et  $\epsilon_{33} \approx 60$ . C'est la raison pour laquelle on introduit très souvent un coefficient de permittivité diélectrique effective lorsque le champ électrique est créé par un réseau quasi-périodique de charges. De même que pour la mobilité, nous introduisons une permittivité diélectrique effective en posant :

$$\text{div}(\epsilon_0 [\epsilon_s^r] \vec{E}) = \epsilon_0 \epsilon_{s,eff}^r \text{div}(\vec{E}) \text{ avec } \epsilon_{s,eff}^r = \hat{k}_r^t [\epsilon_s^r] \hat{k}_r. \quad (2.19)$$

Pour alléger les notations, nous omettons maintenant l'indice  $_{eff}$  mais il convient de ne pas oublier que la permittivité dépend de la direction du champ électrique.

Pour résoudre aisément les équations du modèle de transport de charge il serait souhaitable que les propriétés électriques du matériau ne dépendent pas du champ électrique que l'on cherche à calculer. Malheureusement ce n'est généralement pas vrai car les matériaux photoréfractifs sont presque toujours piézo-électriques ce qui fait que  $\epsilon_s^r$  dépend du module et de l'orientation du champ électrique. Nous montrerons néanmoins dans le chapitre 3 que, sous certaines conditions que nous définirons, on peut résoudre les équations sans tenir compte de



la dépendance de  $\varepsilon'_s$  avec le champ que l'on calcule, mais simplement en introduisant une correction à l'expression de  $\varepsilon'_s$  [49].

### 2.3.6 Résolution du système d'équations

Comme nous venons de le souligner, pour calculer le champ à l'intérieur du matériau il faudrait ajouter aux équations précédentes celles gouvernant l'évolution de la permittivité diélectrique  $\varepsilon'_s$ . Pour le moment, nous supposons que  $\varepsilon'_s$  est donnée. Le système d'équations (2.8), (2.14), (2.17) et (2.18) se résout en y introduisant l'expression de l'illumination donnée par exemple par l'équation (2.6) pour une illumination sinusoïdale.

Les équations du matériau sont non-linéaires car elles comportent des termes qui sont des produits de grandeurs modulées spatialement. Ainsi, pour un réseau d'interférence de nombre d'onde  $k_r$ , ces produits engendrent des harmoniques de nombres d'onde  $2k_r$ ,  $3k_r$ , etc. Le réseau d'indice n'est pas la réplique de la figure d'illumination et comporte des fréquences spatiales multiples. Il n'existe pas de solution analytique générale à ce système qui rende à la fois compte de l'évolution temporelle du champ de charge d'espace et de ces non-linéarités. Cependant, en faisant quelques approximations qui s'avéreront légitimes dans les applications, des solutions analytiques sont obtenues. Ces approximations conduisent de plus à des solutions simples qui permettent de visualiser facilement les phénomènes.

Dans un premier temps nous négligerons le courant photovoltaïque dans l'équation de conduction ce qui est justifié dans de très nombreux matériaux. Nous étudierons alors cinq de ces cas particuliers :

- détermination du champ de charge d'espace en régime stationnaire pour une figure d'illumination quelconque, en régime d'illumination faible et sans champ électrique appliqué ;
- détermination du champ de charge d'espace en régime stationnaire pour un réseau d'illumination de taux de modulation quelconque et en régime d'illumination faible ;
- détermination de la cinétique d'établissement du champ de charge d'espace pour un réseau d'illumination avec des faibles taux de modulation, en régime d'illumination faible et quasi-continue ;
- détermination de la cinétique d'établissement du champ de charge d'espace pour un réseau d'illumination avec des faibles taux de modulation, en régime d'illumination faible et quasi-continue avec le transport de charge qui s'effectue simultanément par des électrons et des trous ;
- description des phénomènes intervenant en régime d'excitation impulsionnelle.

Dans un second temps nous incluons l'effet photovoltaïque mais en négligeant le courant de diffusion.

### 2.3.7 Constantes de temps, champs et longueurs caractéristiques

Afin d'alléger les notations des paragraphes suivants nous introduisons maintenant des grandeurs caractéristiques de l'effet photoréfractif et du matériau considéré. Ces grandeurs, temps, longueurs et champs caractéristiques ne sont pas toutes indépendantes. Nous reviendrons sur leurs significations physiques.

#### 2.3.7.1 Temps caractéristiques

- La constante de temps de relaxation diélectrique (proportionnelle à  $1/I_0$ ) :

$$\tau_{di} = \varepsilon_0 \varepsilon'_s / (e \mu n_0), \quad (2.20)$$

avec  $n_0$  la valeur moyenne de la densité d'électrons dans la bande de conduction.

- La constante de temps de diffusion, temps mis par un électron pour migrer de  $\Lambda/2\pi$  sous l'effet de l'agitation thermique et en l'absence de tout champ électrique :

$$\tau_d = e/(k_r^2 \mu k_B T) = 1/(k_r \mu E_d) . \quad (2.21)$$

- La constante de temps d'entraînement dans le champ "appliqué" qui représente le temps mis par un électron pour se déplacer de  $\Lambda/2\pi$  sous l'effet du champ électrique "appliqué" :

$$\tau_E = 1/(k_r \mu E_0) . \quad (2.22)$$

- La constante de temps de recombinaison des électrons :

$$\tau_R = 1/(\gamma N_A) . \quad (2.23)$$

- Une constante de temps, sans nom défini, qui est proportionnelle à  $1/I_0$  :

$$\tau_l = 1/(s I_0 + \gamma n_0) . \quad (2.24)$$

### 2.3.7.2 Champs électriques caractéristiques

- Le champ de diffusion qui est le champ maximum que l'on peut photoinduire par agitation thermique :

$$E_d = k_r k_B T/e . \quad (2.25)$$

- Le champ maximum que l'on peut photoinduire dans le matériau en redistribuant au mieux les électrons dans les centres profonds :

$$E_q = e N_{eff}/(\epsilon_0 \epsilon_s' k_r) \text{ avec } N_{eff} = N_A(N - N_A)/N . \quad (2.26)$$

$N_{eff}$  est appelée la densité effective de centres.

### 2.3.7.3 Longueurs caractéristiques et leurs inverses

- La longueur de diffusion qui est la distance moyenne qui sépare le lieu d'excitation d'un électron et le lieu de sa recombinaison :

$$L = \frac{1}{\kappa} = \sqrt{\mu \frac{\tau_R k_B T}{e}} = \sqrt{\mu \tau_R \frac{E_d}{k_r}} . \quad (2.27)$$

- La longueur d'écran de Debye :

$$\ell_D = \frac{1}{k_D} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 \epsilon_s' k_B T}{N_{eff} e^2}} = \frac{1}{k_r} \sqrt{\frac{E_d}{E_q}} . \quad (2.28)$$

- La longueur :

$$\ell_E = \frac{1}{k_E} = \frac{k_B T}{e} \frac{1}{E_0} = \frac{1}{k_r} \frac{E_d}{E_0} . \quad (2.29)$$

## 2.4 Régime stationnaire, figure d'illumination quelconque, champ appliqué nul

### 2.4.1 Cas général

Nous allons présenter ici l'analyse effectuée dans la référence [50] qui complète celle de la référence [51]. De l'équation (2.17), nous déduisons que toutes les composantes de Fourier de la densité de courant qui sont modulées spatialement sont nulles à l'état stationnaire. Seule reste la composante uniforme. Celle-ci est également nulle du fait de l'absence de champ électrique appliqué au matériau ainsi que nous le montrerons au début du paragraphe 2.5.

À l'état stationnaire, les trois équations restantes (2.8), (2.14) et (2.18) se réduisent alors à :

$$\begin{cases} sI(N - N^i) = \gamma n N^i, \\ e n \vec{E} = -k_B T \vec{\text{grad}} n, \\ \text{div}(\epsilon_0 \epsilon_s' \vec{E}) = -e [n + N_A - N^i]. \end{cases} \quad (2.30)$$

Nous en déduisons immédiatement en extrayant la valeur de  $n$  obtenue à partir de la première équation de ce système et en l'introduisant dans la seconde :

$$\vec{E} = -\frac{k_B T}{e} \vec{\text{grad}} \left[ \ln \left( \frac{s I (N - N^i)}{\gamma N^i} \right) \right] = -\frac{k_B T}{e} \left( \vec{\text{grad}}(\ln(I)) - \frac{N}{N - N^i} \frac{\vec{\text{grad}}(N^i)}{N^i} \right). \quad (2.31)$$

Si de plus  $N^i \ll N$ , ce qui est très largement vérifié dans de nombreux matériaux, nous trouvons :

$$\vec{E} = -\frac{k_B T}{e} \left[ \vec{\text{grad}}(\ln(I)) - \frac{\vec{\text{grad}}(N^i)}{N^i} \right]. \quad (2.32)$$

Cette dernière hypothèse ne sert qu'à alléger les notations et peut être évitée [52].

Nous considérons que l'illumination est suffisamment faible pour que le champ de charge d'espace soit principalement induit par la redistribution des charges entre les centres profonds. On peut alors négliger la contribution due aux électrons dans la bande de conduction. Ceci revient à négliger  $n$  devant  $|N_A - N^i|$  dans l'équation de Poisson. Nous obtenons :

$$N^i = \frac{\epsilon_0 \epsilon_s^r}{e} \text{div}(\vec{E}) + N_A. \quad (2.33)$$

En réinjectant cette expression dans celle du champ, nous avons :

$$\vec{E} - \frac{k_B T}{e} \frac{\vec{\text{grad}}(\text{div}(\vec{E}))}{k_D^2 \frac{k_B T}{e} + \text{div}(\vec{E})} = -\frac{k_B T}{e} \vec{\text{grad}}(\ln(I)), \quad (2.34)$$

avec  $k_D$  l'inverse de la longueur d'écran de Debye du matériau (équation 2.28).

La formule (2.34) est très générale. Elle peut encore être simplifiée en supposant que sur une distance égale à la longueur d'écran de Debye, la variation du champ de charge d'espace  $\text{div}(\vec{E})/k_D$  est faible par rapport à  $k_D k_B T/e$ . Nous verrons plus loin que  $k_D k_B T/2e$  représente la valeur maximale du champ de charge d'espace qui peut être photoinduite sans champ appliqué. Cette approximation est donc le plus souvent largement justifiée. L'équation (2.34) se réduit alors à :

$$\vec{E} - \frac{1}{k_D^2} \vec{\text{grad}}(\text{div}(\vec{E})) = -\frac{k_B T}{e} \vec{\text{grad}}(\ln(I)). \quad (2.35)$$

Le rotationnel d'un champ électrostatique est nul. Le terme  $\vec{\text{grad}}(\text{div}(\vec{E}))$  se réduit donc à un laplacien. En appliquant aux deux membres de cette équation la transformée de Fourier suivante,

$$TF(\vec{A}(\vec{r})) = \iiint_{\vec{r}} \vec{A}(\vec{r}) \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}) d^3\vec{r}, \quad (2.36)$$

nous obtenons,

$$\left( 1 + \frac{k^2}{k_D^2} \right) TF(\vec{E}) = -\frac{k_B T}{e} TF(\vec{\text{grad}}(\ln(I))). \quad (2.37)$$

Si l'illumination ne varie que suivant la dimension  $x$  et, sachant que  $TF(\exp(-a|x|)) = 2a/(a^2 + k^2)$ , nous trouvons par transformée de Fourier inverse :

$$\vec{E} = -\frac{k_B T}{e} \frac{k_D}{2} \vec{\text{grad}}(\ln(I)) \otimes \exp(-k_D|x|). \quad (2.38)$$

Le signe  $\otimes$  représente le produit de convolution et le gradient se réduit à une dérivée par rapport à  $x$ . Les problèmes à deux dimensions sont traités dans la référence [52].

Cette expression (2.38) décrit la dépendance du champ de charge d'espace en fonction de l'illumination. Nous voyons que le champ de charge d'espace ne reproduit pas la figure d'illumination à cause du terme en gradient. De plus la convolution montre comment les détails de dimensions inférieures à la longueur d'écran de Debye sont gommés.

#### 2.4.2 Cas des réseaux sinusoïdaux

L'expression (2.38) peut s'employer pour des figures d'illumination quelconques. En particulier, elle peut s'utiliser pour des réseaux d'illumination tels que ceux décrits par la formule (2.7). On obtient immédiatement :

$$E = \frac{k_r k_B T}{e} \frac{m \sin(k_r x + \psi_{1-2})}{(1 + m \cos(k_r x + \psi_{1-2}))} \otimes \frac{k_D}{2} \exp(-k_D |x|). \quad (2.39)$$

Pour des taux de modulation  $m$  faibles devant 1, le champ est sinusoïdal. La convolution par  $0,5 k_D \exp(-k_D |x|)$  se réduit à une multiplication par une Lorentzienne  $1/(1 + k_r^2/k_D^2)$ . Le champ est maximum pour un  $k_r = k_D$ . Pour  $k_r < k_D$ , i.e. pour des grands pas, le champ est plus faible car le gradient responsable de la création du champ par diffusion diminue. Pour des plus petits pas, c'est la densité de pièges photoréfractifs qui limite le champ maximum. En effet la valeur moyenne sur tout le cristal de la densité de centres ionisés est telle que  $\langle N^i(x, y, z) \rangle = N_A$ . Un réseau sinusoïdal de charge tel que  $N^i(x) = N_{\max}^i \sin(k_r x)$  a donc son amplitude bornée par  $N_{\max}^i \leq N_A$ . D'après l'équation de Poisson la densité de centres profonds limite donc le champ de charge d'espace aux petits pas. Nous retrouverons ces résultats usuels plus loin lors de la résolution du système d'équations du matériau par un développement limité.

L'équation (2.39) montre également que pour  $m$  faible devant 1 on enregistre bien un champ de charge d'espace qui est la réplique du réseau d'illumination à un déphasage de  $\pi/2$  près (changement de cosinus en sinus). Les réseaux d'ordres supérieurs (i.e. de nombres d'onde  $2k_r$ ,  $3k_r$ , etc.) induits par un taux de modulation  $m$  fort, sont analysés plus en détail dans la référence [52]. Nous y reviendrons dans le paragraphe suivant avec  $k_D = \infty$ .

### 2.5 Régime stationnaire, illumination périodique, taux de modulation et champ appliqué quelconques

Suite à notre discussion du début du paragraphe 2.3.6 et également d'après les calculs du paragraphe 2.4 (équation (2.39)), nous savons que pour des taux de modulation quelconques, la figure de champ n'est pas sinusoïdale. Nous allons donc résoudre le système d'équations (2.8), (2.14), (2.17), (2.18) en notations réelles avec la figure d'illumination exprimée par l'équation (2.7). Le vecteur d'onde  $\vec{k}_r$  de la figure d'interférence est suivant l'axe  $\hat{x}$ . Dans cette analyse [18], nous supposons que les centres profonds sont peu dépeuplés, soit  $|N^i - N_A| \ll N_A$ , ce qui nous permet de poser  $N^i \approx N_A$ . Dans ces conditions nous ne pourrions pas prévoir et expliquer la limitation due à la saturation des centres profonds qui intervient à petit pas. La prise en compte de cette limitation n'a été faite qu'avec une approche phénoménologique [53] ou en résolvant numériquement le jeu d'équations [54-56]. Cette hypothèse des centres peu dépeuplés devra être vérifiée a posteriori en calculant  $N^i$ , en injectant la valeur trouvée pour le champ de charge d'espace dans l'équation de Poisson.

Les équations (2.8), (2.14) et (2.17) deviennent en régime stationnaire :

$$\begin{cases} s I (N - N_A) = \gamma n N_A, \\ J = e n \mu E + \mu k_B T \partial n / \partial x, \\ \partial J / \partial x = 0. \end{cases} \quad (2.40)$$

Le champ  $E$  peut tenir compte d'un éventuel champ électrique  $\vec{E}_0$  appliqué au cristal dans la direction de  $\vec{k}_r$  (c'est-à-dire de l'axe  $\hat{x}$ ). Si  $\vec{E}_0$  est uniforme dans le matériau alors nous avons :

$$E_0 L = \int_0^L E dx , \quad (2.41)$$

avec  $L$  la dimension du cristal selon  $\vec{k}_r$ .

En combinant entre elles les deux premières équations du système (2.40) nous obtenons :

$$E = \frac{J}{e \mu n_0 (1 + m \cos(k_r x))} + \frac{k_B T}{e} \frac{m k_r \sin(k_r x)}{(1 + m \cos(k_r x))} , \quad (2.42)$$

avec  $n_0 = s I_0 (N - N_A) / (\gamma N_A)$  et en choisissant correctement l'origine des phases pour que  $\psi_{1-2} = 0$ . Cette équation n'est bien sûr valable que si  $m \neq 1$ , donc  $m < 1$  [56].

$J$  se déduit par l'intégration de l'équation (2.42) sur un grand nombre de franges de sorte que l'intégrale de la fonction impaire, second terme du membre de droite, s'annule. En tenant compte de (2.41) nous obtenons :

$$J = E_0 e \mu n_0 \sqrt{1 - m^2} , \quad (2.43)$$

ce qui nous donne en reportant dans (2.40) l'expression finale du champ électrique total  $E$ ,

$$E = \frac{E_0 \sqrt{1 - m^2}}{1 + m \cos(k_r x)} + \frac{E_d m \sin(k_r x)}{1 + m \cos(k_r x)} , \quad (2.44)$$

$E_d$  étant le champ de diffusion défini par l'équation (2.25).

Le champ de charge d'espace photoinduit étant  $E_{1,r} = E - E_0$ , il s'exprime par :

$$\begin{aligned} E_{1,r} &= \left[ \frac{\sqrt{1 - m^2}}{1 + m \cos(k_r x)} - 1 \right] E_0 + E_d \frac{m \sin(k_r x)}{1 + m \cos(k_r x)} \\ &= -2\sqrt{E_0^2 + E_d^2} \sum_{j=1}^{\infty} p^j \cos(j k_r x + \varphi) . \end{aligned} \quad (2.45)$$

La modulation réduite  $p$  et le déphasage  $\varphi$  s'expriment par :

$$p = \left( \sqrt{1 - m^2} - 1 \right) / m \quad \text{et} \quad \text{tg}(\varphi) = E_d / E_0 . \quad (2.46)$$

Le champ induit  $E_{1,r}$ , et par suite la modulation d'indice, sont très fortement non sinusoïdaux pour des taux de modulation forts. Cette non-linéarité a été mise à profit pour enregistrer des réseaux de fréquences spatiales différentes de celles de la figure d'interférence [57]. Un développement similaire à (2.45) peut également être obtenu en se plaçant dans les hypothèse du paragraphe 2.4 c'est-à-dire en considérant  $E_d \neq 0$  mais  $E_0 = 0$  [52].

Pour des taux de modulation faibles devant 1,  $E_{1,r}$  devient sinusoïdal et l'équation (2.45) se réduit à :

$$E_{1,r} = m (E_d \sin(k_r x) - E_0 \cos(k_r x)) . \quad (2.47)$$

Cette équation est celle qui sera obtenue dans l'étude du paragraphe suivant (modulation faible) lorsque l'on restera loin de la saturation.

L'expression du champ de charge d'espace de la formule (2.47) pour un champ appliqué nul,

$$E_{1,r} = +m E_d \sin(k_r x) , \quad (2.48)$$

diffère de la formule obtenue à partir de l'équation (2.39) en faisant  $m \ll 1$  par l'absence du facteur  $1/(1 + k_r^2/k_D^2)$ . Cela provient de ce que pour l'analyse ayant conduit à (2.47) nous sommes partis de l'hypothèse  $|N^i - N_A| \ll N_A$ . Nous ne pouvons donc pas voir sur (2.47) la saturation due aux centres profonds qui est exprimée par ce facteur  $1/(1 + k_r^2/k_D^2)$ .

La formule (2.45) montre également que l'ordre 1 du champ de charge d'espace est proportionnel au double  $2p$  de la modulation réduite  $p$ . Afin de voir quand l'approximation du champ proportionnel à  $m$  est valable (i.e. pour définir le domaine d'utilisation de la formule (2.47), nous avons tracé sur la figure 4 le double du taux de modulation réduite en fonction de  $m$ . On s'aperçoit que l'approximation des faibles taux de modulation est encore valable jusqu'à  $m \approx 0,6$ . Cette approximation des faibles taux de modulation est beaucoup plus restrictive dans le cas, non considéré dans ce paragraphe, d'une figure d'illumination non-stationnaire ainsi que montré par des simulations numériques dans la référence [55] ou par une approche plus phénoménologique dans [53].

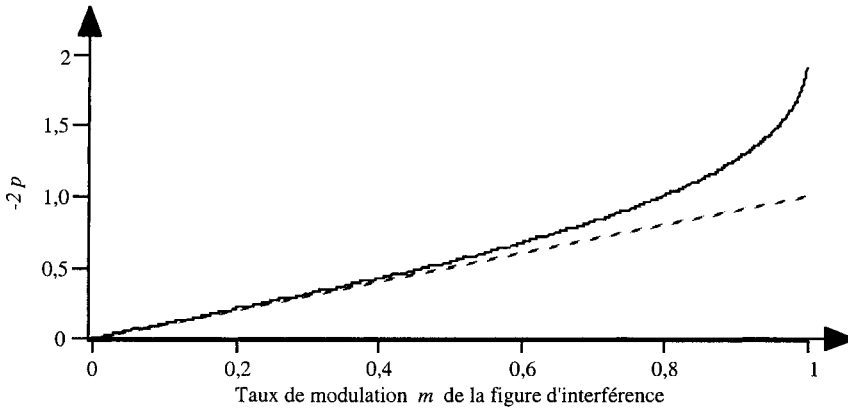


Figure 4 : Double du taux de modulation réduite en fonction du taux de modulation de la figure d'interférence. La droite en pointillés représente ce taux  $m$ .

## 2.6 Détermination de la cinétique du champ de charge d'espace induit, illumination sinusoïdale de taux modulation faible

### 2.6.1 Linéarisation des équations

La cinétique du champ de charge d'espace ne peut pas être obtenue analytiquement sauf en supposant que le taux de modulation de la figure d'interférence est faible. On peut trouver dans la littérature diverses tentatives pour résoudre cet aspect temporel pour des forts taux de modulation [55, 58]. Fort heureusement, dans de nombreuses expériences le taux de modulation de la figure d'interférence est faible. Par exemple les matériaux photoréfractifs sont souvent utilisés pour des expériences dans lesquelles on désire que la variation d'indice induite soit proportionnelle à l'amplitude du faisceau signal incident. Si la figure d'intensité est produite par interférence entre une onde signal et une onde de référence, il faut que l'intensité de l'onde de référence soit bien supérieure à celle de l'onde signal ce qui conduit bien à  $m \ll 1$ .

Le système d'équations (2.8), (2.14), (2.17), (2.18) peut être résolu [14, 15] en y introduisant l'expression de l'illumination donnée par l'équation (2.6) et à l'aide d'un développement en série de Fourier de chacune des grandeurs  $n$ ,  $N^i$ ,  $E$ ,  $J$  sous la forme (série à coefficients complexes) :

$$x = x_0 + \sum_{q>0} \frac{1}{2} [x_q e^{+iqk_r x} + x_{-q} e^{-iqk_r x}] \quad \text{avec} \quad x_q^* = x_{-q}. \quad (2.49)$$

Il n'existe pas de solution analytique générale et les développements aux ordres plus élevés nécessitent des résolutions numériques lourdes. Néanmoins, ainsi que nous venons de le voir, pour des taux de modulation faibles devant 1 le champ de charge d'espace photoinduit est sinusoïdal. Pour  $m \ll 1$  nous pouvons donc ne tenir compte que des termes d'ordres zéro

et un en nombre d'onde  $k_r$ . Les équations sont alors linéarisables [19, 20] ce qui justifie pleinement l'utilisation de la notation complexe. Nous posons donc :

$$\begin{cases} N^i(x,t) = N_0^i(t) + 0,5[N_1^i(t)e^{ik_r x} + cc], \\ n(x,t) = n_0(t) + 0,5[n_1(t)e^{ik_r x} + cc], \\ J(x,t) = J_0(t) + 0,5[J_1(t)e^{ik_r x} + cc], \\ E(x,t) = E_0(t) + 0,5[E_1(t)e^{ik_r x} + cc]. \end{cases} \quad (2.50)$$

Nous allons reporter ces expressions dans les équations (2.8), (2.14), (2.17), (2.18) et séparer les termes non modulés (ordre "0") de ceux modulés spatialement (ordre "1").

### 2.6.1.1 Résolution à l'ordre zéro

Nous trouvons :

$$(2.17) \Rightarrow \partial n_0 / \partial t = \partial N_0^i / \partial t \text{ car } \text{div } \vec{J}_0 = 0 \text{ (} \vec{J}_0 \text{ n'est pas modulé spatialement) ,} \quad (2.51)$$

$$(2.14) \Rightarrow J_0 = n_0 e \mu E_0 , \quad (2.52)$$

$$(2.18) \Rightarrow N_0^i = n_0 + N_A \text{ car } \text{div } \vec{E}_0 = 0 . \quad (2.53)$$

En remplaçant dans (2.8), on obtient l'équation d'évolution de la partie non modulée spatialement de la densité de porteurs libres :

$$(2.8) \Rightarrow \boxed{\frac{\partial N_0^i}{\partial t} = \frac{\partial n_0}{\partial t} = s I_0 (N - n_0 - N_A) - \gamma n_0 (n_0 + N_A)} . \quad (2.54)$$

### 2.6.1.2 Résolution à l'ordre 1

À partir des quatre mêmes équations nous obtenons :

$$(2.8) \Rightarrow \frac{\partial N_1^i}{\partial t} = s M I_0 (N - n_0 - N_A) - \gamma n_1 (n_0 + N_A) - s I_0 N_1^i - \gamma n_0 N_1^i , \quad (2.55)$$

$$(2.14) \Rightarrow J_1 = e n_1 \mu E_0 + e n_0 \mu E_1 + i e n_1 \mu E_d , \quad (2.56)$$

$$(2.17) \Rightarrow \frac{\partial n_1}{\partial t} = \frac{\partial N_1^i}{\partial t} + \frac{i k_r}{e} J_1 , \quad (2.57)$$

La dernière équation nous donne :

$$(2.18) \Rightarrow \boxed{N_1^i = \frac{i k_r}{e} \epsilon_0 \epsilon_s^r E_1 + n_1} . \quad (2.58)$$

On élimine successivement les densités de courant  $J_1$  et de centres  $N_1^i$  et l'on obtient les équations d'évolution du champ et de la densité modulée de charge. Ces équations sont couplées :

$$\boxed{\frac{\partial n_1}{\partial t} = s M I_0 (N - n_0 - N_A) - \left( \frac{i k_r}{e} \epsilon_0 \epsilon_s^r E_1 + n_1 \right) (\gamma n_0 + s I_0) - \gamma n_1 (n_0 + N_A) + i k_r [n_0 \mu E_1 + n_1 \mu (E_0 + i E_d)]} , \quad (2.59)$$

$$\boxed{\frac{\partial E_1}{\partial t} = - \frac{e \mu}{\epsilon_0 \epsilon_s^r} [n_1 (E_0 + i E_d) + n_0 E_1]} . \quad (2.60)$$

Les équations (2.59) et (2.60) constituent le système d'équations couplées qu'il faut résoudre. Une solution générale requiert une résolution numérique tenant compte de la variation temporelle de l'illumination. C'est ce que nous ferons en régime d'excitation impulsionnelle. Cependant une solution analytique peut être obtenue dans le cadre des approximations adiabatique et des faibles illuminations.

## 2.6.2 Approximation des faibles illuminations et approximation adiabatique

### 2.6.2.1 Cinétique du champ de charge d'espace

Nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation des faibles illuminations pour laquelle la densité de charges  $n_0$  dans la bande reste très inférieure à  $N^i(I=0) = N_A$  et à  $N - N_A$ . La solution de l'équation (2.54) à une marche d'intensité est immédiate :

$$n_0(t) = s I_0 (N - N_A) \tau_R (1 - e^{-t/\tau_R}). \quad (2.61)$$

Cette loi de variation mono-exponentielle peut être vérifiée en étudiant le courant engendré lors de l'éclairement du matériau sous champ électrique. L'expression du courant est donnée par l'équation (2.52).

Cette expression (2.61) montre que l'approximation des faibles illuminations n'est pas très restrictive. En effet la constante de temps de recombinaison  $\tau_R$  est inférieure à la nanoseconde pour les matériaux tels que  $LiNbO_3$ ,  $BaTiO_3$ . Elle est généralement de l'ordre de la dizaine de microsecondes pour les échantillons de sillenites mais atteint parfois quelques millisecondes. Ainsi, compte tenu des valeurs habituelles des absorptions, cette approximation reste valable dans les échantillons de  $BaTiO_3$  jusqu'à des intensités de l'ordre du MW.cm<sup>-2</sup>. Elle est bien sûr plus restrictive pour des échantillons de sillenites.

Nous nous plaçons en plus dans l'approximation adiabatique en supposant que les variations temporelles des termes modulés spatialement sont lentes devant celles des termes non modulés spatialement. Dans la résolution des équations à l'ordre 1, on considérera donc que les termes d'ordre zéro ( $n_0$ ,  $E_0$ ,  $I_0$ ) sont indépendants du temps. Seule change la modulation de la figure d'interférence  $M(t)$  et donc  $n_1(t)$  et  $E_1(t)$ . Cette approximation est valable dans la plupart des applications. Avec cette approximation adiabatique, l'approximation des faibles illuminations peut se mettre sous la forme :

$$s I_0 \ll \gamma N_A \text{ et } n_0 \ll N_A. \quad (2.62)$$

Pour la résolution à l'ordre 1,  $n_0$  et  $E_0$  étant constants, nous avons uniquement un système à 2 équations linéaires (2.59) et (2.60) couplées à résoudre. Nous utilisons les définitions des temps caractéristiques données dans le paragraphe 2.3.7. En dérivant (2.60) par rapport au temps et en remplaçant dans (2.59) nous obtenons en tenant compte de (2.62) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 E_1}{\partial t^2} + \frac{\partial E_1}{\partial t} \left( \frac{-i}{\tau_E} + \frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_d} \right) + E_1 \left( \frac{-i}{\tau_E \tau_l} + \frac{1}{\tau_d \tau_l} + \frac{1}{\tau_R \tau_{di}} \right) \\ = - \frac{s M I_0}{\epsilon_0 \epsilon_s'} e \mu (E_0 + i E_d) (N - N_A). \end{aligned} \quad (2.63)$$

Nous notons  $M E_{sc} e^{+i\varphi}$  la valeur de l'amplitude du champ de charge d'espace à l'état stationnaire, a priori complexe (i.e. le champ réel est déphasé, c'est-à-dire décalé spatialement par rapport à la figure d'interférence). L'équation (2.63) peut alors s'écrire :

$$\boxed{\frac{\partial^2 E_1}{\partial t^2} + \left( \frac{1}{\tau_+} + \frac{1}{\tau_-} \right) \frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{1}{\tau_+ \tau_-} (E_1 - M E_{sc} e^{+i\varphi}) = 0,} \quad (2.64)$$

où  $\tau_+$  et  $\tau_-$  sont les constantes de temps, en général complexes, d'évolution du champ. Elles sont définies par :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{1}{\tau_{\pm}} &= \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{\tau_1} \pm \left( \frac{1}{\tau_1^2} - \frac{4}{\tau_2^2} \right)^{1/2} \right] \text{ avec,} \\ \frac{1}{\tau_1} &= \frac{1}{\tau_+} + \frac{1}{\tau_-} = \frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E}, \\ \frac{1}{\tau_2^2} &= \frac{1}{\tau_+ \tau_-} = \frac{1}{\tau_R \tau_{di}} + \frac{1}{\tau_l \tau_d} - \frac{i}{\tau_l \tau_E}. \end{aligned} \right. \quad (2.65)$$



Il est important de noter que l'équation (2.64) reste valable même si le taux de modulation  $M(t)$  varie dans le temps.

### 2.6.2.2 Valeur du champ de charge d'espace en régime stationnaire

De (2.63), en prenant les notations des champs caractéristiques (paragraphe (2.3.7)), nous trouvons :

$$M E_{sc} e^{i\varphi} = -M \frac{E_q (E_0 + i E_d)}{E_q + E_d - i E_0}, \quad (2.66)$$

avec,

$$E_{sc} = E_q \sqrt{\frac{E_0^2 + E_d^2}{E_0^2 + (E_d + E_q)^2}}, \quad (2.67)$$

$$\begin{cases} \sin \varphi = -\frac{E_0^2 + E_d (E_d + E_q)}{(E_0^2 + E_d^2)^{1/2} [(E_d + E_q)^2 + E_0^2]^{1/2}}, \\ \cos \varphi = \frac{-E_0 E_q}{(E_0^2 + E_d^2)^{1/2} [(E_d + E_q)^2 + E_0^2]^{1/2}}. \end{cases} \quad (2.68)$$

Le champ à l'intérieur du matériau est la somme du champ appliqué et du champ de charge d'espace. En repassant en notations réelles, nous obtenons le champ en régime permanent :

$$E(\infty, x) = E_0 + 0,5(E_1 e^{ik_r x} + cc) = E_0 + m E_{sc} \cos(k_r x + \varphi + \psi_{1-2}). \quad (2.69)$$

À l'état stationnaire le champ de charge d'espace sous forme réelle s'écrit donc :

$$E_{1,r} = m E_{sc} \cos(k_r x + \varphi + \psi_{1-2}). \quad (2.70)$$

### 2.6.2.3 Remarques sur le champ de charge d'espace à l'état stationnaire

i) Au sein d'une même classe de matériaux, possédant le même tenseur de permittivité diélectrique, la valeur de  $E_{1,r}$  ne dépend que d'un seul paramètre de l'échantillon, la densité de centres  $N_{eff}$ .

ii) Elle dépend également de deux paramètres expérimentaux, le vecteur réseau (par l'intermédiaire du champ de diffusion) et le champ électrique appliqué au matériau.

iii) Elle ne dépend pas de la valeur de l'illumination mais seulement du taux de modulation  $M$ . Ce n'est vrai que parce que l'on a négligé la conductivité dans le noir par rapport à la photoconductivité. Pour rendre compte de la conductivité dans le noir, il faut multiplier le résultat par  $I_0/(I_0 + \beta/s)$  (voir paragraphe 2.3.2). La prise en compte de modèles énergétiques plus complexes (avec un centre profond sous trois états de valence, avec plusieurs centres, etc.), conduit également à une dépendance du champ de charge d'espace avec l'intensité [31-36].

iv) En l'absence de champ extérieur, la courbe  $E_{1,r}$  en fonction du pas du réseau présente deux régions distinctes : aux petits pas on est limité par le champ maximum  $E_q$ , et aux grands pas la limite est le champ de diffusion (les électrons ne possèdent pas assez d'énergie thermique pour créer un champ plus grand que  $E_d$ ). Avec un champ appliqué au matériau, la limite  $E_q$  subsiste mais on peut forcer les électrons à remonter un champ plus grand que  $E_d$  (au plus égal à  $\sqrt{E_0^2 + E_d^2}$ ). Aux grands pas, on est alors limité par le plus petit de  $\sqrt{E_0^2 + E_d^2}$  ou  $E_q$ . On a donc la représentation schématique de la figure 5.

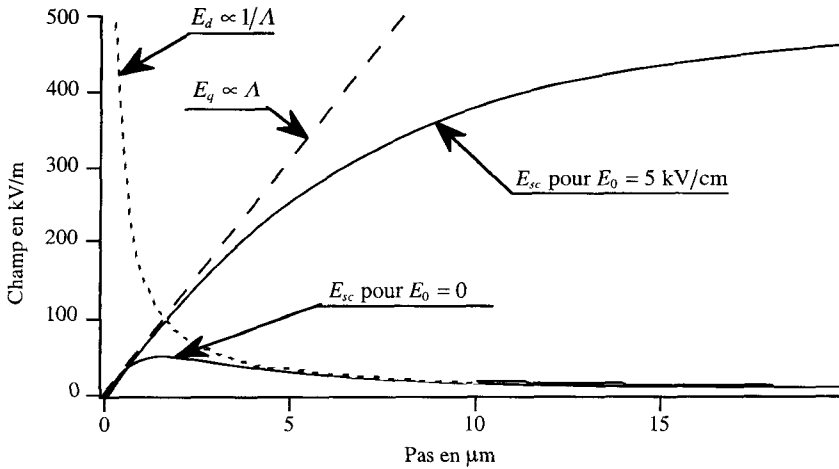


Figure 5 : Figure tracée pour un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  avec  $N_A = 10^{21} \text{ m}^{-3}$ .

v) Pour  $E_0 = 0$ , le réseau  $E_d$  est déphasé de  $\varphi = -\pi/2$  par rapport au réseau d'illumination, c'est-à-dire décalé de  $1/4$  de frange. En effet les charges libres migrent de façon isotrope; le réseau inscrit dans les centres profonds est en phase avec le réseau d'illumination. Le réseau de champ est donc déphasé de  $-\pi/2$  comme le montre l'équation de Poisson. Un champ appliqué modéré brise cette symétrie et le module de la phase diminue. Par contre pour un champ appliqué très fort les charges migrent de plusieurs franges et se recombinaient aléatoirement, le déphasage de  $-\pi/2$  est donc restitué. La courbe  $\varphi$  en fonction de  $E_0$  a donc l'allure montrée sur la figure 6.

Le déphasage  $\varphi$  est un paramètre extrêmement important pour les expériences de couplage d'ondes. Nous verrons l'influence de la valeur de ce paramètre lors de la description de ces expériences.

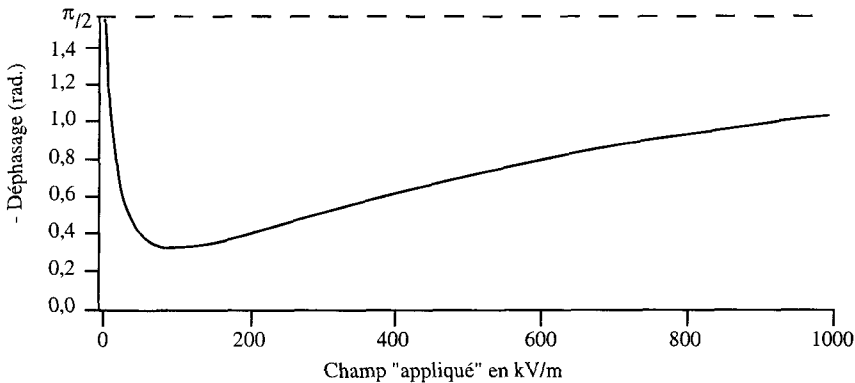


Figure 6 : Déphasage en fonction du champ appliqué pour un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  avec  $N_A = 10^{21} \text{ m}^{-3}$  et un pas de  $10 \mu\text{m}$ .

#### 2.6.2.4 Régime transitoire

Afin d'interpréter facilement la signification des deux constantes de temps, nous choisissons une illumination suffisamment faible de sorte que  $\tau_1$ , qui est proportionnelle à  $1/I_0$ , devienne

grande devant  $\tau_+$  (partie imaginaire et partie réelle de  $1/\tau_+$  grandes devant les parties imaginaire et réelle de  $1/\tau_-$ ). On peut alors réécrire l'équation (2.64) selon :

$$\frac{\partial^2 E_1}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_+} \left[ \frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{1}{\tau_-} (E_1 - M E_{sc} e^{i\varphi}) \right] = 0, \quad (2.71)$$

avec maintenant,

$$\begin{cases} \frac{1}{\tau_+} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_d} + \frac{1}{\tau_{di}} - \frac{i}{\tau_E} = \frac{1}{\tau'} + i\omega', \\ \frac{1}{\tau_-} = \frac{\tau_{di}\tau_R}{1 + \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E}} = \frac{1}{\tau_e} + i\omega_e. \end{cases} \quad (2.72)$$

Le champ  $E_1$  comporte une composante rapide qui oscille à une fréquence  $1/\tau_E$  directement liée à la mobilité des charges [59, 60]. Cette oscillation s'amortit avec une constante de temps de  $\tau'$ . L'existence de deux constantes de temps provient de ce que le champ de charge d'espace  $E_1$  résulte de la superposition d'un champ provenant de la modulation spatiale dans les centres profonds  $E_1^{ion}$  et d'un champ dû à la modulation spatiale des porteurs de charge  $E_1^{cc}$  :

$$E_1 = E_1^{ion} + E_1^{cc}. \quad (2.73)$$

Ce champ est relié à la population électronique par la relation de Poisson :

$$ik_r \varepsilon_0 \varepsilon_s' E_1^{cc} = -e n_1. \quad (2.74)$$

Afin d'estimer les ordres de grandeur respectifs de ces deux champs, nous résolvons l'équation (2.71) en cherchant la réponse du système à la "marche" de modulation suivante :

$$\begin{cases} t < 0 & M = 0 \\ t > 0 & M \neq 0 \end{cases} \quad \text{ou} \quad \begin{cases} t < 0 & M \neq 0, \\ t > 0 & M = 0, \end{cases} \quad (2.75)$$

Nous obtenons :

$$E_1(t) = A \exp(-t/\tau_+) + B \exp(-t/\tau_-) + M E_{sc} \exp(i\varphi), \quad (2.76)$$

et

$$E_1^{cc} = -\frac{1}{\frac{\tau_{di}}{\tau_d} - \frac{i\tau_{di}}{\tau_E}} \left[ A \left( 1 - \frac{\tau_{di}}{\tau_+} \right) e^{-t/\tau_+} + B \left( 1 - \frac{\tau_{di}}{\tau_-} \right) e^{-t/\tau_-} + M E_{sc} e^{i\varphi} \right]. \quad (2.77)$$

Les deux constantes complexes  $A$  et  $B$  sont calculées à partir des conditions de continuité à  $t = 0$ . Nous trouvons :

$$\|A/B = -\tau_+/\tau_-\| \ll 1. \quad (2.78)$$

Le premier terme de l'équation (2.76) est donc faible par rapport au second et décroît beaucoup plus rapidement. Il sera donc négligeable dans une expérience de ce type (i.e. marche de modulation). On peut montrer que cette approximation équivaut à poser  $\partial n_1/\partial t = 0$  dans l'équation (2.57) et à négliger  $n_1$  devant  $N_1$  (donc à négliger le réseau de champ dû aux électrons devant le réseau de champ dû aux centres profonds). Cette approximation est souvent appelée approximation du régime d'excitation quasi-continue.

Nous verrons dans le chapitre 5 que l'application d'un champ alternatif de haute fréquence augmente de façon importante le rapport  $A/B$  [61-63] et conduit à l'obtention de champs de charge d'espace de valeurs plus importantes. Néanmoins, pour la plupart des expériences, ce rapport est usuellement très faible.

### 2.6.2.5 Approximation du régime d'excitation quasi-continue

Cette approximation du régime d'excitation quasi-continue, qui se rajoute à l'approximation adiabatique et à l'approximation des faibles illuminations, correspond au régime de fonctionnement d'un très grand nombre de montages. On pourrait directement résoudre les équations du modèle de transport de charge avec cette hypothèse supplémentaire ce qui nous aurait amené plus rapidement à la solution suivante. Ici, nous repartons de l'équation (2.71) qui se réduit, avec cette approximation supplémentaire, à une équation différentielle complexe du premier ordre :

$$\boxed{\frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{1}{\tau_-} (E_1 - M E_{sc} e^{+i\varphi}) = 0}, \quad (2.79)$$

L'état stationnaire est le même que précédemment.

La constante  $\tau_{di}$  est inversement proportionnelle à  $n_0$  (équation (2.20)) et donc à  $I_0$  (équation (2.61)). Elle est généralement telle que  $1/\tau_{di} \ll 1/\tau_R, 1/\tau_d$ , ce qui nous permet d'écrire :

$$\frac{1}{\tau_-} = \frac{1}{\tau_{di}} \frac{1 + \frac{\tau_R \tau_{di}}{\tau_I} \left( \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right)}{1 + \tau_R \left( \frac{1}{\tau_d} - \frac{i}{\tau_E} \right)} = \frac{1}{\tau_e} + i\omega_e. \quad (2.80)$$

Avec les notations des temps caractéristiques, paragraphe 2.3.7, nous avons :

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{1}{\tau_e} &= \frac{1}{\tau_{di}} \frac{\left(1 + \frac{\tau_R}{\tau_d}\right) \left(1 + \frac{\tau_{di} \tau_R}{\tau_d \tau_I}\right) + \left(\frac{\tau_R}{\tau_E}\right)^2 \frac{\tau_{di}}{\tau_I}}{\left[ \left(1 + \frac{\tau_R}{\tau_d}\right)^2 + \left(\frac{\tau_R}{\tau_E}\right)^2 \right]}, \\ \omega_e &= \frac{1}{\tau_{di}} \frac{\left(\tau_R / \tau_E\right) \left(1 - \frac{\tau_{di}}{\tau_I}\right)}{\left[ \left(1 + \frac{\tau_R}{\tau_d}\right)^2 + \left(\frac{\tau_R}{\tau_E}\right)^2 \right]}. \end{aligned} \right. \quad (2.81)$$

Nous pouvons également réécrire ces équations de façon équivalente avec les notations en longueurs caractéristiques :

$$\left\{ \begin{aligned} \tau_e &= \tau_{di} \frac{k_D^2 \left( (k_r^2 + \kappa^2)^2 + (k_r k_E)^2 \right)}{\kappa^2 \left( k_r^2 + k_D^2 \right) \left( k_r^2 + \kappa^2 \right) + (k_r k_E)^2}, \\ \omega_e &= \frac{1}{\tau_{di}} \frac{\kappa^2 \left( k_D^2 - \kappa^2 \right) k_r k_E}{k_D^2 \left( \kappa^2 + k_r^2 \right)^2 + (k_r k_E)^2}. \end{aligned} \right. \quad (2.82)$$

Ces expressions font apparaître ce qui est lié au matériau ou à l'expérience. Dans une même classe de matériaux, i.e. possédant le même tenseur de permittivité diélectrique, la cinétique du champ de charge d'espace dépend de deux paramètres du milieu : de  $E_q$  ou ce qui revient au même de  $\ell_d$  ou de  $N_{eff}$ , et de  $L$  la longueur de diffusion qui n'entrait pas en compte pour l'état stationnaire. Elle dépend aussi de trois paramètres expérimentaux,  $\Lambda$  le pas du réseau induit,  $E_0$  le champ appliqué,  $I$  l'intensité lumineuse par l'intermédiaire de  $\tau_{di}$ . Ainsi, la constante de temps de réponse  $\tau_e$  peut facilement être modifiée sur un matériau donné. En modifiant l'intensité optique (donc la vitesse à laquelle on délivre l'énergie), un même échantillon peut avoir des temps de réponse de l'ordre de la seconde ou de la nanoseconde, voire de la picoseconde. On peut également modifier la constante de temps en changeant soit le pas du réseau soit le champ électrique appliqué ce qui, suivant les matériaux, augmente ou diminue la constante de temps. Ces deux dernières méthodes ont

cependant l'inconvénient de modifier également l'amplitude du champ de charge d'espace à l'état stationnaire.

La constante de temps est inversement proportionnelle à l'intensité lumineuse  $I$  car on a négligé la conductivité dans l'obscurité. Ainsi qu'indiqué au paragraphe 2.3.2, pour la réintroduire il peut suffire de changer  $I$  par  $I + \beta/s$ . Cette proportionnalité n'est généralement plus vérifiée pour des schémas énergétiques plus complexes.

La sensibilité photoréfractive est parfois définie comme étant proportionnelle à  $E_1/\tau_e$ . Sans champ appliqué, cette sensibilité est maximale pour  $k_r = \kappa$ .

### 2.6.2.6 Cycle d'inscription-effacement en régime d'excitation quasi-continue

L'équation d'évolution (2.79) est valable même si le taux de modulation dépend du temps. Néanmoins, en guise d'illustration, nous allons considérer l'inscription et l'effacement d'un réseau uniforme. À l'écriture nous posons :

$$\begin{cases} t < 0 & : & I(t) = I_0 & ; & E_1 = 0, \\ t > 0 & : & I(t) = I_0 [1 + 0,5(Me^{ik_r x} + cc)] \end{cases} \quad (2.83)$$

La cinétique de  $E_1(t)$  s'écrit à partir de l'expression (2.79) :

$$E_1(t) = M E_{sc} e^{i\varphi} (1 - e^{-(i\omega_e t + t/\tau_e)}) \quad (2.84)$$

La solution cherchée s'obtient en repassant en notations réelles avec (2.50), soit :

$$E(t, x) = E_0 + m E_{sc} [\underbrace{\cos(k_r x + \varphi + \psi_{1-2})}_{\text{réseau fixe}} - e^{-t/\tau_e} \underbrace{\cos(k_r x + \varphi + \psi_{1-2} - \omega_e t)}_{\text{réseau mobile qui s'amortit}}] \quad (2.85)$$

De même à l'effacement nous posons :

$$\begin{cases} t < 0 & : & I(t) = I_0 [1 + 0,5(Me^{ik_r x} + cc)] & ; & E_1 = M e^{i\varphi} E_{sc}, \\ t > 0 & : & I(t) = I_0, \end{cases} \quad (2.86)$$

ce qui nous donne,

$$E_1(t) = M E_{sc} e^{i\varphi} e^{-(i\omega_e t + t/\tau_e)}, \quad (2.87)$$

d'où on tire la partie réelle,

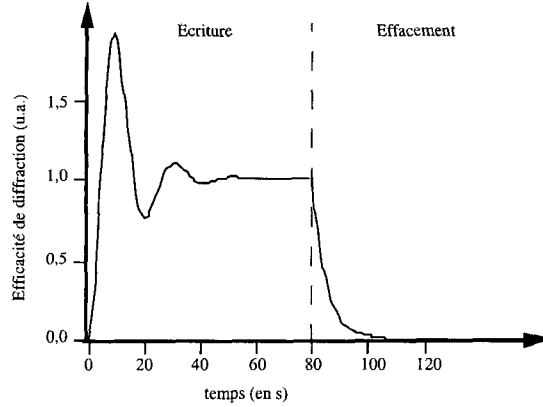
$$E(t, x) = E_0 + m E_{sc} e^{-t/\tau_e} \cos(k_r x - \omega_e t + \varphi + \psi_{1-2}). \quad (2.88)$$

↓  
réseau mobile qui s'amortit

Nous voyons que  $\tau_e$  représente la constante de temps d'écriture ou d'effacement du réseau et que  $\omega_e$  correspond à la vitesse de déplacement  $v = \omega_e/k_r$  d'un réseau transitoire. Nous montrerons plus loin que ces réseaux transitoires peuvent être utilisés pour augmenter la valeur du champ de charge d'espace.

On peut observer l'évolution temporelle du réseau en mesurant l'intensité d'un faisceau diffracté par ce réseau. Une efficacité de diffraction faible est proportionnelle au carré du champ de charge d'espace  $E_{1,r}$ , ainsi que nous le verrons dans le chapitre 4. L'allure de la courbe d'efficacité de diffraction au cours d'un cycle inscription-effacement est telle que montrée sur la figure 7. Le comportement oscillatoire à l'inscription est dû au battement entre les deux termes de l'équation (2.85) correspondant aux réseaux fixe et mobile. Bien que le réseau soit aussi mobile lors de l'effacement, il n'y a plus de battement entre deux termes et cette oscillation n'existe plus. L'existence de ces réseaux mobiles à l'inscription et à l'effacement peut aisément se comprendre en considérant que les charges se déplacent préférentiellement dans une direction donnée sous l'effet du champ appliqué. Si  $E_0 = 0$  à l'enregistrement, il n'y a pas d'oscillation amortie.

Pour observer cette oscillation amortie il faut satisfaire aux conditions du modèle : faible taux de modulation,  $I_0$  faible et uniforme sur toute l'épaisseur du matériau en dépit de l'absorption. C'est ce qui a été obtenu dans la référence [8]. Si le taux de modulation augmente les hypothèses du modèle ne sont plus vérifiées, et l'oscillation disparaît ainsi que le montrent les simulations numériques de la référence [55].



**Figure 7 :** Exemple expérimental de cinétique de l'efficacité de diffraction lors d'un cycle écriture-effacement pour un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  sous champ électrique appliqué.

### 2.6.2.7 Compétition électrons-trous en régime d'excitation quasi-continue

Nous aurions pu conduire tous les calculs précédents dans le cas où les trous sont les seuls porteurs de charge (figure 2.b). Nous allons maintenant généraliser et observer ce qui se passe lorsqu'il y a simultanément excitation d'électrons et de trous à partir d'un seul type de centres profonds (figure 2.c). Nous utilisons les indices  $e$  et  $i$  pour toutes les grandeurs qui se réfèrent respectivement aux électrons et aux trous. Les quatre équations de base se transforment en [26, 27] :

$$\frac{\partial N^i}{\partial t} = s_e I (N - N^i) - \gamma_e n_e N^i - s_i I N^i + \gamma_i n_i (N - N^i), \quad (2.89)$$

$$\begin{cases} \vec{J}_e = e n_e \mu_e \vec{E} + \mu_e k_B T \vec{\text{grad}} n_e, \\ \vec{J}_i = e n_i \mu_i \vec{E} - \mu_i k_B T \vec{\text{grad}} n_i, \end{cases} \quad (2.90)$$

$$\begin{cases} \frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{\text{div} \vec{J}_e}{e} + s_e I (N - N^i) - \gamma_e n_e N^i, \\ \frac{\partial n_i}{\partial t} = -\frac{\text{div} \vec{J}_i}{e} + s_i I N^i - \gamma_i n_i (N - N^i), \end{cases} \quad (2.91)$$

$$\text{div}(\epsilon_0 \epsilon_s' \vec{E}) = -e [n_e + N_A - N^i - n_i]. \quad (2.92)$$

Pour résoudre ce système d'équations, nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation du régime d'excitation quasi-continue qui nous avait conduits à l'équation (2.79). Nous négligeons les termes  $\partial n_e / \partial t$  et  $\partial n_i / \partial t$  dans les équations (2.91) ainsi que les contributions des réseaux électroniques et de trous au champ de charge d'espace, ce qui revient à négliger  $n_e$  et  $n_i$  dans l'équation de Poisson (2.92). Nous obtenons :

$$n_{e,0} = \frac{s_e I_0 (N - N_A)}{\gamma_e N_A}, \quad n_{i,0} = \frac{s_i I_0 N_A}{\gamma_i (N - N_A) N_A}, \quad (2.93)$$

et,

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} = -E_1 \left[ \frac{1}{\tau_{di,e}} \frac{\kappa_e^2 k_d^2 + k_r(k_r - ik_E)}{\kappa_e^2 + k_r(k_r - ik_E)} + \frac{1}{\tau_{di,t}} \frac{\kappa_t^2 k_d^2 + k_r(k_r + ik_E)}{\kappa_t^2 + k_r(k_r + ik_E)} \right] - iM \frac{k_B T}{e} \left[ \frac{1}{\tau_{di,e}} \frac{\kappa_e^2 (k_r - ik_E)}{\kappa_e^2 + k_r(k_r - ik_E)} - \frac{1}{\tau_{di,t}} \frac{\kappa_t^2 (k_r + ik_E)}{\kappa_t^2 + k_r(k_r + ik_E)} \right]. \quad (2.94)$$

Ainsi, si le champ appliqué au cristal est nul, nous trouvons à l'état stationnaire :

$$E_1 = -i M E_{sc} = -i M \frac{E_q E_d}{E_q + E_d} \xi(k_r), \quad (2.95)$$

avec  $\xi$  le coefficient de compétition électrons-trous donné par

$$\xi(k_r) = \frac{1 - C}{1 + C} \quad \text{et} \quad C = \frac{s_t N' (k_r^2 + \kappa_e^2)}{s_e (N - N') (k_r^2 + \kappa_t^2)}. \quad (2.96)$$

Si les électrons sont les seuls porteurs de charge, nous avons  $\xi = 1$  et nous retrouvons les résultats précédents. Si ce sont des trous nous avons  $\xi = -1$ . Dans les cas intermédiaires avec à la fois des électrons et des trous, nous avons  $|\xi| < 1$  et donc une réduction de l'amplitude du champ de charge d'espace.

Pour un échantillon donné, le coefficient de compétition électrons-trous  $\xi$  dépend du pas du réseau photoréfractif. Les trous peuvent dominer l'effet pour certains pas et les électrons pour un autre domaine de pas. Entre ces deux régions, il existe un pas pour lequel le champ de charge d'espace est nul. De même, le coefficient de compétition électrons-trous dépend de la longueur d'onde optique au travers des deux coefficients  $s_e$  et  $s_t$ . Ici également, il peut y avoir annulation et inversion du signe du champ de charge d'espace pour une certaine longueur d'onde.

Cette compétition électrons-trous est un phénomène important qui réduit l'amplitude du champ de charge d'espace et qui peut intervenir dans de nombreux matériaux comme certains échantillons semi-conducteurs (*GaAs*, *InP*, *CdTe*...) ou semi-isolants (*BaTiO<sub>3</sub>*) et pour certaines gammes de longueurs d'onde.

### 2.6.3 Régime d'excitation impulsionnelle

En régime d'excitation impulsionnelle [64-67], de nombreux phénomènes qui n'interviennent pas en régime d'excitation continue doivent être pris en compte. Par exemple, si des niveaux superficiels (près de la bande de conduction) existent, alors ils modifient la cinétique de l'effet photoréfractif [64]. L'effet photoréfractif peut également se mélanger à d'autres phénomènes optiques non-linéaires tels que absorption induite, non-linéarités dues aux porteurs libres [65]... Nous donnons donc la résolution suivante en tant qu'illustration et à titre indicatif.

Nous considérons le cas simple d'une impulsion de forme carrée dont la durée  $\tau_L$  est très inférieure aux temps de recombinaison  $\tau_R$ , de diffusion  $\tau_d$ , d'entraînement sous champ  $\tau_E$  et de relaxation  $\tau_{di}$ . C'est-à-dire que durant  $\tau_L$ , il y a seulement excitation des centres et création de porteurs libres qui restent "en place". Les équations du paragraphe (2.6.1) qui ont été obtenues avec la seule approximation des faibles taux de modulation sont toujours valables.

Pendant le passage de l'impulsion,  $t \leq \tau_L$ .

Durant le passage de l'impulsion nous avons uniquement l'excitation des électrons vers la bande de conduction et aucune recombinaison ni aucun déplacement. Les équations (2.54) et (2.55) se simplifient et par intégration à faible illumination (i.e.  $s I_0 \tau_L \ll 1$ ) nous trouvons :

$$\begin{cases} n_0(\tau_L) = s I_0 (N - N_A) \tau_L, \\ n_1(\tau_L) = M s I_0 (N - N_A) \tau_L = M n_0(\tau_L), \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} N_0^i(\tau_L) = N_A + n_0(\tau_L), \\ N_1^i(\tau_L) = n_1(\tau_L). \end{cases} \quad (2.97)$$

Dans ce régime d'excitation pulsée brève, à la fin de l'impulsion à  $t = \tau_L$ , les charges n'ont pas encore diffusé. Le réseau d'électrons dans la bande de conduction compense exactement le réseau dans les centres profonds. Le champ électrique  $E_1(\tau_L)$  est donc nul.

Après le passage de l'impulsion,  $t > \tau_L$  mais avant recombinaison  $t \leq \tau_R$

En se plaçant à des temps courts devant la constante de temps de recombinaison  $\tau_R$ , nous pouvons poser  $\partial N^i / \partial t = 0$ ;  $N_1^i$  et  $n_0$  sont donc données par l'équation (2.97). En négligeant cette recombinaison, nous trouvons en éliminant  $n_1$  et  $J_1$  des équations (2.56), (2.57) et (2.58) relatives à l'ordre 1 :

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + (E_1 - E_1^s) \left( \frac{1}{\tau_d} + \frac{1}{\tau_{di}} - \frac{i}{\tau_E} \right) = 0, \quad (2.98)$$

avec

$$E_1^s = \frac{-M(E_0 + i E_d)}{1 - i \left[ \frac{\tau_{di}}{\tau_E} + i \frac{\tau_{di}}{\tau_d} \right]} \quad \text{et} \quad \tau_{di} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_s^r}{e \mu n_0(\tau_L)}. \quad (2.99)$$

Nous voyons que le champ électrique n'est pas limité par  $E_q$  et donc par la densité de centres  $N_A$ . En effet, contrairement à ce qui se passe en régime d'excitation quasi-continue, le réseau de champ photoréfractif n'est pas construit par redistribution des charges dans les centres profonds car tout se passe avant la recombinaison. Pour des champs  $E_0$  forts, la formule ci-dessus semble montrer que  $E_1^s$  augmente à l'infini avec  $n_0(\tau_L)$ , donc avec l'énergie contenue dans l'impulsion. Ceci n'est pas physiquement possible. En effet, pour de fortes illuminations,  $s I_0 \tau_L$  est supérieur à 1 et notre hypothèse des faibles illuminations n'est plus vérifiée. La quantité  $n_0(\tau_L)$  de charges que l'on peut exciter est limitée par la densité de centres ionisables,  $N - N_A$ , ce qui limite le champ de charge d'espace.

Si l'illumination est faible et si  $E_0 = 0$  alors, la vitesse de construction du champ de charge d'espace est gouvernée par le processus de diffusion. Elle est indépendante de la valeur de l'illumination. Pour construire un réseau de charge d'espace significatif à faible illumination, il faut que les charges diffusent avant de se recombiner, c'est-à-dire que l'on doit avoir  $\tau_d \ll \tau_R$ . D'après les définitions (2.21), (2.23) et (2.27), nous trouvons :

$$\tau_d / \tau_R = (\Lambda / 2\pi L)^2. \quad (2.100)$$

Ainsi,  $\tau_d \ll \tau_R$  si la longueur de diffusion  $L$  est suffisamment grande par rapport au pas du réseau  $\Lambda$ . Cette condition est facile à obtenir avec les sillénites et les semi-conducteurs qui ont des longueurs de diffusion voisines ou supérieures au  $\mu\text{m}$ .

Lorsque l'intensité croît, la constante de temps devient fonction de l'illumination. Le champ de charge d'espace est construit avant diffusion totale des charges (mais attention, il y a des termes que l'on ne pourra plus négliger).

Recombinaison

La résolution des équations jusqu'à la recombinaison ne conduit pas à des solutions simples et elle doit être faite numériquement. Au fur et à mesure que les charges se recombinent, le réseau de champ électrique des porteurs libres disparaît au profit du réseau dans les centres profonds. Nous retrouvons donc la limitation due à ces centres : le champ électrique à l'état stationnaire est limité par  $M E_q$ . Le champ de charge d'espace peut momentanément atteindre des valeurs plus grandes que celles de l'état final.



### Conclusion

Nous parlons de régime d'excitation pulsée dans la mesure où la durée de l'impulsion est inférieure ou de l'ordre du temps de recombinaison. La valeur de ce temps de recombinaison diffère très fortement d'un cristal photoréfractif à l'autre. Elle est par exemple supérieure à la microseconde pour des matériaux de la famille des sillenites, de l'ordre de la nanoseconde pour des cristaux de titanate de baryum. Dans ce régime d'excitation pulsée, la résolution du système d'équations ne peut généralement se faire que numériquement. Le réseau photoréfractif se construit après le passage de l'impulsion.

## **2.7 Figure quasi-périodique, effet photovoltaïque fort et diffusion négligeable**

L'expression (2.12) du courant photovoltaïque montre que même pour un réseau d'illumination quasi-périodique, le courant n'est généralement pas colinéaire au vecteur d'onde. Une partie de ce courant, correspondant au tenseur symétrique, est en phase avec la figure d'intensité tandis que la partie correspondant au tenseur antisymétrique est en quadrature. Nous verrons l'importance de cette caractéristique lorsque nous étudierons les phénomènes de couplage d'ondes. Une résolution générale du modèle tenant compte de tous les aspects vectoriels de l'effet photovoltaïque n'a jamais été effectuée. Elle n'est pas non plus nécessaire car, en fonction de la géométrie choisie, des hypothèses simplificatrices peuvent être faites.

### *2.7.1 Tenseur photovoltaïque symétrique*

Dans la référence [48] une résolution, ne prenant en compte que seule la composante du tenseur photovoltaïque symétrique qui est la source d'un courant suivant le vecteur d'onde du réseau induit, a été menée dans le cadre de l'approximation d'excitation quasi-continue. Cette résolution s'effectue sans difficulté majeure en suivant la progression du paragraphe 2.6.2. Cet article souligne l'importance des conditions aux limites. Si les faisceaux n'éclairent pas tout le matériau ou si ses faces ne sont pas court-circuitées, des charges électriques s'accumulent aux bornes de la zone éclairée. Elles induisent ainsi un très fort champ "appliqué" qui varie temporellement et qui perturbe l'écriture du réseau. Ce champ peut donner l'impression que les expériences ne sont pas reproductibles. Il ne peut être effacé qu'avec un faisceau de lumière incohérente non polarisé. Dans cet article [48] la relation d'Einstein est supposée vérifiée. Cette hypothèse est probablement erronée. En effet, dans les matériaux qui présentent un fort effet photovoltaïque, le transport de charge est effectué majoritairement par des porteurs chauds et le coefficient de diffusion  $D$  ne vérifie plus cette relation d'Einstein. Ainsi, dans le  $LiNbO_3$ , le coefficient de diffusion peut être plus de dix fois plus grand que celui donné par la relation d'Einstein [46]. En dépit de ces restrictions, les expressions données dans cet article sont réutilisables si l'on prend soin de remplacer le champ de diffusion par sa valeur prenant en compte les porteurs chauds. De plus si toutes les faces de l'échantillon sont mises en court-circuit, ces résultats sont encore valables même si le courant photovoltaïque n'est pas suivant la direction du vecteur d'onde du réseau. En effet, si le matériau est infini il suffit de prendre la composante de la densité de courant suivant le vecteur d'onde du réseau induit.

### *2.7.2 Tenseur photovoltaïque antisymétrique*

L'utilisation du tenseur antisymétrique est intéressante car elle permet d'obtenir des réseaux d'indice en quadrature avec la figure d'interférence. Pour simplifier les équations, nous nous plaçons à l'état stationnaire loin de la saturation du matériau, c'est-à-dire pour  $N' \approx N_A$ . Pour mettre à profit ce tenseur, il faut avoir un réseau de polarisation. Ceci est obtenu en faisant interférer deux ondes polarisées orthogonalement. L'intensité est alors uniforme mais le

vecteur unitaire  $\hat{e}$  de l'onde résultante varie spatialement. En négligeant le courant de diffusion, la résolution de l'équation (2.14) conduit immédiatement au résultat suivant :

$$E_{1r} = -\frac{i[\beta^a](\hat{e} \wedge \hat{e}^*)\hat{k}_r}{\mu \epsilon s(N - N_A)\tau_r}. \tag{2.101}$$

Ce champ de charge d'espace est bien réel car le produit vectoriel  $\hat{e} \wedge \hat{e}^*$  est imaginaire pur.

À titre d'exemple, examinons une configuration possible pour le  $LiNbO_3$ . Le seul coefficient non nul du tenseur photovoltaïque antisymétrique est  $\beta_{12}^a$ . On peut utiliser la géométrie de la figure 8. Nous repérons les grandeurs relatives à chacune des ondes par les indices  $R,S$  et nous écrivons :

$$\vec{E}_{R,S}^\omega = 0,5[A_{R,S} \hat{e}_{R,S} e^{-i(\omega t - \vec{k}_{R,S} \cdot \vec{r})} + cc] \text{ avec } A_{R,S} = \|A_{R,S}\| e^{i\psi_{R,S}}, \tag{2.102}$$

Si l'angle entre les deux faisceaux d'écriture est faible, les vecteurs unitaires de chacune des deux ondes et le vecteur unitaire de l'onde totale s'écrivent :

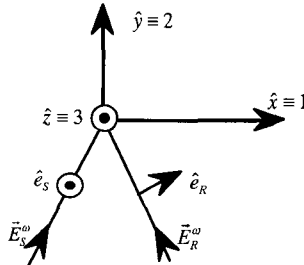
$$\hat{e}_R = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \hat{e}_S = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \hat{e} = \frac{1}{\sqrt{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}} \begin{pmatrix} A_R e^{i\vec{k}_R \cdot \vec{r}} \\ 0 \\ A_S e^{i\vec{k}_S \cdot \vec{r}} \end{pmatrix}. \tag{2.103}$$

Après calcul, nous obtenons le champ de charge d'espace qui est orienté suivant l'axe  $\hat{x}$  :

$$E_{1r} = m E_{sc}^a \sin(k_r x + \psi_{R-S}), \tag{2.104}$$

avec 
$$m = \frac{2 \|A_R\| \|A_S\|}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}, E_{sc}^a = \frac{\beta_{12}^a}{\mu \epsilon s(N - N_A)\tau_r} \text{ et } \psi_{R-S} = \psi_R - \psi_S. \tag{2.105}$$

Ainsi qu'annoncé, nous retrouvons bien un champ en quadrature avec la figure d'interférence. Il est proportionnel au taux de modulation  $m$  de la figure d'interférence qui, bien que concernant une figure de polarisation, s'écrit de la même façon que pour une figure d'intensité.



**Figure 8** : Configuration d'enregistrement d'un réseau de champ mettant à profit le coefficient  $\beta_{12}^a$  du tenseur photovoltaïque antisymétrique.

### 3. MODIFICATIONS INDUITES PAR LE CHAMP ÉLECTRIQUE

#### 3.1 Introduction

Pour calculer simplement le champ électrique photoinduit dans le matériau, nous avons dans le chapitre précédent fait l'hypothèse que le champ électrique ne modifiait pas la permittivité diélectrique de sorte que l'on a pu résoudre le jeu d'équations en supposant que la permittivité était une constante. Cette hypothèse n'était qu'une approximation. En effet, le champ électrique déforme le matériau par effet piézo-électrique ou par électrostriction ce qui en

retour modifie la constante diélectrique. Cette modification est négligeable dans certains matériaux mais apporte une correction significative à la constante de permittivité dans d'autres. Nous allons montrer que pour un réseau quasi-périodique de champ, cette modification est automatiquement prise en compte dans le développement précédent si on apporte une correction à la valeur de la constante de permittivité effective dans l'équation de Poisson. La cinétique calculée précédemment restera valable à la condition que le temps de réponse de la permittivité diélectrique soit négligeable devant la constante de temps de construction de ce champ. Par contre, si le temps de réponse diélectrique n'est pas négligeable, il limite la cinétique de croissance du champ photoréfractif; alors seul l'état stationnaire calculé précédemment est correct.

Nous allons donc commencer par calculer les déformations induites par le champ électrique pour calculer cette constante de permittivité effective à introduire dans l'équation de Poisson. Une fois cette constante connue, et donc une fois que le champ électrique est déterminé, il nous faudra calculer les variations de la permittivité diélectrique aux fréquences optiques induites par ce champ. Plusieurs effets physiques sont responsables de ces variations.

Dans les débuts de l'effet photoréfractif, seul l'effet Pockels, linéaire en champ électrique était pris en compte. Cet effet est d'origine électronique et possède donc une constante de temps de réponse négligeable devant le temps de construction de l'effet photoréfractif. De plus, cet effet Pockels étant linéaire, la modulation de permittivité reproduit la figure de champ. Pour une figure d'illumination quasi-périodique, la variation de permittivité (et donc d'indice de réfraction) possède la même fréquence spatiale. Cette linéarité est indispensable pour toutes les expériences d'holographie.

Les matériaux qui ne présentent pas d'effet électro-optique linéaire sont néanmoins utilisables. Ils possèdent forcément un effet électro-optique quadratique. Ce peut être l'effet Kerr ou l'effet Franz-Keldish qui sont d'origine électronique, ou la réorientation de chromophores dans les polymères ou de molécules dans les cristaux liquides nématiques. Nous montrerons qu'en appliquant un champ électrique  $E_0$  plus fort que le champ de charge d'espace  $E_{1r}$ , le développement de cet effet quadratique possède un terme proportionnel à  $E_0 E_{1r}$ , qui est donc linéaire en  $E_{1r}$ . De cette façon, les matériaux quadratiques peuvent être utilisés pour les expériences photoréfractives.

Le champ électrique peut également déformer suffisamment le matériau pour produire des variations de permittivité significatives.

Nous détaillerons ces différentes contributions pour présenter, à la fin de ce chapitre, une expression synthétique de la permittivité diélectrique aux fréquences optiques.

### 3.2 Calcul des déformations induites par le champ électrique

Dans tous les matériaux, les valeurs des coefficients de permittivité diélectrique dépendent de la façon dont peut se déformer l'échantillon. Ainsi, pour du titanate de baryum, si on applique un champ électrique uniforme suivant l'axe cristallographique  $\hat{x}$  la constante diélectrique vaut  $\epsilon_{11}^{T=0} = 4450$  lorsque le cristal est libre de se déformer, elle ne vaut plus que  $\epsilon_{11}^{u=0} = 2174$  si l'on empêche toute déformation. Cet exemple souligne l'importance de connaître les déformations subies par l'échantillon pour savoir quel tenseur de permittivité introduire dans l'équation de Poisson (2.18) et pouvoir calculer le champ.

L'influence des déformations sur la valeur de la constante diélectrique a été soulignée et calculée dans les références [49, 68-70]; certaines déformations possibles n'ont pas été prises en compte dans [68]. L'approche suivie est inspirée des calculs de la propagation des ondes acoustiques dans les solides [71]. Nous nous plaçons à l'équilibre mécanique, c'est-à-dire que nous considérons soit que l'état stationnaire est atteint soit que la construction du champ de charge d'espace est plus lente que la constante de temps d'évolution de la polarisation dans le matériau. Pour un cristal ce temps d'évolution est de l'ordre du "pas du réseau" sur la "vitesse du son". Dans un matériau polymère, cette réponse de polarisation pourrait également avoir pour origine la réorientation des chromophores. Ces constantes de temps de réorientation

peuvent être très lentes (de l'ordre de 100 ms, voire plus) et cette réorientation peut limiter la constante de temps de construction de l'effet photoréfractif. Dans ce cas particulier, les évolutions temporelles que nous avons calculées dans le chapitre 2 sont incorrectes. Seul est valable l'état stationnaire.

Pour calculer les perturbations mécaniques induites dans le matériau, nous utilisons des notations tensorielles. Au lecteur peu familier avec ces notions, nous recommandons la lecture de la référence [72] pour une présentation agréable à suivre de ces différents tenseurs et des différents effets électromécaniques. Les diverses composantes des tenseurs sont indicées par les lettres  $i, j, k, l, m$  qui chacune peut prendre une valeur entière 1, 2 ou 3 qui représente une des trois directions de l'espace  $x, y$  ou  $z$ . Nous utilisons ici la convention de sommation implicite d'Einstein pour calculer les produits tensoriels; c'est-à-dire qu'il y a une sommation implicite sur tout indice qui est présent deux fois de suite dans un produit. À l'équilibre mécanique la somme des forces et la somme des couples qui s'appliquent à un élément de volume est nulle. Nous considérons ici que les forces et couples de volume résultant de l'action du champ électrique sur les charges et la polarisation sont négligeables. Leur influence n'a jamais été mise en évidence jusqu'à maintenant. La présentation suivante qui ne prend pas en compte ces couples est inspirée de [49]. Ces couples sont pris en compte dans la référence [70]. Les couples étant considérés comme presque nuls, il nous suffit de poser l'équilibre mécanique des forces qui s'exprime en fonction des composantes symétriques  $T_{ij}$  du tenseur des contraintes par [72] :

$$\partial T_{ij} / \partial x_j = 0 \quad , \quad (3.1)$$

Puisque nous avons négligé les couples, les composantes antisymétriques du tenseur des contraintes sont nulles. Les forces qui s'appliquent à un élément de volume sont dues d'une part au champ électrique au travers de l'effet piézoélectrique et aux déformations mécaniques. Au premier ordre nous écrivons :

$$T_{ij} = c_{ijkl} u_{kl}^{sym} - e_{kij} E_k \quad , \quad (3.2)$$

avec  $E_k$  les composantes du champ électrique interne,  $c_{ijkl}$  les composantes du tenseur des rigidités élastiques et  $e_{ijk}$  les composantes du tenseur piézoélectrique. Les composantes  $u_{kl}^{sym}$  du tenseur des déformations sont les parties symétriques des composantes  $u_{kl}$  du tenseur des gradients du déplacement mécanique  $\vec{U}$ . En chaque point, les composantes de ces tenseurs sont reliées par :

$$u_{kl}^{sym} = (u_{kl} + u_{lk})/2 \quad \text{et} \quad u_{kl}^{antisym} = (u_{kl} - u_{lk})/2 \quad \text{avec} \quad u_{kl} = \partial U_k / \partial x_l \quad . \quad (3.3)$$

De même, au premier ordre, les composantes  $D_i$  du déplacement électrique aux basses fréquences sont données par :

$$D_i = e_{ijk} u_{jk}^{sym} + \varepsilon_0 \varepsilon_{ij}^{u=0} E_j \quad , \quad (3.4)$$

avec  $\varepsilon_{ij}^{u=0}$  les composantes du tenseur diélectrique à déformations nulles.

Dans certains matériaux qui ne présentent pas d'effet piézo-électrique, il faudrait prendre en compte l'électrostriction dans les équations (3.2) et (3.4). Il est possible de montrer que cette prise en compte est équivalente à introduire des coefficients piézo-électriques équivalents ainsi qu'exposé dans la référence [70]. Nous négligeons cet effet ici.

En toute rigueur, le calcul du champ interne à partir des équations du modèle de transport de charge (2.8), (2.14), (2.17), (2.18), devrait être effectué en résolvant simultanément les équations (3.1), (3.2), (3.3) et (3.4) avec  $u_{kl}^{sym}$  et  $E_k$  comme variables et, en y incluant éventuellement des équations supplémentaires gouvernant la cinétique de  $u_{kl}^{sym}$ . Il faut en plus prendre en compte les conditions aux limites; par exemple si le matériau est libre de se déformer  $T_{ij} = 0$  sur les faces de l'échantillon, ou s'il est totalement contraint,  $u_{ij} = 0$  sur les faces. Pour une figure d'illumination quelconque, et sauf cas exceptionnel, ce calcul ne peut être fait que numériquement. Néanmoins, pour une figure d'illumination quasi-périodique et si les dimensions de l'échantillon sont bien plus grandes que le pas du réseau, les équations se

simplifient. En effet, par symétrie, les déplacements sont également quasi-périodiques. Nous pouvons écrire :

$$\begin{cases} \vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}_0 + 0,5\hat{k}_r \left( E_1 e^{i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + E_1^* e^{-i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} \right), \\ U_j(\vec{r}) = U_{0,j} + 0,5 \left( U_{1,j} e^{i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + U_{1,j}^* e^{-i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} \right), \\ u_{kl}(\vec{r}) = u_{0,kl}(0) + 0,5 \left( u_{1,kl} e^{i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + u_{1,kl}^* e^{-i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} \right), \end{cases} \quad (3.5)$$

les indices  $_{0,1}$  signifiant ici, ordre spatial 0 (i.e. uniforme) et ordre spatial 1 (modulé); les indices après la virgule repérant toujours la coordonnée  $x, y$  ou  $z$ .

Pour les composantes modulées spatialement, en reportant l'expression (3.5) du vecteur déplacement dans les expressions (3.3) et en utilisant les conditions d'équilibre (3.1), nous obtenons :

$$c_{ijkl} U_{1,k} k_r a_j a_l = -i e_{kij} E_1 a_k a_j \quad \text{avec} \quad a_1 = \hat{k}_r \cdot \hat{x}, \quad a_2 = \hat{k}_r \cdot \hat{y} \quad \text{et} \quad a_3 = \hat{k}_r \cdot \hat{z}. \quad (3.6)$$

La résolution de ce système d'équations (3.6) permet de remonter au vecteur déplacement. Elle peut s'effectuer sous forme matricielle en posant :

$$[A] \vec{U}_1 = \vec{B} \quad \text{avec} \quad A_{ik} = c_{ijkl} a_j a_l \quad \text{et} \quad B_i = -i e_{kij} E_1 a_k a_j / k_r, \quad (3.7)$$

En introduisant la matrice  $[A]^{-1}$ , de composantes  $A_{kl}^{-1}$ , qui est l'inverse de  $[A]$  nous pouvons alors écrire :

$$u_{1,kl} = a_m a_j a_l e_{mij} A_{kl}^{-1} E_1. \quad (3.8)$$

Les déplacements associés à la composante uniforme  $E_0$  du champ sont plus faciles à calculer. En effet, aux basses fréquences, on considère généralement que les faces du matériau sont libres de se déformer. Pour cette composante uniforme, le matériau peut donc être considéré comme totalement libre de se déformer dans le volume. Le calcul est trivial car il suffit de poser  $T_{ij} = 0$  dans l'équation (3.2).

### 3.3 Permittivités diélectriques à basse fréquence

La constante diélectrique effective s'exprime en reportant les valeurs trouvées dans l'expression du déplacement électrique. Conformément à la définition (2.19), en effectuant le produit scalaire du déplacement électrique, équation (3.4), avec le vecteur unitaire  $\hat{k}_r$  et en divisant par  $E_1$ , nous trouvons :

$$\epsilon_0 \epsilon_{s,eff}^r = \left( \epsilon_0 \epsilon_{ij}^{u=0} + e_{ijk} e_{mnl} a_m a_n A_{kl}^{-1} \right) a_i a_j. \quad (3.9)$$

Le coefficient à employer ne correspond donc ni à celui d'un matériau totalement libre, ni à celui d'un matériau totalement contraint.

Même s'il ne présente pas de complication, le calcul de la constante de permittivité effective nécessite d'inverser la matrice  $[A]$  ce qui peut s'avérer fastidieux. Dans certains matériaux, tels que *GaAs*, les valeurs des coefficients diélectriques libres et contraints sont très proches. La correction apportée par le second terme du membre de droite de l'équation (3.9) est faible. Il est donc justifié de ne pas apporter cette correction et de ne pas tenir compte des déformations de ces matériaux dans le calcul des permittivités. Par contre, pour d'autres matériaux, tels que *BaTiO<sub>3</sub>*, cette correction est nécessaire. Des expressions précalculées existent dans la littérature pour *BaTiO<sub>3</sub>* et *KNbO<sub>3</sub>* uniquement [73].

Nous n'avons pas calculé la constante de permittivité diélectrique associée à la partie non modulée du champ électrique, c'est-à-dire pour le champ électrique appliqué  $E_0$ . La raison est que nous n'en avons pas eu besoin dans la résolution des équations du modèle de transport de charge. Nous avons eu simplement besoin de la valeur de  $E_0$  qui ne dépend pas de la permittivité si ce champ est uniforme dans le matériau; dans ce cas il est simplement égal à  $E_0 = \Delta V/d$  avec  $\Delta V$  la différence de potentiel appliquée aux électrodes espacées d'une

distance  $d$ . Néanmoins si besoin était, et suite à la remarque de la fin du paragraphe 3.2.1, pour les basses fréquences associées à  $E_0$  il faut prendre le tenseur de permittivité à contrainte nulle  $[\varepsilon^{T=0}]$ . Il peut se calculer en posant  $T_{ij} = 0$  dans l'équation (3.2) et en reportant dans l'équation (3.4). Il est cependant plus simple de prendre directement les valeurs données dans la littérature quand elles existent.

### 3.4 Modifications des propriétés optiques

#### 3.4.1 Matrice d'imperméabilité

##### 3.4.1.1 Définition

Pour calculer la propagation d'une onde il faut commencer par poser les équations de Maxwell et y rajouter les équations constitutives du milieu. Dans le domaine des fréquences optiques, la perméabilité magnétique est égale à celle du vide  $\mu_0$  (référence [74] page 331). La seule relation constitutive à prendre en compte est donc celle qui donne l'expression de la matrice de permittivité diélectrique qui relie le champ électrique  $\vec{E}^\omega$  au vecteur déplacement  $\vec{D}^\omega$ . Pour des raisons historiques on introduit également la matrice d'imperméabilité (appelée aussi matrice des indices)  $[\eta]$  qui est la matrice inverse de la permittivité  $[\varepsilon_\omega^r]$ . Ces deux matrices sont reliées par :

$$\vec{D}^\omega = \varepsilon_0 [\varepsilon_\omega^r] \vec{E}^\omega \quad \text{ou} \quad \varepsilon_0 \vec{E}^\omega = [\eta] \vec{D}^\omega \quad \text{avec} \quad [\eta] = \begin{pmatrix} \eta_{xx} & \eta_{xy} & \eta_{xz} \\ \eta_{yx} & \eta_{yy} & \eta_{yz} \\ \eta_{zx} & \eta_{zy} & \eta_{zz} \end{pmatrix} = [\varepsilon_\omega^r]^{-1}. \quad (3.10)$$

Pour les milieux sans absorption que nous considérons ici, les matrices  $[\eta]$  et  $[\varepsilon_\omega^r]$  sont symétriques ( $\eta_{ij} = \eta_{ji}$ ) et donc diagonalisables. Dans la base propre,  $\eta_{ii}$  représente l'inverse du carré de l'indice  $n_i$  vu par une onde polarisée suivant l'axe  $i$ . Néanmoins, dans cette base propre les trois coefficients non nuls ne sont pas forcément égaux. Le vecteur déplacement électrique et le vecteur champ électrique d'une onde lumineuse ne sont donc pas toujours colinéaires.

##### 3.4.1.2 Notations contractées

Le tenseur  $[\eta]$  étant symétrique,  $\eta_{ij} = \eta_{ji}$ , il possède 6 coefficients indépendants. On utilise la notation contractée où les doubles indices sont remplacés par un indice unique avec la convention suivante :

$$xx \equiv 1; yy \equiv 2; zz \equiv 3; yz \equiv zy \equiv 4; xz \equiv zx \equiv 5; xy \equiv yx \equiv 6. \quad (3.11)$$

Le tenseur s'écrit donc sous forme contractée :

$$[\eta] = \begin{bmatrix} \eta_1 & \eta_6 & \eta_5 \\ \eta_6 & \eta_2 & \eta_4 \\ \eta_5 & \eta_4 & \eta_3 \end{bmatrix}. \quad (3.12)$$

##### 3.4.1.3 Relation entre les variations d'imperméabilité et de permittivité diélectrique

Suite à une perturbation (champ électrique, déformation), les tenseurs d'imperméabilité et de permittivité varient de  $[\Delta\eta]$  et de  $[\Delta\varepsilon_\omega]$ . Nous écrivons :

$$[\eta] = [\eta(0)] + [\Delta\eta] \quad \text{et} \quad [\varepsilon_\omega] = [\varepsilon_\omega(0)] + [\Delta\varepsilon_\omega]. \quad (3.13)$$

Dans le système d'axes principaux avant perturbation, il est immédiat de montrer que :

$$\Delta \varepsilon_{\omega,ij}^r = -\varepsilon_{\omega,ii}^r \Delta \eta_{ij} \varepsilon_{\omega,ij}^r \quad \text{avec} \quad \varepsilon_{\omega,ii}^r = n_i^2. \quad (3.14)$$

Dans tous les systèmes d'axes nous pouvons donc écrire :

$$\boxed{\Delta \varepsilon_{\omega}^r = -[\varepsilon_{\omega}^r][\Delta \eta][\varepsilon_{\omega}^r]} \quad (3.15)$$

#### 3.4.1.4 Développement des perturbations

Pour calculer l'état du matériau, paragraphe 3.2, nous avons utilisé les variables champ électrique interne  $\vec{E}$  et gradients du déplacement  $[u]$ . Nous réutilisons ces mêmes variables pour calculer les modifications induites sur les coefficients de cette matrice d'imperméabilité. Pour cela, nous effectuons un développement selon les puissances des perturbations définissant les variations du premier ordre (ou linéaire), du second ordre (ou quadratique), etc. Nous obtenons :

$$[\eta] = [\eta(0)] + [\Delta \eta] = [\eta(0)] + [r^{u=0}]\vec{E} + [p'] [u] + [g]:\vec{E}\vec{E} + \dots \quad (3.16)$$

avec  $[r^{u=0}]$  le tenseur électro-optique linéaire pris à déformations nulles, de rang 3, (27 coefficients);  $[g]$  le tenseur électro-optique quadratique de rang 4;  $[p']$  la somme du tenseur élasto-optique et du tenseur roto-optique, tous les deux de rang 4.

Contrairement à l'équation (3.4), nous avons fait intervenir dans (3.16) le tenseur  $[u]$  avec ses parties symétriques (représentant les déformations) et antisymétriques (représentant les rotations locales). En effet, si le réseau de champ électrique induit une rotation spatialement périodique des éléments de volume du matériau (donc si la partie antisymétrique de  $[u]$  est non nulle), et si en plus le matériau est biréfringent, cela va induire une variation périodique de l'indice. Cette variation périodique de l'indice, même si elle est faible, diffracte la lumière de façon significative. Typiquement, pour un cristal de titanate de baryum de 1cm d'épaisseur, une variation relative périodique de la permittivité aux fréquences optiques de l'ordre de  $10^{-5}$  est un hologramme dont l'efficacité de diffraction est de l'ordre de 100%. Précédemment, nous avons pu négliger cette variation périodique de la permittivité aux basses fréquences (équation (3.4)) car nous recherchions les perturbations apportées à la permittivité pour le calcul du champ électrique. Des variations relatives de l'ordre de  $10^{-5}$  sont dans ce cas totalement négligeables ce qui nous avait permis de ne pas prendre en compte ces rotations dans le paragraphe (3.2).

Dans l'écriture (3.16), un même tenseur peut rendre compte de plusieurs phénomènes microscopiques. Par exemple  $[g]$  représente généralement l'effet Kerr qui est d'origine électronique. Il peut également prendre en compte un effet de réorientation des chromophores dans les matériaux polymères. Pour l'étude qui nous intéresse ici, nous ne ferons pas de distinction entre ces différentes origines. Il convient néanmoins de les conserver à l'esprit. En effet, si l'effet Kerr est instantané, la réorientation moléculaire peut être le phénomène limitant dans la vitesse de construction d'un réseau photoréfractif.

L'expression (3.16) est en notations tensorielles. Nous l'utiliserons sous sa forme développée :

$$\Delta \eta_{ij} = r_{ijk}^{u=0} E_k + p'_{ijkl} u_{kl} + g_{ijkl} E_k E_l ; \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 . \quad (3.17)$$

#### 3.4.2 Effet électro-optique linéaire

L'effet électro-optique linéaire n'existe pas dans les matériaux centrosymétriques (dont les propriétés sont inchangées lorsque le signe du champ est inversé) pour lesquels nous avons  $r_{ijk}^{u=0} E_k = r_{ijk}^{u=0} (-E_k)$  ce qui entraîne  $r_{ijk}^{u=0} = 0$ . Nous montrerons plus loin comment dans les matériaux centrosymétriques l'application d'un champ électrique de valeur élevée permet de transformer un effet quadratique en effet linéaire.

$[\eta]$  étant symétrique en  $i$  et  $j$ ,  $[r^{u=0}]$  l'est aussi. La notation contractée s'y applique donc. Cela réduit à 18 le nombre de coefficients indépendants. En utilisant les conventions (3.11), il s'écrit sous la forme contractée d'une matrice  $6 \times 3$  :

$$[r^{u=0}] = \begin{bmatrix} r_{11}^{u=0} & r_{12}^{u=0} & r_{13}^{u=0} \\ r_{21}^{u=0} & r_{22}^{u=0} & r_{23}^{u=0} \\ r_{31}^{u=0} & r_{32}^{u=0} & r_{33}^{u=0} \\ r_{41}^{u=0} & r_{42}^{u=0} & r_{43}^{u=0} \\ r_{51}^{u=0} & r_{52}^{u=0} & r_{53}^{u=0} \\ r_{61}^{u=0} & r_{62}^{u=0} & r_{63}^{u=0} \end{bmatrix}. \quad (3.18)$$

La perturbation du tenseur d'imperméabilité s'écrit avec ces mêmes notations contractées :

$$\Delta \eta_i = r_{ij}^{u=0} E_j, \quad i = 1 \text{ à } 6, \quad \text{soit} \quad \begin{pmatrix} \Delta \eta_1 \\ \Delta \eta_2 \\ \Delta \eta_3 \\ \Delta \eta_4 \\ \Delta \eta_5 \\ \Delta \eta_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} r_{11}^{u=0} & r_{12}^{u=0} & r_{13}^{u=0} \\ r_{21}^{u=0} & r_{22}^{u=0} & r_{23}^{u=0} \\ r_{31}^{u=0} & r_{32}^{u=0} & r_{33}^{u=0} \\ r_{41}^{u=0} & r_{42}^{u=0} & r_{43}^{u=0} \\ r_{51}^{u=0} & r_{52}^{u=0} & r_{53}^{u=0} \\ r_{61}^{u=0} & r_{62}^{u=0} & r_{63}^{u=0} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix}. \quad (3.19)$$

Cette notation contractée est utile pour présenter des résultats. Néanmoins, pour les calculs, il est aussi simple d'utiliser la notation complète et d'écrire :

$$\Delta \eta_{ij} = r_{ijk}^{u=0} E_k \quad \text{soit} \quad [\Delta \varepsilon_\omega^r] = -[\varepsilon_\omega^r]([r^{u=0}]\vec{E})[\varepsilon_\omega^r]. \quad (3.20)$$

### 3.4.3 Effet électro-optique quadratique

Les matériaux centrosymétriques ne présentent pas d'effet électro-optique linéaire mais seulement un effet électro-optique quadratique. En l'absence d'un champ extérieur appliqué, un réseau de champ de charge d'espace  $E_{1r}$  de nombre d'onde  $k_r$  engendre par effet quadratique un réseau de nombre d'onde  $2k_r$ . Ce réseau ne peut généralement pas être relu par diffraction avec une des deux ondes d'écriture (problème de la sélectivité angulaire de Bragg que nous aborderons dans le prochain chapitre). Afin d'utiliser ces matériaux, on leur applique un champ électrique  $\vec{E}_0$  fort devant le champ de charge d'espace  $\vec{E}_{1r}$ . Ceci permet formellement, du point de vu mathématique, de traiter l'effet quadratique comme un effet linéaire. En effet, le développement limité (3.16) devient maintenant :

$$\left[ \eta(\vec{E}_0 + \vec{E}_{1r}) \right] = [\eta(0)] + [g]:(\vec{E}_0 + \vec{E}_{1r})(\vec{E}_0 + \vec{E}_{1r}) + \dots \quad (3.21)$$

Dans l'expression de ce développement limité apparaissent des termes proportionnels aux composantes du champ de charge d'espace  $\vec{E}_{1r}$ . Il s'agit de :

$$\Delta \eta_{ij} = 2 g_{ijkl} E_{1r,k} E_{0,\ell}. \quad (3.22)$$

En suivant les notations de l'équation (3.17), nous pouvons donc introduire un tenseur électro-optique Pockels "fictif"  $[r^K]$  induit par effet quadratique tel que :

$$r_{ijk}^K E_{1r,k} = 2 g_{ijkl} E_{1r,k} E_{0,\ell}, \quad (3.23)$$

$$\text{soit,} \quad r_{ijk}^K = 2 g_{ijkl} E_{0,\ell} \quad \text{ou} \quad [r^K] = 2[g]\vec{E}_0. \quad (3.24)$$

L'utilisation de l'équation (3.23) permet, au niveau du calcul, de transformer l'effet quadratique en effet linéaire ce qui nous ramène aux résultats du paragraphe précédent. Nous allons maintenant donner un exemple d'un tel calcul de tenseur  $[r^K]$ .

#### Exemple d'un matériau initialement électriquement isotrope

Le tenseur Kerr d'un matériau électriquement isotrope comporte 21 éléments non nuls. Les champs appliqué et de charge d'espace étant à la même fréquence nulle, nous avons en plus  $g_{ijkl} = g_{jikl}$  (symétrie de Kleinman). Tous ces coefficients dépendent donc les uns des autres :



$$\begin{cases} g_{xxxx} = g_{yyyy} = g_{zzzz} = 3g_{xxzz}, \\ g_{xxzz} = g_{yyzz} = g_{zzyy} = g_{zzxx} = g_{xxyy} = g_{yyxx} = g_{xxzz} = g_{yyzz} = g_{zyzy} = g_{zyzy} = g_{zxzx} \\ = g_{xzxz} = g_{xyxy} = g_{yxxy} = g_{yzyz} = g_{zyyz} = g_{zxxz} = g_{xzzx} = g_{xyyx} = g_{yxxy}. \end{cases} \quad (3.25)$$

Sans perte de généralité et étant donné que le matériau est isotrope, nous pouvons décider que le champ électrique est appliqué suivant la direction  $z$ ,  $\vec{E}_0 = E_0 \hat{z}$ . Seuls les coefficients suivants restent non nuls dans l'expression du tenseur  $[r^K] = 2[g]\vec{E}_0$  :

$$\begin{cases} r_{zzz} = 2g_{zzzz}E_0 \Rightarrow r_{33}, \\ r_{yyz} = 2g_{yyzz}E_0 = r_{xxz} = 2g_{xxzz}E_0 \Rightarrow r_{23} = r_{13}, \\ r_{yzy} = 2g_{yzyz}E_0 = r_{xzx} = 2g_{xzxz}E_0 \Rightarrow r_{42} = r_{51} = r_{13}, \\ r_{33} = 3r_{13}, \end{cases} \quad (3.26)$$

soit en notations contractées,

$$[r^K] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & 3r_{13} \\ 0 & r_{13} & 0 \\ r_{13} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}. \quad (3.27)$$

Nous remarquons que ce tenseur électro-optique est celui des matériaux de classe  $C_{\infty v}$ . Nous aurions donc pu tout aussi bien obtenir le résultat (3.27) en considérant que le matériau initialement isotrope auquel on applique un champ devient de la classe  $C_{\infty v}$ .

#### 3.4.4 Effet élasto-optique

Ainsi que nous l'avons souligné, pour traiter l'influence des effets mécaniques il faut tenir compte à la fois des déformations et des rotations. Nous pouvons écrire la modification de la matrice d'imperméabilité sous la forme :

$$[\Delta\eta] = [p'] [u] = ([p] + [p^{rot}]) [u] = [p] [u^{sym}] + [p^{rot}] [u^{antisym}]. \quad (3.28)$$

$[p]$  est le tenseur élasto-optique dont les valeurs sont généralement connues.  $[p^{rot}]$  est le tenseur roto-optique. Ses composantes sont calculables [75] avec la relation :

$$p_{ijkl}^{rot} = (\eta_{ii} - \eta_{jj}) (\delta_{ii} \delta_{jk} - \delta_{ik} \delta_{jj}) / 2. \quad (3.29)$$

Les valeurs de ces coefficients sont faibles dès que la biréfringence n'est pas trop forte de sorte qu'on peut souvent négliger sa contribution devant celle de  $[p]$ .

La perturbation à la matrice d'imperméabilité se calcule facilement dans le cas d'une figure de champ quasi-périodique en reportant l'expression (3.8) dans (3.28). Nous obtenons :

$$\Delta\eta_{ij} = p'_{ijkl} A_{kp}^{-1} e_{mnp} a_m a_n (E_1 e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + cc) / 2. \quad (3.30)$$

Ces effets mécaniques, équation (3.30), sont généralement une perturbation apportée à l'effet Pockels (équation (3.20)). Pour savoir s'il y a lieu de les prendre en compte, il est utile de comparer les coefficients électro-optiques à contraintes nulles et à déformations nulles. S'ils sont très proches on pourra négliger cette contribution mécanique. C'est vrai par exemple dans le *GaAs*. Par contre dans d'autres matériaux, par exemple *BaTiO<sub>3</sub>*, on ne peut pas négliger cette contribution qui est dans certaines configurations prépondérante et qui seule peut expliquer certaines observations [76]. Des expressions précalculées sont données dans la littérature pour seulement *BaTiO<sub>3</sub>* et *KNbO<sub>3</sub>* [73].

Ici encore nous pourrions facilement calculer la modification apportée par la composante uniforme du champ. Cependant le plus simple consiste à prendre les valeurs du tenseur

électro-optique  $[\mathbf{r}^{T=0}]$  linéaire à contraintes nulles et à calculer directement à partir de l'équation (3.20) la variation de permittivité due à la fois à l'effet électro-optique linéaire et aux déformations.

### 3.4.5 Modulation totale de la permittivité due à un réseau de champ

Quelle que soit l'origine de la variation de permittivité, nous pouvons toujours écrire de façon formelle :

$$\left[ \varepsilon_{\omega}^r(\vec{E}_0 + \vec{E}_{1,r}) \right] = \left[ \varepsilon_{\omega}^r \right] + \left[ \Delta \varepsilon_{\omega}^r(\vec{E}_{1,r}) \right] \text{ avec } \left[ \varepsilon_{\omega}^r \right] = \left[ \varepsilon_{\omega}^r(\vec{E}_0) \right]. \quad (3.31)$$

Dans le chapitre suivant, nous adopterons une approche perturbative. Nous considérerons que les ondes qui se propagent dans le matériau sont en première approximation les ondes propres en l'absence de champ photoréfractif mais en présence d'un éventuel champ appliqué. C'est la raison pour laquelle nous aurons besoin de connaître  $[\varepsilon_{\omega}^r]$ . Il faut noter que l'application d'un champ électrique uniforme peut significativement perturber la propagation des ondes en modifiant la symétrie du matériau. Ainsi un matériau optiquement isotrope peut devenir uniaxe voire biaxe.

La diffraction étant un processus linéaire, pour résoudre l'équation de propagation nous utiliserons les notations complexes du paragraphe 2.6.1. Quel que soit le processus responsable de la variation de permittivité, sa partie modulée est proportionnelle à  $\vec{E}_{1,r}$ . Nous pouvons donc réécrire la modulation de la permittivité diélectrique en tenant compte de la définition (3.15) :

$$\left[ \Delta \varepsilon_{\omega}^r(\vec{E}_1) \right] = 0, S \left( \left[ \delta \varepsilon_{\omega}^r \right] e^{i\vec{k}_r \cdot \vec{r}} + cc \right) \text{ avec } \left[ \delta \varepsilon_{\omega}^r \right] = - \left[ \varepsilon_{\omega}^r \right] \left[ r^{tot} \right] \left[ \varepsilon_{\omega}^r \right] E_1, \quad (3.32)$$

et,

$$r_{ij}^{tot} = r_{ijk} a_k + p_{ijkl} A_{kp}^{-1} e_{mpn} a_m a_n a_l. \quad (3.33)$$

Si l'effet élasto-optique est négligeable, le tenseur  $[r^{tot}]$  d'ordre 2 se réduit au produit du tenseur électro-optique  $[\mathbf{r}^{u=0}]$  d'ordre 3 avec le vecteur unitaire  $\hat{k}_r$ .

## 4. DIFFRACTION SUR UN RÉSEAU STATIQUE

### 4.1 Introduction

Jusqu'à présent, nous avons vu dans le chapitre 2 comment deux ondes optiques peuvent créer un réseau de champ électrique. Avec le chapitre 3, nous avons écrit les relations entre le champ électrique et la variation d'indice qu'il induit. Nous allons maintenant aborder les phénomènes de diffraction par un réseau d'indice photoréfractif. Nous regarderons dans ce chapitre les caractéristiques de la diffraction sur un réseau fixe, c'est-à-dire la diffraction d'une onde par un réseau préalablement induit dans un cristal photoréfractif. Cela correspondra aux expériences de mémoires optiques, interférométrie en temps réel, holographie dynamique, traitement d'images (tels que soustraction, division, convolution, corrélation ou extraction de contours, de caractères), opérations algébriques (produit vecteur-matrice), déflexion de faisceaux, interconnexions dynamiques.

Un réseau d'indice photoréfractif peut avoir une structure très complexe. La modulation d'indice peut être non uniforme et dépendre non seulement de la coordonnée  $x$  suivant le vecteur d'onde du réseau mais peut aussi varier suivant les deux autres directions  $y$  et  $z$  orthogonales. Nous verrons également que les franges peuvent être courbées. Les conditions aux limites dépendent de la géométrie du montage ce qui nous amène à distinguer les réseaux par transmission des réseaux par réflexion. Il n'existe aucune formule analytique générale qui rende compte des propriétés de tous ces réseaux. Seuls quelques cas particuliers conduisent à des solutions analytiques.

Plusieurs approches ont été développées pour calculer l'efficacité de diffraction. La première est basée sur la première approximation de Born, c'est-à-dire en négligeant dans le terme source de l'équation d'onde l'amplitude de l'onde diffractée devant celle de l'onde transmise [77]. Cette approximation n'est donc valable que pour de faibles efficacités de diffraction. Elle est néanmoins intéressante car elle s'applique à de nombreux dispositifs, comme aux mémoires holographiques pour lesquelles les efficacités de diffraction sont presque toujours inférieures à  $10^{-4}$ . Cette méthode présente aussi l'avantage de pouvoir effectuer des calculs dans des géométries variées et de bien visualiser les approximations effectuées dans les autres approches. Nous commencerons par présenter cette approche mais en nous limitant au cas le plus simple des matériaux optiquement isotropes.

Trois autres approches ont été développées pour calculer l'efficacité de diffraction sur un réseau stationnaire : l'approche des ondes couplées [78-80], l'approche modale [81] et la méthode de propagation des faisceaux [82]. Ces méthodes sont valables même pour des fortes efficacités. La méthode de propagation est une résolution numérique de l'équation d'onde scalaire. L'approche modale est un calcul direct des modes du milieu perturbé qui représentent les ondes propres pouvant se propager dans le milieu sans se déformer. L'efficacité de diffraction s'obtient en calculant le couplage entre des ondes optiques extérieures au milieu avec ces modes propres. Bien que rigoureusement exacte, cette approche est complexe et peu intuitive. L'approche des ondes couplées permet de mieux visualiser les phénomènes de diffraction. C'est une approche par perturbation dans laquelle on suppose que les ondes se propageant dans le milieu sont en première approximation égales aux ondes propres du milieu en l'absence de réseau. Ce réseau est traité comme une perturbation qui couple les ondes propres. Ces deux approches conduisent exactement aux mêmes résultats et sont rigoureusement équivalentes [79]. Cependant, les approximations usuellement faites pour obtenir des solutions analytiques peuvent conduire à des résultats légèrement différents [80].

Dans ce chapitre, nous considérons que le réseau d'indice n'est pas modifié par les ondes optiques. Pour prendre en compte dans les chapitres ultérieurs cette interaction entre le réseau et les ondes qui l'inscrivent, l'approche de calcul la plus naturelle est celle des ondes couplées restreinte aux deux ondes d'écriture. Nous exposerons donc, après avoir présenté l'approximation de Born, ce calcul à deux ondes couplées [78].

## 4.2 Efficacité de diffraction dans l'approximation de Born

### 4.2.1 Expression du champ diffracté

La première approximation de Born n'est valable que si les efficacités de diffraction sont suffisamment faibles pour pouvoir considérer que le faisceau de lecture n'est pas atténué durant sa propagation. Nous considérons ce faisceau comme étant une onde plane dont le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}_R^\omega = 0,5 \left[ A_R \hat{e}_R e^{-i(\omega t - \vec{k}_R \cdot \vec{r})} + c.c \right]. \quad (4.1)$$

Toutes les composantes de la modulation de permittivité sont supposées bien inférieures à  $n^2$  de sorte que cette onde de lecture est une onde propre du matériau en l'absence de réseau. Pour un matériau optiquement isotrope que nous considérons ici, son champ électrique vérifie donc l'équation de propagation du milieu non perturbé qui est :

$$\nabla^2 \vec{E}_R^\omega + k_R^2 \vec{E}_R^\omega = 0. \quad (4.2)$$

Par diffraction de cette onde sur le réseau, nous obtenons l'onde diffractée de champ électrique  $\vec{E}_S^\omega$ . La somme des ondes de lecture et diffractée vérifie l'équation d'onde du matériau perturbé. En prenant en compte le fait que le matériau est optiquement isotrope, et donc que les modules de leurs vecteurs d'onde sont identiques et valent  $\|\vec{k}_R\| = k$ , nous avons :

$$\nabla^2(\vec{E}_R^\omega + \vec{E}_S^\omega) = -k^2 \left( 1 + \frac{[\Delta \mathcal{E}_\omega^r(\vec{E}_1)]}{n^2} \right) (\vec{E}_R^\omega + \vec{E}_S^\omega). \quad (4.3)$$

Avec la première approximation de Born, c'est-à-dire en négligeant l'onde diffractée dans le terme source, et en tenant compte de (4.2), nous trouvons :

$$\nabla^2 \vec{E}_S^\omega + k^2 \vec{E}_S^\omega = -k^2 \frac{[\Delta \mathcal{E}_\omega^r(\vec{E}_1)]}{n^2} \vec{E}_R^\omega. \quad (4.4)$$

L'onde diffractée n'est généralement pas une onde plane. Nous l'écrivons sous la forme :

$$\vec{E}_S^\omega = 0,5 \left[ \iint_{\vec{k}_S \text{ tel que } \|\vec{k}_S\|=k} a_S e^{-i(\omega t - \vec{k}_S \cdot \vec{r})} \hat{e}_S d^2 \vec{k}_S + cc \right], \quad (4.5)$$

avec  $a_S$  les amplitudes des composantes d'ondes planes,  $\vec{k}_S$  leurs vecteurs d'onde et  $\hat{e}_S$  les vecteurs unitaires;  $a_S$  et  $\hat{e}_S$  dépendent de  $\vec{k}_S$ .

Nous allons comparer les amplitudes diffractées autour d'une même direction  $\hat{Z}$  de sorte que nous puissions utiliser l'approximation paraxiale et poser  $\vec{k} \cdot \hat{Z} \approx k$ . On commence par substituer l'équation (4.5) dans l'équation (4.4) puis on élimine les dérivées secondes avec l'approximation de l'enveloppe lentement variable. On multiplie ensuite tous les membres de l'équation ainsi obtenue par  $\exp(i\vec{k}_S' \cdot \vec{r})$ . Le résultat est intégré sur le plan  $(0, X, Y)$  perpendiculaire à l'axe  $\hat{Z}$  en tenant compte de la relation suivante sur les fonctions de Dirac :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\vec{k}_S - \vec{k}_S') \cdot \vec{r}} dX dY = 4\pi^2 \delta((\vec{k}_S - \vec{k}_S') \cdot \hat{X}) \delta((\vec{k}_S - \vec{k}_S') \cdot \hat{Y}). \quad (4.6)$$

En notant  $Vol$  le volume de l'hologramme et en prenant compte de la définition (3.32), une troisième intégration suivant  $Z$  nous donne les amplitudes  $a_S$  :

$$a_S = \frac{i}{16\pi^2} \frac{k}{n^2} \left[ \iiint_{Vol} \hat{e}_S^{*t} [\delta \mathcal{E}_\omega^r] \hat{e}_R A_R e^{i(\vec{k}_R + (\vec{k}_R - \vec{k}_S)) \cdot \vec{r}} d^3 \vec{r} + \iiint_{Vol} \hat{e}_S^{*t} [\delta \mathcal{E}_\omega^r]^* \hat{e}_R A_R e^{i(-\vec{k}_R + (\vec{k}_R - \vec{k}_S)) \cdot \vec{r}} d^3 \vec{r} \right]. \quad (4.7)$$

Cette expression (4.7) est valable quel que soit l'axe  $\hat{Z}$  choisi, quels que soient la polarisation de l'onde et le volume occupé par le réseau. Si plusieurs réseaux sont présents, ou si celui-ci est non harmonique, il faut faire la somme de toutes les composantes diffractées sur toutes ces harmoniques.

En dépit de toutes les approximations effectuées, l'équation (4.7) permet de tirer plusieurs caractéristiques du processus de diffraction.

- Il existe deux ordres de diffraction,  $\pm 1$ , qui correspondent aux deux intégrales. L'absence d'ordre de diffraction supérieur provient de nos hypothèses; d'une part du choix d'un réseau de permittivité sinusoïdal; d'autre part de la limitation aux efficacités de diffraction faibles et de la non prise en compte de la rediffraction des ordres diffractés (ce qui est l'approximation de Born).
- L'efficacité de diffraction est maximale lorsque la condition d'accord de Bragg est vérifiée, c'est-à-dire pour :

$$\begin{cases} \vec{k}_R - \vec{k}_S = -\vec{k}_r & \text{pour l'ordre } -1, \\ \vec{k}_R - \vec{k}_S = \vec{k}_r & \text{pour l'ordre } +1. \end{cases} \quad (4.8)$$

Les faisceaux d'écriture vérifient donc la condition de Bragg dans un matériau optiquement isotrope; nous verrons le pourquoi de cette restriction ultérieurement. Dans ce qui suit, nous nous placerons toujours au voisinage de l'accord de Bragg pour l'ordre  $+1$ . Avec les matériaux

épais que nous considérerons, nous pourrions ainsi toujours négliger l'énergie diffractée dans l'ordre -1. À partir de maintenant, nous ne prenons en compte que la seconde intégrale (ordre +1) de l'équation (4.7).

Nous allons revenir plus en détail sur cette condition de Bragg avant d'analyser l'évolution des composantes  $a_s$  en fonction de  $\vec{k}_s$  (champ lointain) et de  $\vec{k}_r$ .

#### 4.2.2 Condition de Bragg et dégénérescence conique

Pour un réseau de vecteur d'onde  $\vec{k}_r$  donné il existe une infinité de couples d'ondes de vecteurs d'onde  $\vec{k}_r$  et  $\vec{k}_s$  qui vérifient la condition d'accord de Bragg (4.8). C'est ce que l'on appelle la dégénérescence de Bragg. L'ensemble des vecteurs d'onde  $\vec{k}_r$  qui vérifient cette condition définit un cône de dégénérescence (voir figure 9). C'est pourquoi on se réfère aussi à la dégénérescence de Bragg en parlant de "diffraction conique".

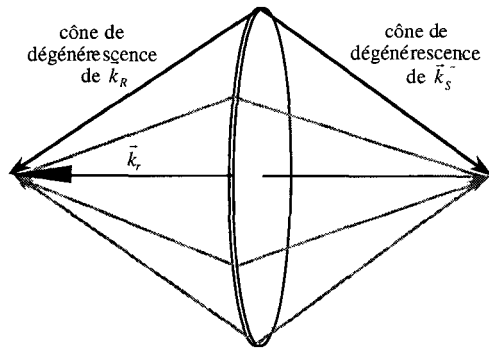


Figure 9 : Cônes de diffraction pour les vecteurs d'onde de l'onde de lecture et de l'onde diffractée.

#### 4.2.3 Expression de l'amplitude diffractée

Les intégrales de l'équation (4.7) peuvent être calculées sur des volumes de formes quelconques et également pour une onde de lecture non plane [83]. Afin de fixer les idées, nous considérons la géométrie de la figure 10 pour laquelle les faisceaux d'enregistrement définissent le volume de l'hologramme. Le faisceau de référence recouvre totalement le faisceau signal dont la section est beaucoup plus petite que la face d'entrée du matériau photoréfractif. Le faisceau de référence peut entrer par une face autre que celle,  $z$ , par laquelle rentre le faisceau signal. Pour calculer l'amplitude diffractée par un tel hologramme, nous considérons que l'hologramme ainsi enregistré est un parallélépipède ce qui est vrai si on peut négliger la diffraction des ondes d'écriture lors de leur propagation dans le matériau et les considérer comme étant planes. Pour cela il suffit que les cotés de la projection  $a, b$  de la section du faisceau signal sur le plan  $(0, x, y)$  soient beaucoup plus grands que la longueur d'onde : ( $b \gg \lambda$  et  $a \gg \lambda$ ).

Les vecteurs d'onde de ces ondes d'écriture sont notés  $\vec{k}_r^{éc}$  et  $\vec{k}_s^{éc}$  de sorte que le vecteur d'onde du réseau inscrit est  $\vec{k}_r = \vec{k}_r^{éc} - \vec{k}_s^{éc}$ . Tous les vecteurs d'onde sont repérés par les deux angles  $\theta$  et  $\varphi$  comme indiqué sur la figure 10 pour  $\vec{k}_s$  :

$$\vec{k}_s = \frac{2\pi}{\lambda} (\sin \varphi_s, \cos \varphi_s \sin \theta_s, \cos \varphi_s \cos \theta_s). \quad (4.9)$$

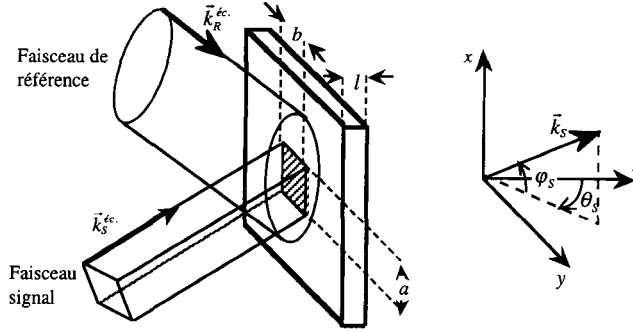


Figure 10 : Géométrie d'enregistrement prise pour effectuer les calculs.

Pour cette géométrie, la solution de l'équation (4.7) est analytique et proportionnelle à :

$$a_s \propto \text{sinc} \left[ \frac{a}{2} (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{x} \right] \cdot \text{sinc} \left[ \frac{b}{2} (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{y} \right] \cdot \text{sinc} \left[ \frac{l}{2} (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \frac{\vec{k}_S^{\text{éc.}}}{k_S^{\text{éc.}}} \right], \quad (4.10)$$

avec  $l = l / \cos \varphi_S \cos \theta_S$  la longueur d'interaction et le coefficient de proportionnalité qui se calcule aisément à partir de (4.7).

Il convient de garder à l'esprit que l'équation (4.10) n'est qu'une approximation obtenue en négligeant les effets de diffraction lors de la propagation des faisceaux dans le matériau. De plus, les autres géométries d'enregistrement (par exemple si les faisceaux d'écriture recouvrent totalement le matériau) conduisent à des expressions légèrement différentes. Les trois sinus cardinaux de cette équation expriment la diffraction par les trois dimensions finies de l'hologramme; les deux premiers par l'ouverture d'entrée et le dernier par l'épaisseur. Nous allons maintenant détailler les sélectivités angulaire et en longueur d'onde des hologrammes de volume qui résultent de ce dernier terme.

#### 4.2.4 Sélectivité angulaire des hologrammes de volume

Nous considérons ici que toutes les ondes sont à la même longueur d'onde et nous recherchons la distribution de l'amplitude à l'infini et au voisinage de l'angle de Bragg. Pour cela, nous calculons les amplitudes des composantes  $a_s$  qui possèdent un vecteur d'onde  $\vec{k}_S$  voisin de  $\vec{k}_S^{\text{éc.}}$ . Afin de simplifier les équations, nous posons  $\varphi_R \approx \varphi_S \approx 0$  puis, pour effectuer un développement limité, nous introduisons :

$$\Delta \theta_{S,R} = \theta_{S,R} - \theta_{S,R}^{\text{éc.}}, \quad \Delta \varphi_{S,R} = \varphi_{S,R} - \varphi_{S,R}^{\text{éc.}} \quad \text{avec} \quad \theta_{S,R}^{\text{éc.}} \approx \theta_{S,R}, \quad \varphi_{S,R}^{\text{éc.}} \approx \varphi_{S,R}. \quad (4.11)$$

Nous obtenons alors :

$$\begin{cases} (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{x} = \frac{2\pi}{\lambda} (\Delta \varphi_R - \Delta \varphi_S), \\ (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{y} = \frac{2\pi}{\lambda} (\Delta \theta_R \cos \theta_R - \Delta \theta_S \cos \theta_S), \\ (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{z} = \frac{2\pi}{\lambda} (-\Delta \theta_R \sin \theta_R + \Delta \theta_S \sin \theta_S). \end{cases} \quad (4.12)$$

En reportant ces expressions dans l'équation (4.10), nous trouvons :

$$a_s \propto \text{sinc} \left[ \frac{a\pi}{\lambda} (\Delta \varphi_R - \Delta \varphi_S) \right] \cdot \text{sinc} \left[ \frac{b\pi}{\lambda} (\Delta \theta_R \cos \theta_R - \Delta \theta_S \cos \theta_S) \right] \cdot \text{sinc} \left[ \frac{l\pi}{\lambda} \frac{\Delta \theta_R \sin(\theta_S - \theta_R)}{\cos \theta_S} \right]. \quad (4.13)$$

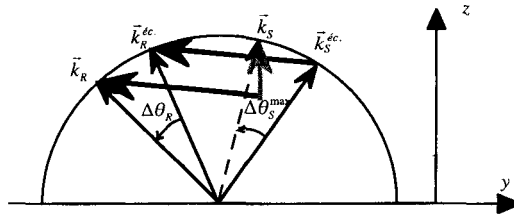
La répartition de l'amplitude diffractée suivant  $\theta_s$  et  $\varphi_s$  dépend donc des paramètres  $\Delta\theta_R$  et  $\Delta\varphi_R$  du faisceau de lecture.

Le premier sinus cardinal est le seul qui dépend de  $\Delta\varphi_R$  et de  $\Delta\varphi_s$ . Nous en déduisons que la valeur du maximum de l'amplitude diffractée ne dépend pas de  $\Delta\varphi_R$  et que ce maximum est toujours situé à  $\Delta\varphi_s = \Delta\varphi_R$ , ce qui est équivalent à la conservation de la composante tangentielle des vecteurs d'onde suivant l'axe  $\hat{x}$ ,  $(\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{x} = 0$ . Nous retrouvons le phénomène de dégénérescence conique dont nous avons parlé dans le paragraphe 4.2.2.

Le second sinus cardinal est le seul qui dépend à la fois de  $\Delta\theta_R$  et de  $\Delta\theta_s$ . Pour cette géométrie d'enregistrement, le maximum de l'amplitude diffractée est obtenu lorsque l'argument de ce sinus cardinal est égal à zéro, c'est-à-dire pour l'angle d'observation suivant :

$$\Delta\theta_s^{\max} = \Delta\theta_R \cos\theta_R / \cos\theta_s. \quad (4.14)$$

Cela correspond à la conservation de la composante tangentielle des vecteurs d'onde suivant l'axe  $\hat{y}$ ,  $(\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{y} = 0$ , comme illustré sur la figure 11. Il convient de noter que la position de ce maximum dépend de la géométrie exacte d'enregistrement et de lecture [83]. Pour d'autres géométries ce maximum peut correspondre à la conservation de la composante normale des vecteurs d'onde.

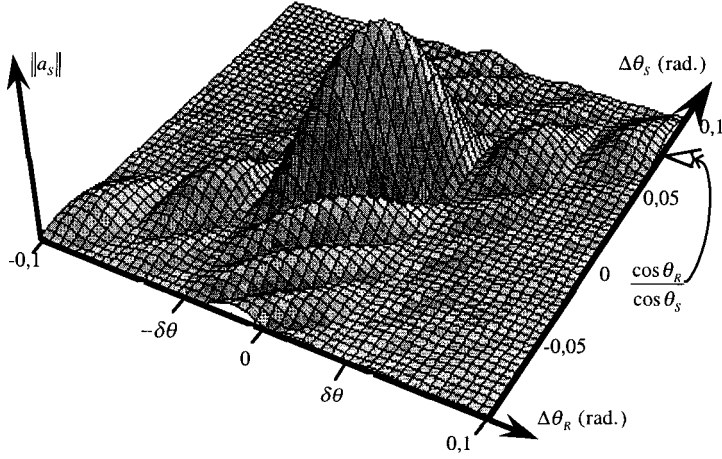


**Figure 11** : Diagramme des vecteurs d'onde illustrant la position du maximum de diffraction pour la géométrie de la figure 10. Les flèches en gras représentent le vecteur d'onde du réseau inscrit.

Le dernier sinus cardinal ne dépend que du désaccord  $\Delta\theta_R$ . Il définit la sélectivité angulaire de Bragg. Pour illustrer ce phénomène, nous avons représenté sur la figure 12 l'évolution du module  $\|a_s\|$  de l'amplitude diffractée en fonction des deux angles  $\Delta\theta_R$  et  $\Delta\theta_s$ . Le maximum d'efficacité de diffraction est obtenu pour  $\Delta\theta_R = 0$ . Lorsque l'on accroît le désaccord à l'angle de Bragg,  $\Delta\theta_R$ , l'efficacité de diffraction s'annule une première fois pour tous les angles d'observation  $\Delta\theta_s$  lorsque le module du désaccord à Bragg est égal à la sélectivité angulaire de Bragg :

$$\delta\theta = \frac{\lambda}{l} \frac{\cos\theta_s}{\sin(\theta_R - \theta_s)}. \quad (4.15)$$

La plus forte sélectivité angulaire ( $\delta\theta$  minimum) est donc obtenue dans la géométrie dite à  $90^\circ$ , c'est-à-dire lorsque les deux faisceaux forment un angle droit. Une fois encore, il faut garder à l'esprit que l'expression (4.15) de la sélectivité de Bragg dépend de la géométrie exacte d'enregistrement, c'est-à-dire de la forme du volume de l'hologramme.



**Figure 12 :** Évolution du module de l'amplitude diffractée en fonction de la direction d'observation,  $\Delta\theta_s$ , et de la direction du faisceau de lecture,  $\Delta\theta_r$ . Ce diagramme est tracé pour  $\theta_r = 40^\circ$ ,  $\theta_s = -20^\circ$ ,  $\lambda/b = 0,025$ ,  $\lambda/l = 0,033$ .

#### 4.2.5 Sélectivité en longueur d'onde des hologrammes de volume

Pour calculer la sélectivité en longueur d'onde des hologrammes de volume, nous reprenons une démarche par développement limité. L'hologramme est inscrit à la longueur d'onde  $\lambda^{éc}$  avec des faisceaux repérés par les angles  $(\theta_R^{éc}, \varphi_R^{éc} = 0)$  et  $(\theta_S^{éc}, \varphi_S^{éc} = 0)$ . Il est relu à la longueur d'onde  $\lambda = \lambda^{éc} + \Delta\lambda$  par un faisceau se propageant suivant la même direction que le faisceau d'écriture, soit  $\theta_R = \theta_R^{éc}$ ,  $\varphi_R = \varphi_R^{éc} = 0$ . Nous recherchons à l'aide d'un développement limité en  $\Delta\lambda$ ,  $\Delta\theta_s$  et  $\Delta\varphi_s$  l'expression de l'amplitude diffractée à l'infini. Nous avons :

$$\vec{k}_R - \vec{k}_R^{éc} = -\frac{2\pi\Delta\lambda}{\lambda^2} \begin{vmatrix} 0 \\ \sin\theta_R \\ \cos\theta_R \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{k}_S - \vec{k}_S^{éc} = -\frac{2\pi\Delta\lambda}{\lambda^2} \begin{vmatrix} 0 \\ \sin\theta_S + \frac{2\pi}{\lambda} \Delta\varphi_S \\ \cos\theta_S \end{vmatrix} - \frac{2\pi}{\lambda} \begin{vmatrix} \Delta\varphi_S \\ \cos\theta_S \Delta\theta_S \\ -\sin\theta_S \Delta\theta_S \end{vmatrix} \quad (4.16)$$

En reportant ces expressions dans l'équation (4.10) nous obtenons l'expression de  $a_s$ . Celle-ci est encore constituée du produit de trois sinus cardinaux. Nous pourrions également tracer l'évolution de  $a_s$  dans le plan  $\Delta\lambda$  et  $\Delta\theta_s$  et montrer qu'un changement de longueur d'onde entraîne un déplacement du maximum de diffraction en  $\Delta\theta_s$ . Ce phénomène est bien connu dans les hologrammes minces et est responsable des aberrations obtenues lors de la relecture d'hologrammes à une longueur d'onde différente de celle d'écriture. Le troisième sinus cardinal ne dépend que de  $\Delta\lambda$ . L'efficacité de diffraction s'annule une première fois, quelle que soit la direction d'observation  $\Delta\theta_s$ , lorsque  $\Delta\lambda$  est égal à  $\pm \delta\lambda$  la sélectivité angulaire en longueur d'onde. Celle-ci est égale à :

$$\frac{\delta\lambda}{\lambda} = \frac{\lambda}{l} \frac{\cos\theta_S}{1 - \cos(\theta_R - \theta_S)} \quad (4.17)$$

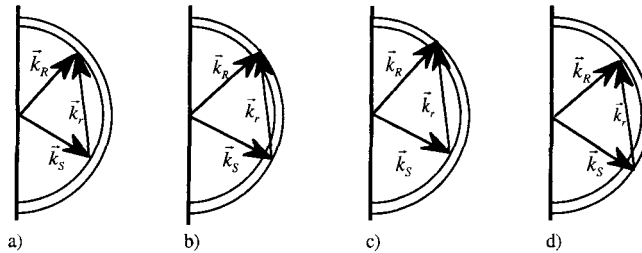
La sélectivité en longueur d'onde est donc la plus forte dans la géométrie contrepropagante, c'est-à-dire pour  $\theta_R - \theta_S = \pi$ .



### 4.3 Diffraction anisotrope et isotrope

L'approche précédente aurait pu être étendue sans difficulté à milieu optiquement anisotrope. Nous aurions alors mis en évidence 4 processus de diffraction suivant qu'une onde propre se diffracte en une onde de même polarisation ou en une onde de polarisation orthogonale (voir figure 13). On parle de processus de diffraction isotrope et anisotrope. Il est important de noter que l'angle d'incidence qui permet de vérifier la condition d'accord de Bragg est en général différent pour les quatre processus de diffraction.

D'après les lois de Snell-Descartes, nous savons qu'une onde incidente sur le matériau donne généralement naissance à deux ondes propres polarisées orthogonalement. Pour chacune de ces ondes et compte tenu des ordres de diffraction +1 et -1, nous avons en tout huit processus de diffraction soit huit angles de Bragg. Très souvent, les symétries du matériau et du montage rendent certains de ces angles égaux ce qui simplifie grandement l'analyse.



**Figure 13 :** a) et b) sont les deux processus de diffraction isotropes et c) et d) les deux processus anisotropes. Seuls les ordres de diffraction +1 sont représentés.

Les efficacités de diffraction selon chacun de ces différents processus de diffraction ne sont pas forcément égales. Elles dépendent du coefficient de proportionnalité en facteur de  $a_s$  que nous n'avons pas écrit pour l'instant. Elles peuvent très bien être nulles pour certains processus et non nulles pour d'autres. Nous allons maintenant calculer ces coefficients de couplage avec l'approche des ondes couplées.

### 4.4 Théorie des ondes couplées à deux ondes

#### 4.4.1 Dérivation des équations couplées

Le calcul précédent n'était valable que pour des faibles efficacités de diffraction. Nous allons maintenant étudier le cas où les efficacités de diffraction peuvent être fortes. Comme nous l'avons souligné dans l'introduction, il existe des approches exactes pour calculer ces efficacités de diffraction, par exemple l'approche des ondes couplées. Néanmoins, pour avoir des formules analytiques, nous prenons cette approche des ondes couplées mais restreinte à deux ondes, l'onde de lecture et l'ordre diffracté +1. Cette formulation donne d'excellents résultats si l'on se place au voisinage de l'angle de Bragg pour cet ordre +1 et dans des matériaux épais pour lesquels on peut négliger l'énergie diffractée dans tous les autres ordres. Par rapport à une approche exacte, les erreurs commises dépassent rarement 10% [80]. De plus elle sera aisément modifiable pour tenir compte ultérieurement de la cinétique du réseau photoréfractif.

Nous ne considérons que les configurations où la face d'entrée de l'hologramme est infinie, c'est-à-dire que  $a, b \gg l$ . Cet hologramme est de plus supposé uniforme dans tout le volume du matériau. Ces restrictions sont essentielles pour avoir des formules analytiques. Néanmoins, l'approche des ondes couplées peut également être effectuée numériquement dans

des configurations plus compliquées. Par exemple les réseaux non uniformes avec des profils arbitraires sont étudiés dans la référence [84]. Les réseaux d'indices atténués le long de la direction perpendiculaire au vecteur d'onde du réseau sont analysés dans la référence [85]. Contrairement à la plupart des calculs effectués avec les ondes couplées, nous prenons en compte ci-dessous l'anisotropie optique du matériau. Cette analyse est inspirée de la référence [38]. Nous ne traitons que les matériaux sans absorption; l'influence de celle-ci étant analysée dans cette même référence [38].

Afin de se limiter à une approche à deux ondes, l'onde incidente de vecteur champ électrique  $\vec{E}_R^\omega$  et l'onde diffractée de vecteur champ électrique  $\vec{E}_S^\omega$ , nous ne considérons qu'un seul processus de diffraction, indifféremment un processus de diffraction isotrope ou anisotrope. Par hypothèse, l'onde  $\vec{E}_R^\omega$  est une onde propre du milieu en l'absence de réseau. Nous la prenons plane. Nous faisons également l'hypothèse que l'onde  $\vec{E}_S^\omega$  est une onde propre du matériau en l'absence de perturbation (i.e. d'hologramme). Par symétrie, cette onde diffractée est également plane. On retrouve ce résultat à partir de l'équation (4.10) : si  $a, b \approx \infty$ , toutes les composantes  $a_s$  sont nulles sauf celle vérifiant la condition de conservation suivante :

$$(\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{x} = (\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r) \cdot \hat{y} = 0. \quad (4.18)$$

La longueur d'onde étant fixée,  $a_s$  est non nulle pour un unique vecteur d'onde  $\vec{k}_s$ , il s'agit donc bien d'une onde plane. Le vecteur d'onde  $\vec{k}_s$  est donc défini par la condition (4.18), c'est-à-dire par la conservation des composantes tangentielles des vecteurs d'onde (voir figure 11). La polarisation de l'onde diffractée est une des deux polarisations propres possibles, celle associée à  $\vec{k}_s$ . Cette onde diffractée  $\vec{E}_S^\omega$  se diffracte à son tour sur le réseau. Étant donné que nous ne considérons qu'un seul processus de diffraction, cette seconde diffraction redonne l'onde initiale. Si des processus de diffraction isotrope et de diffraction anisotrope interviennent simultanément, il faudrait faire intervenir dans l'analyse au moins deux ondes de polarisations orthogonales dans chacun des ordres 0 et 1. Si en plus l'onde incidente sur le matériau a une polarisation quelconque alors elle se décompose en deux ondes propres dans le milieu ce qui nous donne généralement huit composantes de polarisation à considérer. L'analyse suivante qui ne considère qu'un seul processus de diffraction peut très simplement être généralisée aux cas les plus compliqués.

Nous cherchons donc à écrire la propagation de deux ondes planes :

$$\vec{E}_{R,S}^\omega = 0,5 \left[ A_{R,S} \hat{e}_{R,S} e^{-i(\omega t - \vec{k}_{R,S} \cdot \vec{r})} + cc \right]. \quad (4.19)$$

Nous nous plaçons au voisinage de la condition d'accord de Bragg (4.8) et nous introduisons la notion de mesure de déphasage  $\vec{\delta k}$  par rapport à l'angle de Bragg :

$$\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r = \vec{\delta k} = \delta k \hat{z}, \quad (4.20)$$

qui est normale à la face d'entrée et donc suivant l'axe  $\hat{z}$  d'après (4.18).

Dans beaucoup d'analyses [78], le vecteur  $\vec{k}_s$  est défini par la relation  $\vec{k}_R - \vec{k}_S - \vec{k}_r = \vec{0}$  qui n'est alors pas la condition d'accord de Bragg car, avec cette autre définition,  $\vec{k}_s$  n'est pas le vecteur d'onde de l'onde diffractée. On retrouve néanmoins à la fin des calculs le facteur de phase  $\exp(i\delta \vec{k} \cdot \vec{r})$  dans l'expression de  $A_s$ . Si les équations se dérivent différemment, les résultats sont bien sûr identiques pour toutes les définitions possibles de  $\vec{k}_s$ .

Les deux ondes vérifient l'équation de propagation. En posant  $\vec{E}^\omega = \vec{E}_R^\omega + \vec{E}_S^\omega$ , nous avons :

$$\vec{\text{rot}} \vec{\text{rot}} \vec{E}^\omega = -\mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( \left[ \epsilon_r^r (\vec{E}_0 + \vec{E}_{1,r}) \right] \vec{E}^\omega \right). \quad (4.21)$$

Contrairement à l'approche que nous avons suivie pour arriver à l'équation (4.3) nous ne négligeons pas les termes en divergence ici. Cela alourdit très légèrement les calculs mais permettra de savoir quelle est l'approximation que l'on fera lorsqu'on négligera la biréfringence du matériau. Le lecteur peut s'amuser à poursuivre les calculs en négligeant cette biréfringence linéaire ce qui revient à poser  $\hat{e}_R^{*t} \hat{k}_R = \hat{e}_S^{*t} \hat{k}_S = \vec{0}$  ci-dessous. Pour réécrire l'équation (4.21), nous tenons compte de la relation suivante sur les opérateurs "nabla" :

$$\vec{\nabla} \wedge (f \vec{V}) = (\vec{\nabla} f) \wedge \vec{V} + f (\vec{\nabla} \wedge \vec{V}), \quad (4.22)$$

et nous calculons,

$$\begin{aligned} \vec{\text{rot}} \vec{E}_R^\omega = \frac{1}{2} e^{-i(\omega \vec{r} - \vec{k}_R \cdot \vec{r})} & \left[ \vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge (A_R \hat{e}_R)) - i (\vec{\nabla} \wedge (A_R \hat{e}_R)) \wedge \vec{k}_R \right. \\ & \left. - i \vec{\nabla} \wedge (A_R \hat{e}_R \wedge \vec{k}_R) - (A_R \hat{e}_R \wedge \vec{k}_R) \wedge \vec{k}_R \right] + cc. \end{aligned} \quad (4.23)$$

Une expression similaire serait obtenue pour  $\vec{E}_S^\omega$ .

Pour résoudre l'équation de propagation, nous effectuons les hypothèses suivantes.

- i) Considérant que  $A_R$  et  $A_S$  évoluent lentement sur une échelle de la longueur d'onde, on fait l'approximation de l'enveloppe lentement variable permettant de négliger les termes en dérivés secondes, c'est-à-dire le premier terme du membre de droite de l'équation (4.23).
- ii) On tient également compte de ce que les évolutions temporelles de  $\varepsilon_\omega^r$  et de  $A_{R,S}$  sont faibles sur une période de l'onde optique. Le membre de droite de l'équation de propagation (4.21) devient :

$$\frac{\omega^2}{c^2} \left[ \varepsilon_\omega^r (\vec{E}_0 + \vec{E}_{1,r}) \right] \vec{E}^\omega. \quad (4.24)$$

On peut alors réécrire l'équation de propagation en remarquant qu'en l'absence de réseau, les trois premiers termes du membre de droite de l'équation (4.23) s'annulent. Étant donné que le vecteur d'onde est celui d'une onde propre en l'absence de réseau nous pouvons écrire avec la définition (3.31) et en égalisant les équations (4.24) avec (4.23) :

$$-\left( \hat{e}_{R,S} \wedge \vec{k}_{R,S} \right) \wedge \vec{k}_{R,S} = \frac{\omega^2}{c^2} \left[ \varepsilon_\omega^r \right] \hat{e}_{R,S}. \quad (4.25)$$

Il ne nous reste donc que deux termes à calculer dans l'équation (4.23). Nous les exprimons à l'aide de la formule (4.22) :

$$\begin{cases} (\vec{\nabla} \wedge (A_R \hat{e}_R)) \wedge \vec{k}_R = (\vec{k}_R^t \vec{\nabla} A_R) \hat{e}_R - (\hat{e}_R^t \vec{k}_R) \vec{\nabla} A_R, \\ \vec{\nabla} \wedge (A_R \hat{e}_R \wedge \vec{k}_R) = (\vec{k}_R^t \vec{\nabla} A_R) \hat{e}_R - (\hat{e}_R^t \vec{\nabla} A_R) \vec{k}_R. \end{cases} \quad (4.26)$$

Dans l'équation de propagation, nous ne gardons que les termes oscillant à la fréquence  $\omega$ . Nous regroupons ensuite les termes en accord de phase, c'est-à-dire d'une part ceux se propageant avec un vecteur d'onde voisin de  $\vec{k}_R$  et d'autre part ceux ayant un vecteur d'onde voisin de  $\vec{k}_S$ . Nous effectuons alors le produit matriciel de la première équation avec  $\hat{e}_R^{*t}$  et de la seconde avec  $\hat{e}_S^{*t}$ . Les équations couplées ainsi obtenues sont :

$$\begin{cases} \left[ \vec{k}_R^t - (\hat{e}_R^t \vec{k}_R) \hat{e}_R^{*t} \right] \vec{\nabla} A_R = \frac{i\omega^2}{4c^2} \left( \hat{e}_R^{*t} [\delta \varepsilon_\omega^r] \hat{e}_S \right) A_S e^{-i\delta \vec{k} \cdot \vec{r}}, \\ \left[ \vec{k}_S^t - (\hat{e}_S^t \vec{k}_S) \hat{e}_S^{*t} \right] \vec{\nabla} A_S = \frac{i\omega^2}{4c^2} \left( \hat{e}_S^{*t} [\delta \varepsilon_\omega^r] \hat{e}_R \right) A_R e^{i\delta \vec{k} \cdot \vec{r}}. \end{cases} \quad (4.27)$$

Pour simplifier ces équations, nous introduisons les indices  $n_R$  et  $n_S$  vus par les ondes en l'absence de réseau :

$$\|\vec{k}_R\| = \frac{\omega}{c} n_R \quad \text{et} \quad \|\vec{k}_S\| = \frac{\omega}{c} n_S. \quad (4.28)$$

Nous introduisons également les vecteurs unitaires  $\vec{p}_{R,S}$  suivant les vecteurs de Poynting qu'auraient les deux ondes en l'absence de réseau :

$$\vec{p}_{R,S} = \hat{k}_{R,S} - (\hat{e}_{R,S} \cdot \hat{k}_{R,S}) \hat{e}_{R,S}^* = (\hat{e}_{R,S} \wedge \hat{k}_{R,S}) \wedge \hat{e}_{R,S}^* \text{ avec } \hat{k}_{R,S} = \vec{k}_{R,S} / \|\vec{k}_{R,S}\|. \quad (4.29)$$

Pour un milieu isotrope, nous retrouvons  $\vec{p}_{R,S} = \hat{k}_{R,S}$ .

Ces nouvelles notations nous permettent de simplifier l'écriture des équations couplées (4.27). En remarquant que d'après la symétrie du système (matériau infini suivant les directions  $x$  et  $y$ ) les amplitudes des ondes ne peuvent dépendre que de la coordonnée  $z$ , nous pouvons écrire :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_R}{\partial z} = \frac{i\omega}{4n_R c (\hat{z} \cdot \vec{p}_R)} (\hat{e}_R^{*t} [\delta \mathcal{E}_\omega^r] \hat{e}_S) A_S e^{-i\delta k z}, \\ \frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{i\omega}{4n_S c (\hat{z} \cdot \vec{p}_S)} (\hat{e}_S^{*t} [\delta \mathcal{E}_\omega^r]^* \hat{e}_R) A_R e^{i\delta k z}. \end{cases} \quad (4.30)$$

Ces équations couplées sont valables pour des réseaux par transmission ou réflexion, dans des matériaux anisotropes ou isotropes pour lesquels on peut simplifier les écritures en remplaçant  $\vec{p}_{R,S}$  par  $\hat{k}_{R,S}$ . Elles s'appliquent aussi quelle que soit l'origine de la variation de permittivité tant que l'amplitude de la modulation reste faible devant la composante continue.

Nous simplifions encore l'écriture en introduisant le coefficient électro-optique effectif  $r_{\text{eff}}^{RS}$  défini par :

$$r_{\text{eff}}^{RS} = r_{\text{eff}}^{SR*} = \frac{\hat{e}_R^{*t} [\mathcal{E}_\omega^r] [r^{tot}] [\mathcal{E}_\omega^r] \hat{e}_S}{n_R^2 n_S^2}. \quad (4.31)$$

$[r^{tot}]$  est défini par l'équation (3.33). Dans la littérature on trouve souvent ce coefficient effectif défini en notations tensorielles; l'écriture en est identique sauf que le signe de transposition est omis. Dans cette notation, nous avons inclus l'exposant  $^{RS}$  pour souligner que ce coefficient dépend des polarisations des deux ondes. Comme nous l'avons souligné dans le paragraphe 4.3, les deux ondes peuvent avoir la même polarisation ou avoir des polarisations orthogonales.

Dans certains articles, on trouve une définition différente pour le coefficient électro-optique effectif. Il s'agit de la variation de permittivité vue par les ondes qui est proportionnelle à la puissance quatrième de l'indice :

$$r_{\text{eff}}^{RS} = r_{\text{eff}}^{SR*} = \hat{e}_R^{*t} [\mathcal{E}_\omega^r] [r^{tot}] [\mathcal{E}_\omega^r] \hat{e}_S. \quad (4.32)$$

Il serait plus logique de nommer ce dernier coefficient "coefficient effectif de susceptibilité non-linéaire" (voir équation (3.32)). Étant donné que la définition (4.31) est plus correcte, c'est celle que nous emploierons.

En tenant compte de la définition du coefficient électro-optique effectif, le système (4.30) peut se réécrire :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_R}{\partial z} = \frac{-i\omega n_R n_S^2}{4c (\hat{z} \cdot \vec{p}_R)} r_{\text{eff}}^{RS} E_1 A_S e^{-i\delta k z}, \\ \frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{-i\omega n_S n_R^2}{4c (\hat{z} \cdot \vec{p}_S)} r_{\text{eff}}^{SR*} E_1^* A_R e^{i\delta k z}. \end{cases} \quad (4.33)$$

Dans un processus de diffraction on peut toujours prendre l'origine des phases telle que le produit  $r_{\text{eff}}^{RS} E_1$  soit réel ; ce n'est plus vrai dans un mélange d'ondes pour lequel le réseau est dynamique et n'est donc pas fixe. Sur les équations (4.33), nous retrouvons alors le fait connu, que l'onde diffractée sur un réseau d'indice possède une avance de phase de  $\pi/2$  par rapport à

l'onde incidente. Elle possède un déphasage supplémentaire si la diffraction s'effectue hors de la condition de Bragg, c'est-à-dire si  $\delta k$  est non nul.

#### 4.4.2 Expression de l'efficacité de diffraction

##### 4.4.2.1 Dans un milieu anisotrope

Le système (4.33) peut être résolu pour différentes conditions aux limites. Les résultats pour les réseaux par réflexion sont donnés dans la référence [38]. Nous ne donnons ici le résultat que pour un réseau par transmission, c'est-à-dire que les conditions aux limites sont  $A_S(z=0) = 0$  et  $A_R(z=0) \neq 0$ .

L'expression de l'efficacité de diffraction  $\eta$  dépend légèrement de la définition choisie. Nous revenons à la définition des vecteurs de Poynting. Pour des ondes planes, nous avons :

$$\vec{\Pi}_{R,S} = A_{R,S} A_{R,S}^* n_{R,S} c \varepsilon_0 \vec{p}_{R,S} / 2 . \quad (4.34)$$

Nous définissons l'efficacité de diffraction comme étant le rapport du flux des vecteurs de Poynting au travers une surface normale à l'axe  $\hat{z}$ , soit [38] :

$$\eta = \frac{(\vec{\Pi}_S \cdot \hat{z})_{z=l}}{(\vec{\Pi}_R \cdot \hat{z})_{z=0}} = \frac{A_S(l) A_S^*(l) n_S (\vec{p}_S \cdot \hat{z})}{A_R(0) A_R^*(0) n_R (\vec{p}_R \cdot \hat{z})} , \quad (4.35)$$

avec  $l$  l'épaisseur du matériau suivant l'axe  $\hat{z}$ .

Nous obtenons :

$$\eta = v^2 \left[ \frac{\sin(v^2 + \xi^2)^{1/2}}{(v^2 + \xi^2)^{1/2}} \right]^2 , \quad (4.36)$$

avec

$$v = \frac{\omega}{4c} n_R n_S \|r_{eff}^{RS} E_1\| l \frac{\sqrt{n_R n_S}}{\sqrt{(\hat{z} \cdot \vec{p}_R) (\hat{z} \cdot \vec{p}_S)}} \quad \text{et} \quad \xi = \frac{\delta k l}{2} . \quad (4.37)$$

L'oscillation de l'efficacité de diffraction provient du transfert de l'énergie d'une onde vers l'autre puis à nouveau vers la première à partir d'une certaine longueur d'interaction. Pour des efficacités faibles, l'efficacité est proportionnelle au carré du taux de modulation.

La valeur maximale de l'efficacité de diffraction peut être obtenue en dehors de l'angle de Bragg. Par exemple, si  $v = \pi$  alors  $\eta = 0$  à l'angle de Bragg. Cependant, par un choix adéquat du désaccord à Bragg nous pouvons faire en sorte que  $\sqrt{v^2 + \xi^2} = 3\pi/2$  ce qui conduit à  $\eta \approx 50\%$ .

Pour un faisceau de lecture incident à l'angle de Bragg, le paramètre  $\xi$  est nul. La valeur de  $\xi$  augmente dès que l'on s'éloigne de l'angle de Bragg. Si  $v \ll 1$  alors  $\eta$  atteint 0 lorsque  $\xi$  est égal à  $\pi$ . L'efficacité de diffraction évolue alors comme :

$$\eta = v^2 \text{sinc}^2 \xi . \quad (4.38)$$

Cette forme correspond à l'évolution du troisième sinus cardinal de l'équation (4.10). À partir de l'équation (4.37), nous retrouvons bien les expressions des sélectivités angulaire et en longueur d'onde des réseaux épais. Cet angle de Bragg dépend des vecteurs d'onde, en particulier de leurs normes, et donc du processus de diffraction considéré.

##### 4.4.2.2 Cas d'un milieu isotrope

Pour un milieu isotrope avec des ondes se propageant de façon symétrique par rapport à l'axe  $\hat{z}$ , le coefficient  $v$  se simplifie en :

$$v = \frac{\omega n^3 \|r_{eff}^{RS} E_1\|}{4c \cos \theta} l \quad \text{avec} \quad \hat{k}_R \cdot \hat{z} = \hat{k}_S \cdot \hat{z} = \cos \theta . \quad (4.39)$$

Il convient de noter que si le matériau possède un coefficient d'absorption  $\alpha$  (en intensité) non négligeable, alors l'efficacité de diffraction doit être multipliée par  $\exp(-\alpha l / \cos \theta)$ . Ainsi, un accroissement de l'efficacité produit par une augmentation de la longueur  $l$  est compensé par l'absorption. La valeur maximale de l'efficacité est obtenue pour  $\alpha l \approx 2$  lorsque  $v \ll 1$ .

#### 4.4.2.3 Sélectivité angulaire de Bragg et processus de diffraction

Beaucoup de matériaux photoréfractifs étant anisotropes, il est important de déterminer la valeur de la biréfringence à partir de laquelle une onde propre incidente à l'angle de Bragg pour un processus de diffraction isotrope (respectivement anisotrope) ne l'est pas pour le processus anisotrope (respectivement anisotrope).

Afin d'estimer cette valeur nous allons calculer le moment à partir duquel une onde incidente à l'angle de Bragg pour le processus de diffraction isotrope ne peut plus être diffractée selon le processus anisotrope. D'après les équations (4.37) nous obtenons immédiatement la valeur de cette biréfringence  $\Delta n = (n_+ - n_-)$  :

$$\xi \approx \pi \Rightarrow (n_+ - n_-)l \approx \lambda \cos \theta . \quad (4.40)$$

Cette valeur dépend de la longueur d'interaction.

Comme premier exemple nous considérons un cristal de  $BaTiO_3$ . Entre une onde polarisée suivant l'axe  $\hat{c}$  et une autre polarisée suivant l'axe  $\hat{a}$ , on a  $\Delta n \approx 0,07$  dans le visible. La longueur limite à partir de laquelle il faut distinguer les angles de Bragg des processus de diffraction isotrope et anisotrope est de  $l \approx 10 \mu\text{m}$ .

Comme second exemple nous examinons ce qui se passe pour des cristaux de la famille des sillenites (classe de symétrie 23) dont la biréfringence est principalement due à l'activité optique  $\rho$ . Sans champ appliqué, nous avons  $\Delta n = \rho \lambda / \pi$ . Nous obtenons immédiatement la valeur limite de l'activité optique :

$$\rho l \approx \pi \cos \theta . \quad (4.41)$$

Pour une longueur d'onde de  $\lambda = 514 \text{ nm}$  dans un cristal de  $Bi_{12}SiO_{20}$  nous avons  $\rho = 41^\circ/\text{mm}$ . Cette valeur nous donne une longueur d'interaction limite de  $l = 4 \text{ mm}$  si  $\cos \theta \approx 1$ . Par contre, à  $\lambda = 633 \text{ nm}$  dans du  $Bi_{12}TiO_{20}$ , l'activité optique ne vaut plus que  $\rho = 6^\circ/\text{mm}$  ce qui accroît la longueur d'interaction limite à  $l \approx 30 \text{ mm}$ .

Au-delà de ces longueurs limites, les deux processus de diffraction ont lieu pour des angles d'incidence différents.

## 5. MÉLANGE À DEUX ONDES

### 5.1 Introduction

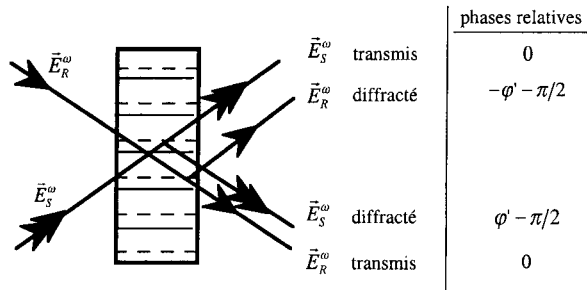
Nous avons montré précédemment comment deux ondes lumineuses peuvent induire un réseau de champ électrique. Si les coefficients électro-optiques qui couplent ces deux ondes sont non nuls, elles se diffractent sur le réseau qu'elles ont créé. Le transfert d'énergie entre les deux ondes est alors possible. Simultanément la phase relative entre ces ondes peut être modifiée par cette interaction. Cette nouvelle répartition d'énergie et de phase modifie en retour le réseau en temps réel (effet dynamique). Cela conduit aux expériences d'amplification d'images, de fonctions optiques (telles que les opérations logiques entre signaux, seuil), aux cavités résonantes, aux filtres temporels.

Après avoir donné les équations gouvernant le transfert d'énergie et la modification de phase, nous montrerons comment intensifier ce transfert d'énergie en mettant à profit la cinétique particulière de l'effet photoréfractif. Nous donnerons des exemples d'amplification d'images par transfert d'énergie et nous discuterons des sources de bruits dans ces amplificateurs cohérents. Pour terminer nous décrirons le fonctionnement d'amplificateurs par mélange à deux ondes dans les cavités résonantes.

## 5.2 Dérivation des équations du mélange d'ondes

### 5.2.1 Présentation intuitive

Le réseau de charge est proportionnel à  $\exp(i(k_r x + \varphi))$  à l'état stationnaire (équation 2.69). Il est donc déphasé d'un angle  $\varphi$  par rapport à la figure d'interférence, ou, ce qui revient au même, décalé spatialement de  $x_\varphi = \varphi/k_r$ . Si le coefficient électro-optique effectif est réel, cas habituel, le réseau d'indice est ainsi déphasé par rapport à la figure d'interférence d'un angle  $\varphi' = \pm\varphi$ , suivant le signe de ce coefficient électro-optique. Si le processus de migration des charges est dû à la diffusion, ce déphasage est de  $\varphi' = \pm\pi/2$ . De plus nous savons que la diffraction par un réseau de phase produit une avance de phase de  $\pi/2$  de l'onde diffractée par rapport à l'onde incidente (voir équation 4.33). L'onde diffractée sur le réseau à partir de l'onde  $\vec{E}_s^\omega$  et dans la direction de l'onde  $\vec{E}_R^\omega$  est donc proportionnelle à  $\exp(i(\vec{k}_R \cdot \vec{r} + \varphi' - \pi/2))$ . Ainsi qu'illustré sur la figure 14, les deux ondes, transmise et diffractée, interfèrent donc constructivement sur une des deux voies de sortie et destructivement pour l'autre.



**Figure 14 :** Illustration du couplage d'ondes; les traits pleins représentent les maxima des franges d'interférence et les pointillés les maxima de la figure d'indice.

Ce processus permet de transférer de façon cohérente l'énergie d'une onde dans la direction de l'autre. Le sens du transfert (amplification ou atténuation) ne dépend que du sens du décalage du réseau d'indice par rapport à la figure d'interférence. Il ne dépend pas des intensités relatives des faisceaux. C'est une caractéristique de l'effet photoréfractif qui permet de le distinguer des autres phénomènes non-linéaires.

Si le déphasage n'est pas exactement de  $\pm\pi/2$ , la même figure nous montre qu'il y a simultanément modifications des phases et transfert d'énergie. Le transfert d'énergie s'annule pour un déphasage  $\varphi'$  égal à 0 ou à  $\pi$  ce qui n'arrive jamais dans les matériaux photoréfractifs.

### 5.2.2 Étude du mélange à deux ondes

#### 5.2.2.1 Équations de départ et hypothèses

S'il y a redistribution d'énergie entre les deux ondes, il n'est plus possible de considérer que la modulation de la figure d'interférence reste la même sur toute la longueur d'interaction. La première analyse complète du processus de transfert d'énergie est décrite dans la référence [20].

Nous partons comme précédemment de l'équation de propagation en faisant les mêmes approximations. Pour qu'il y ait couplage d'ondes, il faut que l'onde transmise interfère avec

l'onde diffractée et ceci sur chacune des deux voies. Elles doivent donc avoir la même polarisation. Deux possibilités existent. Soit les deux ondes incidentes sont polarisées identiquement et on utilise alors un processus de diffraction isotrope, soit elles sont polarisées orthogonalement (et inscrivent un réseau en mettant à profit le tenseur photovoltaïque antisymétrique par exemple) et on emploie un processus de diffraction anisotrope. Quelle que soit la configuration choisie, les ondes écrivent et lisent simultanément le réseau, la mesure du déphasage à Bragg est donc nulle,  $\xi = 0$ . Nous arrivons ainsi en simplifiant l'équation (4.33) à :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_R}{\partial z} = \frac{-i\omega n_R n_S^2}{4c(\bar{p}_R' \hat{z})} r_{eff}^{RS} E_1 A_S, \\ \frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{-i\omega n_S n_R^2}{4c(\bar{p}_S' \hat{z})} r_{eff}^{RS*} E_1^* A_R. \end{cases} \quad (5.1)$$

À ces deux équations, il faut ajouter celle d'évolution temporelle de  $E_1$  pour rendre compte des phénomènes transitoires dans le mélange d'ondes. Pour résoudre ces équations, nous aurons besoin du fait que le champ  $E_1$  est proportionnel au taux de modulation complexe  $M$  de la figure d'interférence. Peu importe le mécanisme physique responsable de la création de ce champ. Il peut avoir été créé à partir d'une figure d'intensité ou avec une figure de polarisation en jouant sur le tenseur photovoltaïque antisymétrique (paragraphe 2.7.2). Néanmoins dans ce qui suit, nous choisirons les notations relatives à une figure d'intensité. Pour le régime d'excitation quasi-continue nous avons trouvé dans l'équation (2.79) :

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{1}{\tau} (E_1 - M E_{sc} e^{+i\omega t}) = 0 \quad \text{avec} \quad M = 2 \frac{\hat{e}_S^* \hat{e}_R A_R A_S^*}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}, \quad (5.2)$$

avec notre définition habituelle  $I_R = 0,5 \varepsilon_0 n_R c A_R A_R^*$ .

Il faut donc que ce taux de modulation reste faible devant 1 (voir paragraphe 2.5). Cette hypothèse est souvent parfaitement vérifiée dans les applications ; ainsi en holographie le faisceau de référence est toujours fort devant l'onde signal. Si le taux de modulation n'est pas faible devant 1, il faut soit résoudre les équations numériquement [54, 55, 86] avec l'expression correcte pour le champ de charge d'espace (voir paragraphe 2.5 et 2.6), soit adopter une approche phénoménologique [53, 87, 88] dans laquelle on remplace, dans l'expression du champ de charge d'espace, le taux de modulation  $m$  par une fonction empirique  $f(m)$ . Cette fonction est choisie arbitrairement pour s'ajuster au mieux aux résultats expérimentaux et également pour faciliter les manipulations algébriques [88].

### 5.2.2.2 Équations couplées pour les intensités

Pour résoudre, on multiplie la première équation (5.1) (respectivement la seconde) par  $A_R^*$  (par  $A_S^*$ ) et on ajoute l'équation obtenue avec sa conjuguée afin de trouver l'équation différentielle relative à l'intensité :

$$\frac{1}{\varepsilon_0 n_R c} \frac{\partial I_R}{\partial z} = \frac{1}{2} \frac{\partial \|A_R\|^2}{\partial z} = \frac{1}{2} \left( A_R \frac{\partial A_R^*}{\partial z} + A_R^* \frac{\partial A_R}{\partial z} \right). \quad (5.3)$$

En notant  $\text{Im}[X]$  la partie imaginaire de  $X = \text{Re}[X] + i\text{Im}[X]$ , nous obtenons les équations couplées pour les intensités :

$$\begin{cases} \frac{\partial \|A_R\|^2}{\partial z} = + \frac{\omega}{c(\bar{p}_R' \hat{z})} n_R n_S^2 \text{Im} \left[ \left( \hat{e}_S^{*'} \hat{e}_R \right) r_{eff}^{RS} \frac{E_1}{M} \right] \frac{\|A_R\|^2 \|A_S\|^2}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}, \\ \frac{\partial \|A_S\|^2}{\partial z} = - \frac{\omega}{c(\bar{p}_S' \hat{z})} n_S n_R^2 \text{Im} \left[ \left( \hat{e}_S^{*'} \hat{e}_R \right) r_{eff}^{RS} \frac{E_1}{M} \right] \frac{\|A_R\|^2 \|A_S\|^2}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}. \end{cases} \quad (5.4)$$



Le flux du vecteur de Poynting suivant la normale à la face d'entrée de l'échantillon étant pour chacune des ondes  $\vec{\Pi}_{R,S}' \hat{z} = I_{R,S} (\vec{p}_{R,S}' \hat{z})$ , on retrouve bien la conservation de l'énergie avec ce système d'équations.

### 5.2.2.3 Équations couplées pour les phases

Les équations couplées pour les phases sont obtenues en écrivant  $A_{R,S} = e^{i\psi_{R,S}} \|A_{R,S}\|$ . En notant  $\text{Re}[X]$  la partie réelle de  $X$  et en remarquant que les phases obéissent à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{\partial \psi_{R,S}}{\partial z} = \frac{1}{2i} \left[ \frac{1}{A_{R,S}} \frac{\partial A_{R,S}}{\partial z} - \frac{1}{A_{R,S}^*} \frac{\partial A_{R,S}^*}{\partial z} \right], \quad (5.5)$$

nous obtenons,

$$\begin{cases} \frac{\partial \psi_R}{\partial z} = -\frac{\omega n_R n_S^2}{2c (\vec{p}_R' \hat{z})} \text{Re} \left[ (\hat{e}_S^{*'} \hat{e}_R) r_{eff}^{RS} \frac{E_1}{M} \right] \frac{\|A_S\|^2}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}, \\ \frac{\partial \psi_S}{\partial z} = -\frac{\omega n_S n_R^2}{2c (\vec{p}_S' \hat{z})} \text{Re} \left[ (\hat{e}_S^{*'} \hat{e}_R) r_{eff}^{RS} \frac{E_1}{M} \right] \frac{\|A_R\|^2}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2}. \end{cases} \quad (5.6)$$

La variation de phase a donc le même signe pour les deux ondes. Il ne s'agit donc pas d'un transfert de la phase d'une onde vers une autre. En effet, la phase d'une onde ne dépend pas de la phase de l'autre onde. Cette modification des phases produit une courbure des franges d'interférence.

### 5.2.3 Mélange à deux ondes à l'état stationnaire

Le transfert d'énergie et la courbure des franges peuvent exister durant la période transitoire et en régime permanent. La résolution des équations durant le régime transitoire est lourde. Elle n'a été menée de façon analytique qu'en supposant que le faisceau de référence n'était pas perturbé par le mélange d'ondes [89-91]. Un résultat important est que la cinétique de l'intensité du faisceau sonde dépend du signe et de la valeur du gain [92]. Si le faisceau sonde est atténué, le temps d'établissement est d'autant plus court que le gain est fort. Inversement, s'il est amplifié le temps d'établissement est d'autant plus grand que le gain est fort.

Nous ne regardons maintenant que l'état stationnaire pour lequel nous avons  $E_1 = M E_{sc} \exp(+i\varphi)$ . Si  $I_R \gg I_S$  et si  $I_R$  n'est pas modifiée par l'interaction, l'intensité  $I_R(z)$  est constante; la résolution des équations est triviale. Si  $I_R$  est modifiée, on pourrait également résoudre les équations sans faire aucune approximation. Néanmoins, pour simplifier les expressions nous allons supposer que les faisceaux arrivent symétriquement par rapport à l'axe  $\hat{z}$  et négliger la biréfringence. Nous posons :

$$\frac{n_R n_S^2}{(\vec{p}_R' \hat{z})} = \frac{n_S n_R^2}{(\vec{p}_S' \hat{z})} \approx \frac{n^3}{\cos \theta} \quad \text{avec} \quad \cos \theta = \hat{k}_S' \hat{z} = \hat{k}_R' \hat{z}. \quad (5.7)$$

#### 5.2.3.1 Transfert d'énergie

En reportant l'état stationnaire de l'équation (5.2) dans (5.4) et en tenant compte de (5.5), nous obtenons :

$$\begin{cases} \cos \theta \frac{\partial I_R}{\partial z} = \Gamma \frac{I_R I_S}{I_R + I_S} - \alpha I_R, \\ \cos \theta \frac{\partial I_S}{\partial z} = -\Gamma \frac{I_R I_S}{I_R + I_S} - \alpha I_S. \end{cases} \quad (5.8)$$

Dans cette équation nous avons réintroduit de façon formelle l'absorption en intensité  $\alpha$  supposée identique pour les deux faisceaux.  $\Gamma$  est le gain photoréfractif défini par :

$$\Gamma = \text{Im} \left[ \frac{\omega}{c} n^3 r_{\text{eff}}^{RS} \left( \hat{e}_S^{*t} \hat{e}_R \right) E_{sc} e^{i\varphi} \right] = g' \sin \varphi'' \quad \text{avec } g' = \|g\| \text{ et } g = \frac{\omega}{c} n^3 r_{\text{eff}}^{RS} \left( \hat{e}_S^{*t} \hat{e}_R \right) E_{sc}. \quad (5.9)$$

Le produit  $\left( \hat{e}_S^{*t} \hat{e}_R \right) r_{\text{eff}}^{RS}$  est réel pour des ondes propres polarisées linéairement. Dans un matériau qui présente de l'activité optique, ce produit est encore généralement réel comme nous le montrerons sur des exemples dans le paragraphe 7.6. Pour alléger quelque peu l'écriture des équations et simplifier les discussions, nous allons continuer à considérer que ce produit est réel. À partir de maintenant nous allons donc confondre l'angle  $\varphi''$  avec  $\varphi$  et  $g'$  avec  $g$ .

Dans la littérature, on trouve également le gain défini avec le facteur  $1/\cos \theta$ . Il faut donc faire attention à la définition utilisée. Le signe de  $\Gamma$  dépend du signe de  $r_{\text{eff}} \sin \varphi$ . Il peut donc être changé par "rotation" du matériau et des polarisations des ondes.

On aurait également pu écrire les équations couplées dans le cas d'un réseau de polarisation induit par effet photovoltaïque (voir paragraphe 2.7.2). Il est immédiat de montrer, en utilisant l'expression du champ (2.104) au lieu de (5.2), que le gain photoréfractif s'obtient simplement en remplaçant  $\left( \hat{e}_S^{*t} \hat{e}_R \right) E_{sc}$  par  $E_{sc}^a$  et  $\sin \varphi$  par 1 dans la définition (5.9).

L'équation (5.8) se résout par exemple en remarquant que  $\partial \ln(I_R/I_S)/\partial z = \Gamma/\cos \theta$  et que  $\partial \ln(I_R + I_S)/\partial z = -\alpha/\cos \theta$ . Nous trouvons :

$$\begin{cases} I_R(z) = I_R(0) \frac{[I_R(0) + I_S(0)] e^{(\Gamma-\alpha)z/\cos \theta}}{I_S(0) + I_R(0) e^{\Gamma z/\cos \theta}}, \\ I_S(z) = I_S(0) \frac{[I_R(0) + I_S(0)] e^{(-\Gamma-\alpha)z/\cos \theta}}{I_R(0) + I_S(0) e^{-\Gamma z/\cos \theta}}. \end{cases} \quad (5.10)$$

L'analyse de ces résultats nous remontre, conformément à ce que nous avons annoncé dans le paragraphe 5.2.1, que le sens du transfert d'énergie ne dépend pas des intensités relatives des deux faisceaux. Il peut aussi bien s'effectuer du faisceau le plus intense vers le plus faible que le contraire. Il ne dépend que du signe du gain photoréfractif  $\Gamma$  (équation (5.9)). Il est contrôlé expérimentalement en agissant sur les polarisations ou sur l'orientation du matériau. Si  $\sin \varphi = \pm 1$  alors le transfert d'énergie est optimal.

Lorsque  $I_S(0) \ll I_R(0)$  et  $e^{-\Gamma z/\cos \theta} I_S(0) \ll I_R(0)$ , on trouve l'amplification relative :

$$I_S(z)/I_S(0) \approx e^{(-\Gamma-\alpha)z/\cos \theta}. \quad (5.11)$$

Le taux de modulation de la figure d'interférence n'intervient plus dans l'amplification relative. Ceci est extrêmement important dans les applications. En effet on peut toujours modifier la vitesse d'inscription du réseau photoréfractif en modifiant l'intensité du faisceau de référence sans modifier le facteur d'amplification.

### 5.2.3.2 Modification de la phase

Avec la définition de  $g$  donnée par l'équation (5.9), le système (5.6) se réécrit sous la forme :

$$\begin{cases} \cos \theta \frac{\partial \psi_R}{\partial z} = -\frac{g}{2} \cos \varphi \frac{I_S}{I_R + I_S}, \\ \cos \theta \frac{\partial \psi_S}{\partial z} = -\frac{g}{2} \cos \varphi \frac{I_R}{I_R + I_S}. \end{cases} \quad (5.12)$$

La résolution est immédiate :

$$\begin{cases} \psi_R(z) - \psi_R(0) = \frac{1}{2} \frac{\cos \varphi}{\sin \varphi} \ln \left[ \frac{I_S(0) e^{-\Gamma z/\cos \theta} + I_R(0)}{I_S(0) + I_R(0)} \right], \\ \psi_S(z) - \psi_S(0) = -\frac{1}{2} \frac{\cos \varphi}{\sin \varphi} \ln \left[ \frac{I_S(0) + I_R(0) e^{\Gamma z/\cos \theta}}{I_S(0) + I_R(0)} \right]. \end{cases} \quad (5.13)$$

On remarque à nouveau que si la diffusion est le processus de transport de charge prédominant,  $\cotg \varphi = 0$  et il n'y a pas de variation de phase au cours de la propagation (pas de courbure de franges). Il en est de même si le réseau a été créé en mettant en jeu le tenseur photovoltaïque antisymétrique.

Ces variations des phases peuvent jouer un rôle primordial dans certaines applications. Leurs prises en compte sont indispensables pour comprendre le fonctionnement des cavités résonantes à gain photoréfractif. Cette courbure des franges peut également être néfaste. Si elle est trop prononcée, les faisceaux qui inscrivent le réseau ne se trouvent plus à l'angle de Bragg. Ceci peut perturber le fonctionnement de dispositifs tels que les mémoires holographiques.

### 5.3 Intensification du gain photoréfractif

#### 5.3.1 Introduction

Les matériaux photoréfractifs les plus sensibles, les plus photoconducteurs, ne possèdent malheureusement que des coefficients électro-optiques faibles de l'ordre de quelques pm/V. Sans champ électrique appliqué les charges se déplacent par diffusion. Le transfert d'énergie est optimisé car  $|\varphi| = \pi/2$  mais il reste néanmoins très faible car le champ  $E_{sc}$  est limité.

Typiquement les gains photoréfractifs obtenus sont de l'ordre de  $\Gamma \approx 1 \text{ cm}^{-1}$ . L'application d'un champ électrique  $E_0$  fait croître le champ  $E_{sc}$  mais fait décroître  $|\sin \varphi|$ . Pour garder  $|\sin \varphi| = 1$  tout en augmentant  $E_{sc}$ , on a recours aux techniques d'intensification. Celles-ci s'appuient sur l'équation (2.79) décrivant l'évolution du champ de charge d'espace  $E_1$  qui est celle d'un oscillateur harmonique avec second membre :

$$\frac{dE_1}{dt} + \left( \frac{1}{\tau_e} + i\omega_e \right) (E_1 - M E_{sc} e^{+i\varphi}) = 0 . \quad (5.14)$$

Il est possible de le forcer en le pilotant avec un terme oscillant à sa fréquence propre  $\omega_e$ . Une autre méthode consiste à appliquer un champ électrique externe modulé temporellement. Ces techniques qui permettent de conserver le déphasage de  $\pm \pi/2$  du champ par rapport à la figure d'illumination sont très employées en mélange d'ondes.

Ces techniques d'intensification du champ de charge d'espace s'emploient avec un champ électrique appliqué (afin que  $\omega_e \neq 0$ ) à des matériaux tels que les sillenites ou les semi-conducteurs qui possèdent des coefficients électro-optiques faibles. Elles s'emploient aussi avec des matériaux polymères auxquels il faut de toute façon appliquer un champ électrique pour avoir des efficacités quantiques significatives.

Pour qu'elles soient efficaces, il est nécessaire que le taux de modulation de la figure d'interférence reste très inférieur à 1 [53, 93].

#### 5.3.2 Intensification du gain par la technique du réseau mobile

Pour "forcer" l'oscillateur harmonique il faut introduire dans la "force"  $M E_{sc} e^{+i\varphi}$  un terme oscillant à la fréquence  $\omega_e$ . Cela peut facilement se faire en éclairant le cristal par une figure d'interférence mobile se déplaçant à la vitesse  $v_e = \omega_e/k_r$  selon  $\vec{k}_r$  [53, 94-97]. On peut utiliser deux techniques différentes pour créer ce déplacement. La première consiste à déplacer le cristal à la vitesse  $\vec{v}_c$  devant la figure d'interférence fixe. Dans la seconde, plus élégante, c'est le réseau d'interférence qui se déplace par rapport au cristal qui est fixe. Ce déplacement des franges est obtenu en décalant en fréquence un faisceau d'écriture par rapport à l'autre. On peut employer l'effet Doppler avec un miroir monté sur une cale piézo-

électrique, un modulateur électro-optique ou une lame demi-onde tournant à vitesse constante entre deux lames quart d'onde. Le taux de modulation de la figure d'interférence s'écrit alors :

$$M = \frac{2 A_R A_S^*}{\|A_R\|^2 + \|A_S\|^2} \left( \hat{e}_S^{*t} \hat{e}_R \right) e^{-i\delta\omega t} = M_0 e^{-i\delta\omega t}, \quad (5.15)$$

avec  $\delta\omega$  la différence de fréquence entre les deux ondes;  $v_r = \delta\omega/k_r$  est donc la vitesse de déplacement du réseau que nous ne supposons pas encore égale à la vitesse optimale.

Nous introduisons ce taux de modulation dans l'équation d'évolution du champ de charge d'espace et nous recherchons la solution périodique sous la forme  $E_1 = E_2 e^{-i\delta\omega t}$ . La résolution de l'équation d'évolution conduit à :

$$E_2 = M_0 E_{sc} e^{i\varphi} \frac{1 + i\omega_e \tau_e}{1 + i(\omega_e - \delta\omega)\tau_e}. \quad (5.16)$$

La résonance se produit pour  $\delta\omega = \omega_e$ . Elle est d'autant plus forte que  $\omega_e \tau_e \gg 1$ . Cette équation montre également que le déplacement des franges modifie le déphasage entre la figure d'interférence et le réseau d'indice. Ce déphasage provient du temps de réponse non nul de l'effet photoréfractif : le réseau d'indice suit la figure d'interférence avec un certain retard.

Nous allons estimer simplement la valeur du champ de charge d'espace sur la résonance en considérant par exemple les cristaux de sillenites ou des cristaux semi-conducteurs. Les champs électriques appliqués sont typiquement de quelques kV/cm et les réseaux sont de grands pas afin que leurs amplitudes ne soient pas limitées par la densité de pièges photoréfractifs, c'est-à-dire par  $E_q$ . Nous avons donc  $E_d \ll E_0 \ll E_q$  soit  $\varphi \approx 0$  et  $E_{sc} \approx E_0$ . Le gain photoréfractif est proportionnel à la partie imaginaire de  $E_2$  c'est-à-dire à :

$$i \operatorname{Im}(E_2) \approx i M_0 E_0 \omega_e \tau_e. \quad (5.17)$$

La condition de résonance dépend de l'illumination, du champ appliqué et du pas de la figure d'interférence. Il n'y aura donc, à cause de l'absorption du matériau, jamais satisfaction de la condition de résonance dans toute l'épaisseur. De plus, l'intensification ne sera pas identique pour toutes les fréquences spatiales d'une image. La résolution sera donc faible. On peut également noter que la dépendance en fonction du champ électrique appliqué impose d'avoir un champ uniforme dans tout le matériau ce qui n'est pas toujours possible, en particulier si l'illumination est très non uniforme.

### 5.3.3 Application d'un champ électrique externe alternatif

#### 5.3.3.1 Principe

Lorsqu'il n'y a pas de champ électrique appliqué au matériau, l'effet photoréfractif se construit par diffusion. Les charges migrent sous l'effet de l'agitation thermique. Le processus atteint un équilibre lorsque le champ charge d'espace créé s'oppose à tout nouveau déplacement de charge. Pour rompre cet équilibre on peut appliquer un champ électrique au matériau ce qui force à nouveau les charges à migrer. L'application d'un champ électrique continu fait migrer les charges de façon dissymétrique ce qui rompt le déphasage de 0 ou  $\pi$  entre le réseau d'illumination et le réseau de champ (i.e de  $\pm\pi/2$  entre le réseau d'illumination et le réseau d'indice). Pour néanmoins conserver ce déphasage on peut songer à appliquer un champ électrique alternatif de période longue devant la constante de temps de recombinaison des charges  $\tau_R$ , pour les forcer à migrer, et courte devant la constante de temps photoréfractive pour maintenir le déphasage de  $\pm\pi/2$  entre le réseau d'illumination et le réseau d'indice [61, 98, 99].

Nous considérons ici un champ appliqué de forme créneau, variant entre  $\pm E_0$ , et de période  $T$ . Son l'évolution temporelle est représentée sur la figure 15. Pendant chaque demi-période de ce champ créneau, l'équation d'évolution temporelle du champ de charge d'espace est valable. Considérant que le temps de montée du champ est négligeable, on ne tient pas

compte des variations de  $E_1$  durant le basculement de  $\pm E_0$  à  $\mp E_0$ . On résout alors l'équation d'évolution temporelle pour chaque demi-période du champ appliqué.

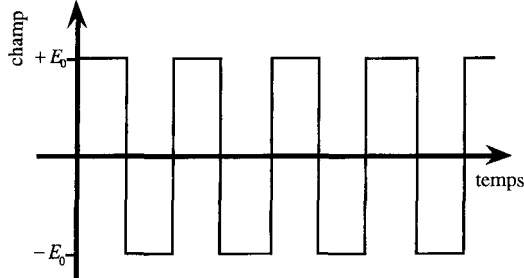


Figure 15 : Forme temporelle du champ électrique utilisé pour intensifier l'effet photoréfractif.

Après un comportement transitoire, le régime permanent est atteint. Les valeurs à l'état stationnaire pour un champ appliqué constant sont notées :

$$\begin{cases} E_1^s = E_1^s(E_0) = M E_{sc}(E_0) e^{i\varphi(E_0)}, \\ E_1^s(-E_0) = -E_1^{s*}(E_0), \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \tau_+ = \tau_+(E_0), \\ \tau_-(-E_0) = \tau_-^*(E_0). \end{cases} \quad (5.18)$$

Avec ces notations, nous pouvons réécrire l'équation d'évolution du champ de charge d'espace lorsqu'un champ créneau est appliqué au matériau. Pendant les demi-périodes positives et négatives nous avons :

$$\begin{cases} \text{demi - période positive :} & \frac{\partial E_1^+}{\partial t} + \frac{1}{\tau_-}(E_1^+ - E_1^s) = 0, \\ \text{demi - période négative :} & \frac{\partial E_1^-}{\partial t} + \frac{1}{\tau_-^*}(E_1^- + E_1^{s*}) = 0. \end{cases} \quad (5.19)$$

### 5.3.3.2 Valeur moyenne du champ

Lorsque l'état stationnaire est atteint la valeur moyenne temporelle de la dérivée du champ sur une période est nulle. Nous pouvons alors calculer la valeur moyenne du champ de charge d'espace. À partir du système (5.19), et en notant  $\langle X \rangle_t$  la valeur moyenne de la variable  $X$  sur une période, nous obtenons immédiatement :

$$\left\langle \frac{\partial E_1}{\partial t} \right\rangle_t = 0 \quad \Rightarrow \quad \left( \frac{1}{\tau_-^*} + \frac{1}{\tau_-} \right) \langle E_1 \rangle_t - \left( \frac{E_1^s}{\tau_-} - \frac{E_1^{s*}}{\tau_-^*} \right) = 0. \quad (5.20)$$

Cette solution est souvent écrite sous la forme condensée suivante :

$$\langle E_1 \rangle_t = \frac{i \operatorname{Im}(E_1^s / \tau_-)}{\operatorname{Re}(1/\tau_-)} = i \operatorname{Im}[E_1^s (1 + i\omega_e \tau_e)]. \quad (5.21)$$

Cette formule se réduit à celle donnant l'expression du champ de charge d'espace sous réseau mobile (5.17) lorsque l'on considère les mêmes conditions :  $E_d \ll E_0 \ll E_g$  soit  $\varphi = 0$  et  $E_{sc} \approx E_0$ . L'amplification obtenue est donc la même. Une analyse plus fine [100] confirme que les deux techniques conduisent à des amplifications équivalentes sauf dans les matériaux possédant une faible mobilité et pour lesquels la distance dont se déplacent les charges sous l'effet du champ appliqué est plus petite que le pas du réseau. Dans ce cas la technique du réseau mobile est plus efficace.

Cette technique du champ alternatif est non résonante ; elle peut être utilisée même dans des matériaux absorbants avec des champs appliqués non uniformes. Un de ses inconvénients, outre le danger des hautes tensions alternatives, provient de la biréfringence du matériau qui est modulée temporellement à la fréquence du champ alternatif. La phase du front de l'onde amplifiée oscille ce qui peut être préjudiciable dans certaines expériences où

on veut refaire interférer le faisceau amplifié (mise en cascade d'éléments photoréfractifs, cavités oscillantes photoréfractives, etc.).

### 5.3.3.3 *Étude dynamique*

Après une période transitoire, l'état atteint est périodique de valeur moyenne  $\langle E_1 \rangle$ . Nous allons maintenant calculer quelles sont les fluctuations de  $E_1$  autour de cette valeur moyenne. Nous notons  $E_{1st}^+$  (respectivement  $E_{1st}^-$ ) la valeur du champ de charge d'espace à la fin de chaque demi-période positive (respectivement négative). Nous calculons par récurrence la valeur du champ de charge d'espace à la fin de chaque demi-période positive :

$$E_{1st}^+ = \frac{1}{1 - \exp\left[\frac{T}{2}\left(\frac{1}{\tau_-} + \frac{1}{\tau_+^*}\right)\right]} \left[ E_1^s (1 - e^{T/2\tau_-}) e^{T/2\tau_+^*} - E_{1st}^{s*} (1 - e^{T/2\tau_+^*}) \right]. \quad (5.22)$$

Les équations différentielles (5.19) donnent l'évolution temporelle du champ de charge d'espace. Avec l'origine des temps prise au début de chaque demi-période, nous trouvons pour les demi-périodes "positives" :

$$E_1^+(t) = i \operatorname{Im}(E_{1st}^+) - \operatorname{Re}(E_{1st}^+) \frac{1 + e^{-T/2\tau_-} - 2e^{-t/\tau_-}}{1 - e^{-T/2\tau_-}}. \quad (5.23)$$

Les symétries montrent que la partie imaginaire du champ de charge d'espace oscille avec une période de  $T/2$ . On a :

$$\operatorname{Im}(E_1^+(t)) = \operatorname{Im}(E_1^-(t)) = \operatorname{Im}(E_{1st}^+) - \operatorname{Re}(E_{1st}^+) \operatorname{Im}\left[\frac{1 + e^{-T/2\tau_-} - 2e^{-t/\tau_-}}{1 - e^{-T/2\tau_-}}\right]. \quad (5.24)$$

Quand  $T \ll \tau_e$ ,  $\operatorname{Re}(E_{1st}^+)$  devient négligeable devant  $\operatorname{Im}(E_{1st}^+)$ . Les oscillations disparaissent et on retrouve le résultat de l'équation (5.21).

Sur la figure 16, nous avons tracé le gain de couplage en mélange à deux ondes obtenu sur un cristal photoréfractif de  $Bi_{12}GeO_{20}$  non dopé à la longueur d'onde de 514 nm et pour deux illuminations différentes  $I_0 = 0,190 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  et  $I_0 = 1 \text{ mW}/\text{cm}^2$ . Le rapport d'intensité entre les ondes sonde et référence est de 160 afin de conserver un taux de modulation faible dans toute l'épaisseur du cristal. Le pas est de  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ , le champ appliqué  $E_0 = 1,6 \text{ kV}/\text{cm}$ . Pour la courbe  $I_0 = 0,190 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ , la constante de temps photoréfractive vaut environ  $1/\tau_e \approx 1 \text{ Hz}$ . Elle vaut environ  $1/\tau_e \approx 20 \text{ Hz}$  pour la courbe tracée avec  $I_0 = 1 \text{ mW}/\text{cm}^2$ . Ces valeurs sont des valeurs moyennes sur l'échantillon qui fait environ 5 mm de longueur et possède un coefficient d'absorption de  $\alpha = 1,6 \text{ cm}^{-1}$ . Les courbes de gain en fonction de la fréquence se composent de trois parties caractéristiques. Pour les fréquences inférieures à  $1/\tau_e$ , le gain reste faible (le champ alternatif est vu par le cristal photoréfractif comme un champ continu). Au fur et à mesure que la fréquence augmente, le gain augmente jusqu'à atteindre un plateau. La chute du gain observée pour des fréquences plus élevées est due, dans cette expérience, à l'alimentation alternative créneau qui ne permet pas d'atteindre des fréquences élevées. Les mesures expérimentales ont bien été faites pour un champ de valeurs "crête"  $\pm E_0$ . Cependant pour ces fréquences élevées le temps de montée de l'alimentation électrique n'est plus négligeable. Pendant le laps de temps pendant lequel le champ appliqué est voisin de 0, le champ photoréfractif se relaxe vers sa valeur à l'état stationnaire à champ appliqué nul. La constante de temps photoréfractive étant beaucoup plus courte à champ appliqué nul qu'à fort champ appliqué, le gain photoréfractif chute très rapidement lorsque la fréquence monte. Cette petite explication montre aussi pourquoi un champ électrique de forme sinusoïdale est bien moins efficace qu'un champ électrique de forme créneau [98, 99].

Nous allons voir dans le paragraphe suivant que la chute du gain aux hautes fréquences peut également provenir de l'effet photoréfractif.

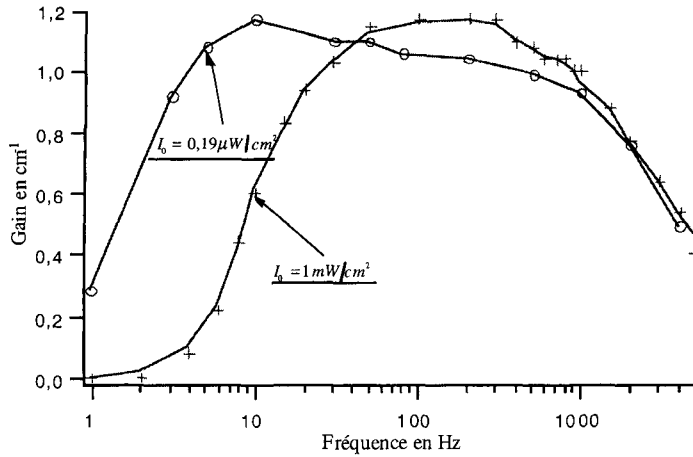


Figure 16 : Évolution du gain photoréfractif en fonction de la fréquence du champ électrique appliqué au cristal.

#### 5.3.3.4 Mise en évidence du réseau de charges libres et mesure de la mobilité

Pour certains échantillons, et en se plaçant à des fréquences suffisamment élevées pour atteindre le plateau, on note que l'intensité du faisceau amplifié oscille légèrement à chaque commutation  $\pm E_0$  du champ électrique (voir figure 17). Cette oscillation du champ de charge d'espace se comprend bien si l'on se rappelle que le réseau photoréfractif résulte de la superposition d'un réseau  $E_1^{cc}$  dû aux charges libres (électrons dans la bande de conduction) et d'un réseau dans les centres profonds  $E_1^{lon}$  (équation (2.73)). En régime stationnaire ou lorsque le champ électrique externe est constant, la contribution du réseau d'électrons est négligeable devant celle du réseau de centres profonds. Ce n'est plus valable lorsque celui-ci varie temporellement. Une modification brutale du signe du champ électrique appliqué entraîne le réseau de charges libres avec une vitesse  $\mu E_0$  tandis que le réseau dans les centres profonds reste immobile. Le battement entre ces deux réseaux fait osciller le champ de charge d'espace et donc le gain de couplage d'ondes à la fréquence  $\mu E_0 / \Lambda$  ( $\Lambda / \mu E_0$  est le temps requis pour que le réseau de charges libres se déplace d'une frange à une autre).

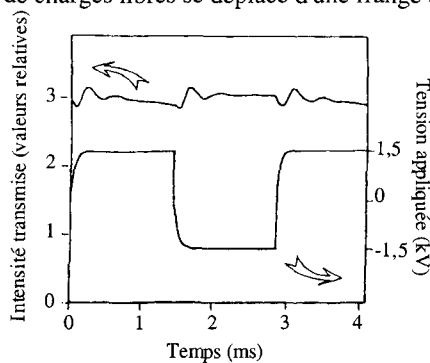


Figure 17 : Évolution temporelle du signal amplifié par la technique d'intensification par champ électrique "créneau".

Cette interprétation est confirmée par l'équation (2.77) d'évolution du réseau d'électrons que nous avons trouvé dans le chapitre 2. L'évolution temporelle est régie par deux constantes de temps  $\tau_+$  et  $\tau_-$ . En choisissant une illumination faible, la constante de temps  $\tau_-$  qui est proportionnelle à  $1/I$  est grande devant  $\tau_+$  et nous avons trouvé :

$$\frac{1}{\tau_+} = -\frac{i}{\tau_E} + \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{di}} + \frac{1}{\tau_d}. \quad (5.25)$$

Nous retrouvons bien le fait que lorsque le champ appliqué varie brusquement, le champ de charge d'espace varie brutalement avec la fréquence  $1/(2\pi\tau_E) = \mu E_0/\Lambda$ . Une mesure de cette fréquence donne la valeur de la mobilité  $\mu$ . Cette oscillation s'amortit avec une constante de temps égale à l'inverse de  $1/\tau_R + 1/\tau_{di} + 1/\tau_d$ . Pour mesurer la mobilité, il faut choisir cette constante de temps d'amortissement longue devant la période  $\Lambda/\mu E_0$ . C'est la raison pour laquelle ces oscillations ne s'observent facilement que si la mobilité est faible.

### 5.3.3.5 Résonances sous champ électrique sinusoïdal

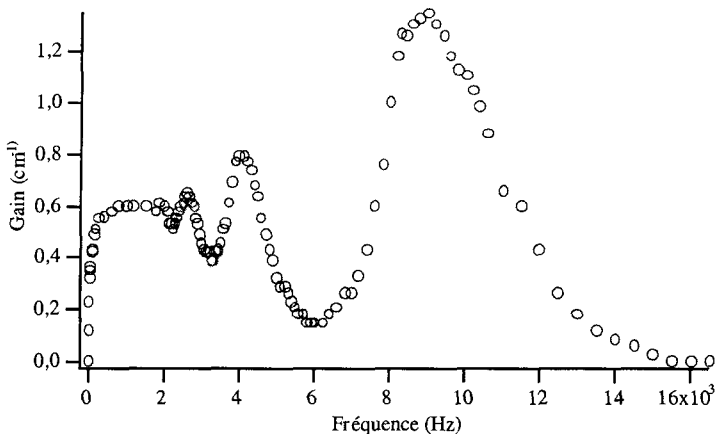
La même explication physique rend compte des résonances en fonction de la fréquence que l'on peut observer sous champ alternatif sinusoïdal à plus haute fréquence [59, 62, 63]. On peut grossièrement les expliquer de la façon suivante. Durant une demi-période, les charges se déplacent d'une distance  $d$  donnée par :

$$d = \int_0^{T/2} \mu E_0 \sin\left(\frac{2\pi t}{T}\right) dt. \quad (5.26)$$

Lorsque ce déplacement est égal à un nombre impair de demi-interfranges, les électrons (ou trous) excités à partir des maxima de la figure d'illumination sont rapidement déplacés jusqu'aux minima. Ceci correspond à une optimisation du processus de transfert de charge. Au contraire lorsque ce déplacement est égal à un nombre entier de franges, les électrons sont ramenés à leur point de départ ce qui correspond à une réduction du gain photoréfractif.

Pour pouvoir observer ces résonances, il faut que les charges se déplacent en "bloc" sans diffuser ni se recombiner c'est-à-dire que  $1/\tau_E > 1/\tau_R + 1/\tau_{di} + 1/\tau_d$ . Cette condition n'est pas toujours réalisable. En particulier dans les semi-conducteurs cela correspond à des fréquences trop hautes pour les alimentations électriques hautes tensions utilisées.

Sur la figure 18 sont reportées des mesures effectuées sur un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  dopé en fer. Ce dopage permet de diminuer la mobilité et donc d'observer plus facilement les résonances qui se produisent alors à des fréquences plus basses.



**Figure 18 :** Gain en fonction de la fréquence du champ électrique sinusoïdal appliqué à un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  dopé au fer.

Lorsque que la fréquence augmente nous observons d'abord la montée du gain photoréfractif jusqu'à un plateau (de quelques hertz à 2 kHz). Ce plateau correspond à l'intensification non résonante de l'effet photoréfractif et peut être expliqué de façon similaire à l'explication que nous avons donnée pour l'amplification sous champ crête. Nous



observons ensuite en fonction des fréquences croissantes 4 résonances correspondant à  $d \approx 7\lambda/2, 5\lambda/2, 3\lambda/2, \lambda/2$ . Nous voyons également 4 anti-résonances correspondant à  $d \approx 4\lambda, 3\lambda, 2\lambda, \lambda$ . La décroissance finale autour de 15 kHz est due à ce que les électrons oscillent "sur place" et ne se déplacent donc plus notablement durant une demi-période du champ électrique appliqué.

La mesure de ces fréquences de résonance permet d'estimer la mobilité.

### 5.3.4 Autres techniques d'intensification

D'autres techniques d'intensification du champ de charge d'espace ont été proposées et utilisées avec succès.

Dans la méthode résonante en intensité il faut égaliser le taux d'émission optique des trous avec le taux d'émission thermique des électrons [101-103]. Cette technique n'est pas applicable dans tous les matériaux mais a été utilisée dans *InP*.

Il est également possible d'utiliser des longueurs d'onde telles que l'on travaille très près de la bande d'absorption du matériau. Ces résonances de bord de bande (effet Franz-Keldysh) s'accompagnent d'une forte absorption [104-106].

## 5.4 Amplification d'images

### 5.4.1 Exemples de gains et d'amplifications d'images

#### 5.4.1.1 Exemples de gains

Ainsi que nous venons de le voir, la valeur du gain photoréfractif  $\Gamma$  dépend à la fois du matériau utilisé, éventuellement de son dopage, de la longueur d'onde optique et de la configuration photoréfractive. Par configuration nous entendons, les angles d'incidence, les polarisations des faisceaux, la coupe de l'échantillon (faces d'entrée, direction de propagation de la lumière) et l'application ou non d'un champ électrique externe. Les valeurs données ci-dessous ne sont donc qu'indicatives.

Polymères photoréfractifs avec un champ appliqué  $\Gamma = 18 \text{ cm}^{-1}$  [107], longueur d'interaction typique de 100  $\mu\text{m}$ .

*BaTiO<sub>3</sub>* sans champ appliqué  $\Gamma = 25 \text{ cm}^{-1}$  [108], longueur d'interaction typique de 5 mm.

*Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>* sans champ  $\Gamma = 0,5 \text{ cm}^{-1}$ , longueur d'interaction typique de 1 cm.

*Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>* avec un champ et un réseau mobile,  $\Gamma = 12 \text{ cm}^{-1}$  [53], longueur d'interaction typique de 1 cm.

Multi-puits quantiques par effet Franz-Keldysh,  $\Gamma = 200 \text{ cm}^{-1}$  [106], longueur d'interaction typique de 1  $\mu\text{m}$ .

*InP* avec effet Franz-Keldysh et la stabilisation en température  $\Gamma = 14 \text{ cm}^{-1}$  [105], longueur d'interaction typique de 1 cm.

#### 5.4.1.2 Résolution des images

La résolution spatiale des amplificateurs photoréfractifs dépend de l'étendue géométrique et donc de la surface *Surf* de la face d'entrée de l'échantillon et de l'ouverture angulaire utile  $\Delta i_1, \Delta i_2$  dans laquelle il y a amplification. Le critère de Rayleigh nous donne la résolution (nombre de pixels dans l'image) :

$$R \approx \Delta i_1 \Delta i_2 \text{Surf} / \lambda^2, \quad (5.27)$$

avec la longueur d'onde  $\lambda$  et les angles  $\Delta i_{1,2}$  mesurés à l'extérieur de l'échantillon.

Les faces d'entrée ont généralement des surfaces de l'ordre de  $\text{Surf} \approx 5 \times 5 \text{ mm}^2$ . Le facteur d'amplification  $\exp(\Gamma l)$  varie fortement en fonction de l'angle entre les deux

faisceaux signal et pompe. À cause de la dépendance en exponentielle du facteur d'amplification avec le produit  $\Gamma l = \text{gain} \times \text{longueur d'interaction}$ , ce facteur varie beaucoup plus rapidement que  $\Gamma l$ . Ainsi, plus la longueur d'interaction est grande, plus la résolution diminue. À titre d'exemples, en ne considérant que de faibles longueurs d'interaction de façon à ce que la variation de  $e^{\Gamma l}$  avec l'angle  $i_1$  soit la même que celle du gain alors, l'ouverture angulaire utile  $\Delta i_1$  est de l'ordre de :

-pour les matériaux utilisés sans champ appliqué,  $BaTiO_3$ ,  $Bi_{12}SiO_{20}$ ,  $Bi_{12}GeO_{20}$ , etc.,

$\Delta i_1 \approx 30^\circ$ , ce qui nous donne  $\sqrt{R} \approx$  plusieurs milliers de pl/mm avec  $\lambda \approx 500$  nm ;

-pour des matériaux avec une intensification par champ électrique,  $Bi_{12}SiO_{20}$ ,  $Bi_{12}GeO_{20}$ ,

$\Delta i_1 \approx 90^\circ$ , soit  $\sqrt{R} \approx 90$  centaines de pl/mm avec  $\lambda \approx 500$  nm .

Ces résolutions sont des valeurs maximales qui supposent que l'échantillon n'introduise pas d'aberration significative. En fait, très souvent, c'est la distorsion du front d'onde créée par ces aberrations qui limite la résolution. Des images d'un million de pixels ont néanmoins été enregistrées et relues dans des échantillons de  $LiNbO_3$  [109].

#### 5.4.1.3 Exemple avec un échantillon de titanate de baryum

L'échantillon utilisé est un cristal de  $BaTiO_3$  dopé au fer, traité anti-reflet et de dimensions  $a \times b \times c = 3,63 \times 5,24 \times 5,22$  mm<sup>3</sup>. Les faisceaux proviennent d'un laser Argon accordé à la longueur d'onde de 514 nm. Les faisceaux pompe et signal (porteur de l'image imprimée à partir d'une mire de résolution) sont polarisés extraordinairement et arrivent respectivement sous des angles d'incidence de  $55^\circ$  et  $25^\circ$  sur la face d'entrée perpendiculaire à l'axe  $\hat{a}$ . Les intensités incidentes valent 112 mW/cm<sup>2</sup> pour la pompe et 7  $\mu$ W/cm<sup>2</sup> pour le signal. L'image de la mire de résolution est projetée sur le cristal. La figure 19.a représente la partie centrale de l'image transmise par le cristal mais en l'absence du faisceau pompe. La figure 19.b représente la même image mais amplifiée d'un facteur  $\times 2000$  par transfert d'énergie photoréfractif. La résolution de cette image amplifiée, de 53 pl/mm, est la même que celle de l'image non amplifiée. Dans cette expérience, la résolution est en fait limitée par les composants optiques employés et non pas par l'effet photoréfractif.

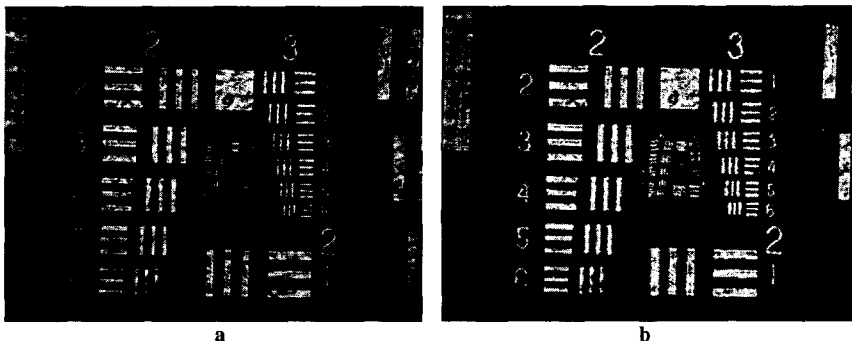
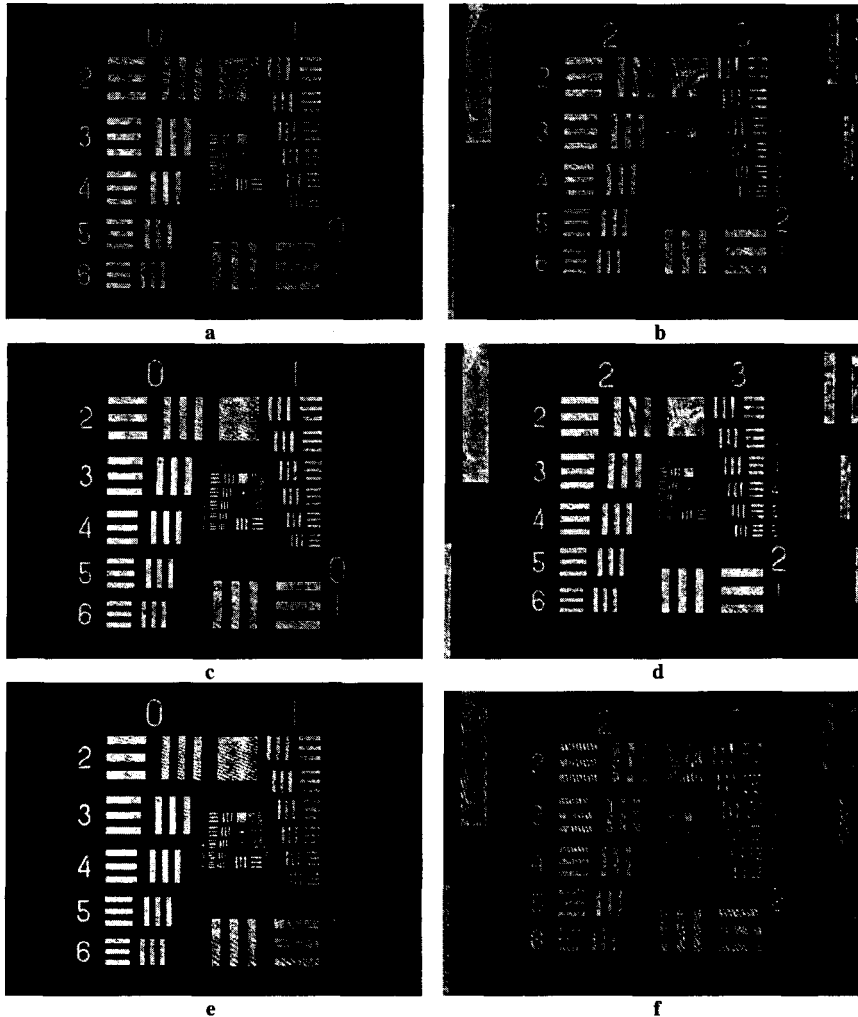


Figure 19 : a) Image transmise par un cristal de  $BaTiO_3$ ; b) la même image amplifiée d'un facteur  $\times 2000$  par transfert d'énergie photoréfractif.

#### 5.4.1.4 Exemple avec un échantillon de $Bi_{12}GeO_{20}$ sans champ appliqué

Un laser Argon accordé à la longueur d'onde de 514 nm est utilisé. Le cristal n'est pas traité anti-reflet. Le pas du réseau est de  $\Lambda = 0,8$   $\mu$ m et la configuration utilisée est celle dite de "couplage". Les intensités incidentes valent, 6 mW/cm<sup>2</sup> pour la pompe, et 150  $\mu$ W/cm<sup>2</sup> pour le signal. La longueur d'interaction des faisceaux est de  $l = 10$  mm et le gain photoréfractif  $\Gamma = 0,4$  cm<sup>-1</sup>. L'image de la mire est projetée sur le cristal. Les figures 20.a et

20.c montrent les images non-amplifiée et amplifiée. Les figures 20.b et 20.d ont été obtenues en agrandissant la partie centrale des figures précédentes.



**Figure 20 :** Amplification dans un cristal de  $Bi_{12}GeO_{20}$  sans champ appliqué, les images de droite sont des agrandissements de celles de gauche. Les figures a et b sont les images transmises sans le faisceau pompe (i.e. sans amplification), les figures c et d sont les images amplifiées et les figures e et f représentent les différences, c-a et d-b, des deux images précédentes.

La résolution atteinte, de 66 pl/mm, est limitée par le montage et non pas par l'effet photoréfractif qui devrait permettre sous ces conditions expérimentales d'atteindre des résolutions de l'ordre de 550 pl/mm. Les images des figures 20.e et 20.f ont été obtenues en soustrayant numériquement les images avec amplification et sans amplification. Nous voyons que, malgré le gain faible, toutes les informations sont contenues dans ces deux images. Ces informations sont suffisantes pour certaines applications de traitement d'images comme l'interférométrie holographique.

#### 5.4.2 Bruit dans les amplificateurs photoréfractifs

##### 5.4.2.1 Coma photoréfractive ("beam fanning")

Dans certains matériaux, le produit *gain* × *longueur d'interaction* peut être très fort. Ainsi pour le titanate de baryum on peut avoir dans certaines configurations des gains très importants supérieurs à  $40 \text{ cm}^{-1}$ . Ces gains conduisent, pour des longueurs d'interaction de l'ordre de 5 mm, à des facteurs d'amplification très élevés,  $\exp(\Gamma l) \approx 10^9$ . Dès lors, toute la lumière diffusée à partir du faisceau de pompe dans les directions de grands gains sera fortement amplifiée. Cette lumière diffusée et amplifiée par transfert d'énergie forme ce que l'on appelle la coma photoréfractive (beam fanning) [110-112].

À titre d'exemple, sur la figure 21, nous montrons un montage utilisé pour observer la coma photoréfractive. Le cristal est un échantillon de  $\text{BaTiO}_3$  non traité anti-reflet. Le faisceau incident est issu d'une source laser Argon accordée à 514 nm. Il est polarisé extraordinairement. L'observation se fait sur un écran disposé après le cristal.

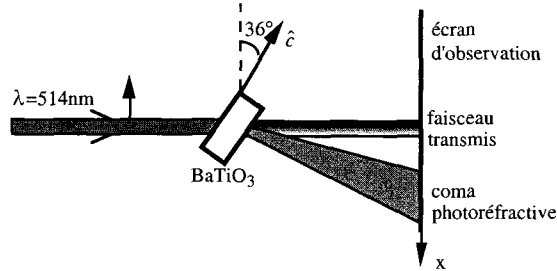


Figure 21 : Montage d'observation de la coma photoréfractive.

L'établissement de la coma photoréfractive est illustré sur les figures 22.a, b, c.

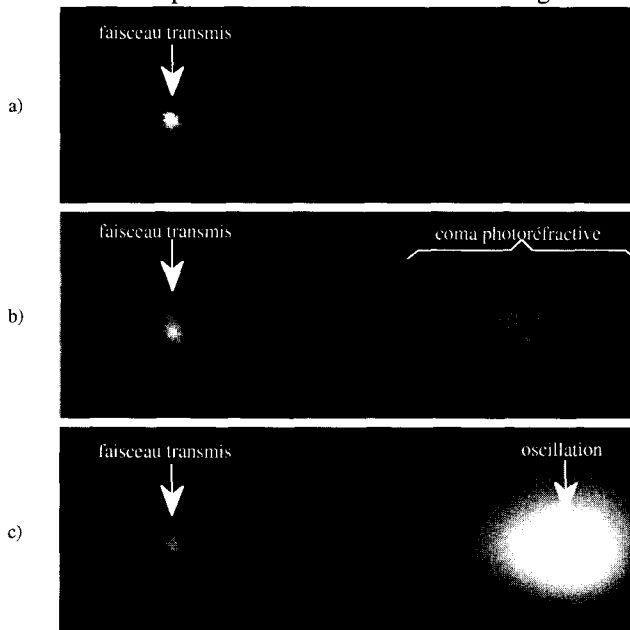


Figure 22 : Construction de la coma photoréfractive (a et b) suivie de la construction de l'oscillation entre les deux faces de l'échantillon (c). Ces images sont celles observées sur l'écran du montage de la figure 21. L'axe  $x$  est orienté vers la droite.

L'image 22.a est acquise juste après que le faisceau incident soit allumé, seul le faisceau transmis et non perturbé arrive sur l'écran. Après un laps de temps plus ou moins long on observe que l'intensité du faisceau transmis est atténuée au détriment de la coma photoréfractive (figure 22.b). Si le gain est suffisamment important ou si les faces du cristal ne sont pas traitées anti-reflet, on observe ensuite, figure 22.c, une augmentation du bruit dans la direction perpendiculaire aux deux faces. Ceci correspond à la construction d'une oscillation optique dans la cavité linéaire formée par les deux faces d'entrée et de sortie de l'échantillon.

Cette coma photoréfractive n'est pas toujours un phénomène nuisible. Son observation est utilisée pour déterminer expérimentalement l'orientation des échantillons. C'est également à partir de cette diffusion amplifiée que fonctionnent certains dispositifs, comme les cavités à gain photoréfractif que nous présenterons dans le paragraphe 5.4, et comme les miroirs à conjugaison de phase autopompés que nous verrons dans le chapitre 6 [113].

#### 5.4.2.2 Réflexions sur les faces

À l'état stationnaire, l'amplitude de l'oscillation optique décrite ci-dessus ne dépend pas de la quantité de lumière diffusée. Elle ne dépend que du gain photoréfractif dans la direction de l'oscillation et des pertes dues à l'absorption du cristal et à la transmission des deux faces. Ces oscillations ont été observées dans différents matériaux tels que  $Bi_{12}SiO_{20}$  sous champ appliqué,  $BaTiO_3$ ,  $LiNbO_3$ ... Une technique pour les éliminer consiste à traiter l'échantillon anti-reflet ou/et à tailler en prisme l'échantillon de sorte que ses faces d'entrée et de sortie ne soient plus parallèles.

Si le produit  $gain \times pertes$  de la cavité est inférieur à 1, l'oscillation ne démarre pas. Les réflexions peuvent néanmoins être extrêmement gênantes. Par exemple sur les figures 20.e, f, nous voyons des franges apparaître. Elles proviennent des interférences entre le faisceau image directement transmis par le cristal et celui qui a subi deux réflexions avant de ressortir. Le second faisceau, bien qu'initialement plus faible, est plus amplifié que le premier (voir figure 23). L'amplification augmente donc la modulation de ces franges d'interférence.

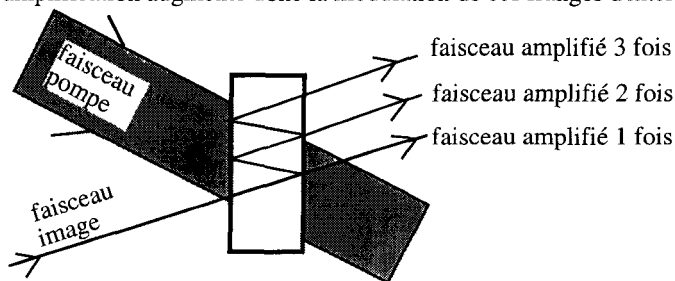


Figure 23 : Illustration schématique de la dégradation par les réflexions multiples de l'image amplifiée .

Le même phénomène peut être observé avec le montage utilisant le cristal de  $BaTiO_3$  traité anti-reflet ayant servi aux acquisitions des images de la figure 19. En attendant un temps long devant le temps d'établissement du transfert d'énergie, on observe dans l'image l'apparition d'un double de cette image (voire d'un triple etc.). Ces images apparaissent après l'amplification du faisceau directement transmis. On peut montrer que cela vient du facteur d'amplification qui est alors plus élevé pour ces images. Si on attend suffisamment longtemps, l'image initiale peut être complètement brouillée par ces images parasites.

Pour d'autres échantillons photoréfractifs, des oscillations peuvent apparaître à l'intérieur d'une cavité en anneau formée par les quatre faces de l'échantillon perpendiculaires au plan d'incidence. Il suffit à nouveau que pour cette cavité le produit  $gain \times pertes$  soit supérieur à l'unité. Les pertes sont dues à l'absorption de l'échantillon et aux pertes par réflexions. Cette absorption peut être très faible de même que les pertes par réflexion qui peuvent être négligeables si la géométrie de la cavité correspond à des réflexions internes totales qui ne peuvent donc pas être éliminés par un traitement anti-reflet. Dans ce cas, même un gain photoréfractif modeste entraîne une oscillation. Pour éliminer ces réflexions une solution

consiste à couper le matériau de sorte qu'il ne puisse pas exister de cavité avec des réflexions totales. Un exemple est donné dans la référence [114].

#### 5.4.2.3 Autres sources de bruit

Nous venons de décrire les deux principales causes de bruit dans les amplificateurs photoréfractifs. Il faut néanmoins savoir que d'autres sources de bruit ou de distorsion d'images [115] existent.

Elles peuvent avoir pour origine les non-linéarités de l'effet photoréfractif que nous avons décrites dans le paragraphe 2.5. Ces réseaux harmoniques peuvent rediffracter la lumière incidente. Même s'ils se trouvent hors de l'incidence de Bragg, ces réseaux parasites ne sont pas forcément négligeables. En effet, ils peuvent être la source de faisceaux parasites qui seront ensuite amplifiés par mélange d'ondes. Si le gain photoréfractif est fort, ces faisceaux parasites deviennent importants.

Une autre source de bruit bien identifiée provient du couplage à deux ondes entre les différentes composantes de Fourier qui composent le faisceau image. Ce bruit est généralement négligeable tant que le faisceau de référence reste fort devant le faisceau image. De plus, il est parfois possible de choisir la configuration photoréfractive de sorte que le couplage d'énergie produit par les réseaux de grands pas (donc entre les composantes de Fourier de l'image) soit bien plus faible que pour les réseaux de petit pas (donc entre l'image et le faisceau de référence). On peut par exemple jouer avec la valeur du champ de charge d'espace. Dans les matériaux dans lesquels le déplacement des charges s'effectue uniquement par diffusion on peut faire en sorte que l'angle entre le faisceau de référence et le faisceau image corresponde au maximum du champ photoréfractif (voir figure 5). Ce n'est plus possible si ce déplacement est assisté par un champ électrique appliqué. Il faut alors jouer sur la dépendance du coefficient électro-optique effectif avec les angles.

#### 5.4.2.4 Techniques de réduction du bruit

De nombreuses techniques ont été proposées pour réduire l'importance de la coma photoréfractive et éliminer les oscillations à l'intérieur de l'échantillon. On pourra consulter avec profit les articles des références [114-121].

Les oscillations peuvent être éliminées en traitant anti-reflet les faces de l'échantillon et en le coupant suivant des géométries particulières pour éliminer les cavités à grands coefficients de surtension [114, 116]. Une autre possibilité consiste à faire tourner lentement l'échantillon autour d'un axe perpendiculaire au plan d'incidence [116]. Cette technique, très efficace, réduit également la coma photoréfractive. Celle-ci peut aussi être diminuée en utilisant des faisceaux de faible section de sorte que la longueur d'interaction entre ces faisceaux et la lumière diffusée soit faible [112].

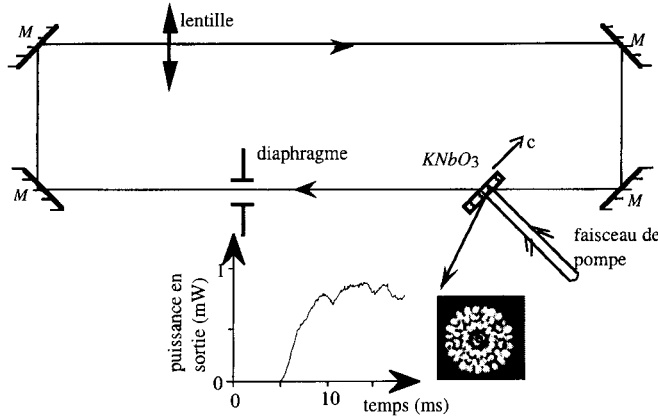
## 5.5 Oscillateurs photoréfractifs

Les oscillateurs à gain photoréfractif sont des cavités résonantes telles qu'utilisées dans les sources laser, mais dans lesquelles le milieu amplificateur laser est remplacé par un amplificateur photoréfractif qui couple de l'énergie entre un ou des faisceaux de pompe vers un ou des faisceaux qui oscillent dans cette cavité. Ces systèmes sont d'un grand intérêt car ils sont à la base de la construction de nombreux composants, tels que les miroirs à conjugaison de phase autopompés que nous décrirons dans le chapitre 6. Dans ce qui suit, nous allons présenter les principales caractéristiques de ces systèmes en étudiant la plus simple des cavités, la cavité unidirectionnelle en anneau avec amplificateur par mélange à deux ondes.

### 5.5.1 *Principe de fonctionnement*

De nombreuses démonstrations d'oscillateurs photoréfractifs par mélange à deux ondes ont été effectuées; le transport de charge dans l'amplificateur photoréfractif pouvant aussi bien s'effectuer par diffusion [122-124], avec l'aide d'un champ électrique appliqué [125] ou avec

l'effet photovoltaïque [126]. Ces montages sont composés d'une cavité en anneau qui peut être stabilisée par des lentilles. Une telle cavité est décrite sur la figure 24 issue de la référence [124].



**Figure 24** : Cavité en anneau avec gain photoréfractif, d'après [124]. L'évolution temporelle du faisceau qui oscille ainsi que sa section sont montrées en bas de la figure. Le diaphragme est ouvert à  $t=0$ .

La lentille sert à stabiliser la cavité et le diaphragme à sélectionner les modes transverses. Le cristal de niobate de potassium (réduit pour diminuer les constantes de temps) est orienté de telle sorte qu'il y ait un transfert d'énergie par mélange à deux ondes entre le faisceau de pompe et le faisceau qui oscille dans la cavité. La réflexion sur une des faces du cristal (14% de réflectivité) permet d'extraire une partie du faisceau de la cavité pour l'observer. Le faisceau de pompe polarisé dans le plan d'incidence est issu d'un laser Argon monomode longitudinal et émettant à la longueur d'onde de 514 nm. Son intensité sur le cristal est de  $2,6 \text{ W/cm}^2$ . L'absorption du cristal de longueur d'interaction  $l \approx 2,3 \text{ mm}$  vaut  $\alpha \approx 1,25 \text{ cm}^{-1}$ . Le gain photoréfractif entre le faisceau de pompe et le faisceau qui oscille est de  $\Gamma \approx 3,4 \text{ cm}^{-1}$  si ces deux faisceaux sont de même fréquence.

On ouvre le diaphragme à  $t=0$ . Après un temps de latence de l'ordre de 5 ms un faisceau avec une structure modale émerge du bruit. Il atteint son maximum environ 5 ms plus tard. Cette caractéristique temporelle est commune à tous les oscillateurs photoréfractif. Le temps de latence est fonction du recouvrement entre la quantité de lumière diffusée par les imperfections du matériau et le mode qui va se mettre à osciller. Avant de saturer, le signal évolue à partir de cette lumière diffusée de façon exponentielle avec une constante de temps qui est proportionnelle à la constante de temps photoréfractive et qui dépend des pertes dans la cavité et du gain photoréfractif. Lorsque le gain est égal aux pertes cette constante de temps devient infinie et le système ne démarre plus. Elle diminue lorsque le gain augmente ou que les pertes diminuent. Elle peut même devenir plus courte que le temps de réponse  $\tau_e$  de l'effet photoréfractif [127].

### 5.5.2 Analyse mathématique

Pour qu'un faisceau puisse osciller, il faut bien entendu que le gain soit supérieur aux pertes. Cependant le gain fourni par le cristal photoréfractif dépend de la différence de fréquences entre le faisceau qui oscille et le faisceau de pompe. Pour trouver la valeur du gain, nous pouvons reprendre l'analyse que nous avons faite pour calculer le gain avec intensification par un réseau mobile (paragraphe 5.3.2). Nous définissons un gain photoréfractif dans ce régime périodique en remplaçant  $E_1$  dans l'expression du gain (5.9) par la solution périodique

$E_2$  (5.16). Comme nous recherchons juste à décrire le fonctionnement du dispositif, nous simplifions l'écriture en considérant que le transfert de charge s'effectue par diffusion. Nous obtenons le gain photoréfractif  $\Gamma_{\delta\omega}$  en régime périodique :

$$\Gamma_{\delta\omega} = \Gamma \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{1 + i\delta\omega \tau_e} \right] = \frac{\Gamma}{1 + (\delta\omega \tau_e)^2}, \tag{5.28}$$

avec  $\delta\omega$  la différence de fréquences entre les deux ondes et  $\Gamma$  le gain pour  $\delta\omega = 0$ .

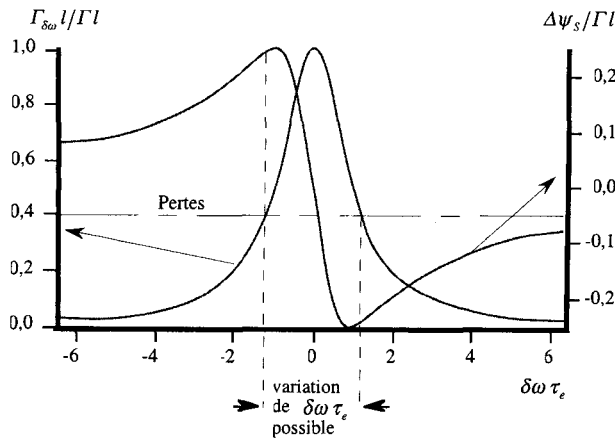
Cette équation montre que la bande passante d'un amplificateur photoréfractif est de l'ordre de  $1/\tau_e$ . Typiquement, en régime d'excitation continue avec les puissances disponibles et selon les matériaux, la bande passante est de l'ordre de quelques Hz à quelques kHz. Cette bande passante est bien plus étroite que l'écart entre les modes longitudinaux d'une cavité en anneau de longueur  $L$  qui est :

$$\Delta\nu = c/L. \tag{5.29}$$

Pour des longueurs  $L$  de quelques dizaines de centimètres, la séparation entre les modes est de l'ordre de  $\Delta\nu \approx 100$  MHz ce qui est très supérieur à  $1/\tau_e$ . Sans réglage particulier de la longueur de la cavité, il n'y a priori aucun mode qui ait un gain photoréfractif suffisant pour pouvoir osciller. Cependant les cavités photoréfractives oscillent sans réglage particulier. Cela provient de ce que le transfert d'énergie par mélange à deux ondes s'accompagne d'une variation de la phase des faisceaux traversant le cristal photoréfractif. De même que nous avons obtenu l'équation (5.12), nous pouvons montrer que dans ce régime périodique la variation de phase induite sur le faisceau qui oscille est donnée par :

$$\Delta\psi_S = - \int_0^l \frac{\Gamma}{2 \cos \theta} \frac{\delta\omega \tau_e}{1 + (\delta\omega \tau_e)^2} \frac{I_R}{I_S + I_R} dz. \tag{5.30}$$

Cette variation de phase peut rattraper un désaccord de la longueur de la cavité. À titre d'illustration, nous allons regarder ce qui se passe au début de l'oscillation (c'est-à-dire pour  $I_S \ll I_R$ ) et pour les données suivantes :  $\Gamma l = 4$  et pertes linéaires de la cavité (diffraction, absorption du cristal et pertes par réflexion) de l'ordre de  $\exp(1,5)$ . Nous avons tracé sur la figure 25 les variations du produit  $\Gamma_{\delta\omega} l$  et du déphasage  $\Delta\psi_S$  introduit par effet photoréfractif en fonction de  $\delta\omega \tau_e$ .



**Figure 25** : Gain photoréfractif et déphasage en fonction du décalage en fréquence entre le mode qui oscille dans la cavité et le faisceau de pompe.



Nous voyons que pour osciller un faisceau doit posséder une fréquence  $\omega'$  voisine de celle  $\omega$  du faisceau de pompe. Si pour cette fréquence, et pour la structure spatiale considérée, la longueur de la cavité "vide" (i.e. en ne prenant pas en compte l'effet photoréfractif) n'est pas adaptée mais possède un désaccord de  $\Delta L$ , alors l'effet photoréfractif peut compenser ce désaccord en introduisant un déphasage voisin de  $\Delta\psi_s \approx 2\pi\Delta L/\lambda$ .

Avec les valeurs numériques utilisées pour tracer la figure 25, l'effet photoréfractif permet de compenser des désaccords de  $|\Delta\psi_s| \approx 1\text{rad}$  soit de  $\pm\lambda/2\pi$ . Pour des produits gain longueur d'interaction plus grands et/ou des pertes plus faibles, il est possible de compenser des désaccords plus importants. Dans l'exemple de la figure 24, il y a toujours un mode qui oscille lorsque le diaphragme est ouvert au maximum. Il n'y a pas de sélection de modes transverses et il y en a donc toujours un qui présente un désaccord inférieur à  $|\Delta\psi_s| \approx 1\text{rad}$ . La cavité saute d'un mode à l'autre principalement à cause des effets thermiques dans le cristal qui modifient perpétuellement la longueur optique de la cavité. Par contre si l'on diminue le diamètre du diaphragme pour ne sélectionner que le mode gaussien  $TEM_{0,0}$ , la longueur de la cavité n'est pas toujours adaptée et la sortie présente de grandes fluctuations allant jusqu'à l'extinction totale du faisceau. Un gain plus fort permettrait d'avoir une sortie plus stable. Le faisceau peut être stabilisé en asservissant la longueur de la cavité sur l'intensité de sortie.

Pour un matériau photoréfractif fonctionnant avec un champ électrique appliqué, on pourrait montrer de même que la fréquence du faisceau qui oscille est voisine de  $\omega + \omega_e$  [125]. Des analyses plus détaillées de ces décalages en fréquence se trouvent dans les références [127-129]. La cinétique est abordée dans [127] tandis que la structure transverse du mode est prise en compte dans [129].

## 6. MÉLANGE À QUATRE ONDES

### 6.1 Introduction

Le mélange à quatre ondes permet la conjugaison de phase. Elle est utilisée pour l'oscillation laser avec correction intra-cavité d'aberrations, le blocage en phase de modes de sources laser, certains filtres temporels, des opérations logiques, l'interférométrie dynamique, les fonctions optiques (seuillage...), la déflexion de faisceaux, les interconnexions, etc.

On peut classer les miroirs à conjugaison de phase dans les deux catégories suivantes.

- Les miroirs dit pompés dans lesquels, outre le faisceau signal dont il souhaite obtenir le conjugué en phase, l'expérimentateur envoie également les deux faisceaux dits de pompe.
- Les miroirs dits autopompés où les faisceaux de pompe sont créés à partir du seul faisceau signal.

Ci-dessous, nous commençons par écrire les équations couplées décrivant le mélange à quatre ondes. Leur résolution nous permet ensuite de souligner les spécificités des miroirs à conjugaison de phase pompés. Pour finir, nous présentons les principaux miroirs à conjugaison de phase autopompés. Leur fonctionnement s'apparente à celui des cavités résonantes que nous venons de décrire dans le chapitre 5.

### 6.2 Équations du mélange à 4 ondes

Nous traitons le mélange à 4 ondes en suivant une démarche similaire à celle que nous avons prise pour le mélange à deux ondes. Les 4 ondes sont des ondes quasi-planes que nous repérons avec l'indice  $i$  allant de 1 à 4. Conformément à la notation (2.1) nous les écrivons en notations complexes :

$$\vec{E}_i^\omega = 0,5 \left[ \hat{e}_i A_i e^{-i(\omega - \vec{k}_i \cdot \vec{r})} + cc \right]. \quad (6.1)$$

La configuration est représentée sur la figure 26. Les faces d'entrée de l'échantillon photoréfractif sont les plans  $z = 0$  et  $z = l$ .

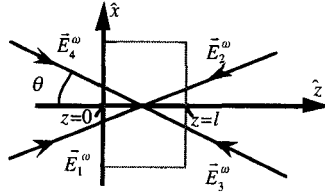


Figure 26 : Définition des orientations des différents vecteurs d'onde par rapport à l'échantillon photoréfractif.

Ce système est relativement complexe puisqu'en général nous avons 6 réseaux possibles de vecteurs d'onde :

$$\vec{k}_r^{i,j} = \vec{k}_i - \vec{k}_j . \tag{6.2}$$

Ils sont représentés schématiquement sur la figure 27.

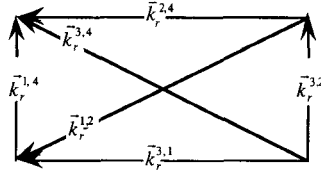


Figure 27 : Vecteurs réseaux induits par mélange à 4 ondes.

Parmi tous ces réseaux possibles, nous considérons que seuls les réseaux par transmission, de vecteurs d'onde  $\vec{k}_r^{3,2}$  et  $\vec{k}_r^{1,4}$ , importent. Le cas où seuls les réseaux par réflexion existent est traité dans la référence [130]. La sélection des seuls réseaux par transmission peut être facilement effectuée expérimentalement, par exemple en choisissant convenablement les polarisations ou alors en faisant en sorte que les ondes (1,4) soient incohérentes avec les ondes (2,3). Cette sélection peut aussi se faire en jouant sur la dépendance en fréquence spatiale du champ de charge d'espace ou en mettant à profit celle du coefficient électro-optique avec l'orientation du vecteur réseau. Un champ électrique appliqué au matériau peut également renforcer ces réseaux plus que les autres.

Pour qu'il y ait mélange à quatre ondes, les faisceaux 1 et 4, respectivement 2 et 3, doivent pouvoir se diffracter sur le réseau inscrit par interférence entre 2 et 3, respectivement 1 et 4. La condition de Bragg (équation 4.8) impose alors que ces deux réseaux aient le même vecteur d'onde soit :

$$\vec{k}_r = \vec{k}_1 - \vec{k}_4 = \vec{k}_3 - \vec{k}_2 . \tag{6.3}$$

Dans les miroirs pompés, c'est l'expérimentateur qui ajuste les angles d'incidence des divers faisceaux aux angles de Bragg. Dans les miroirs autopompés, des ondes vérifiant la condition (6.3) sont créées spontanément.

L'analyse de la cinétique du mélange à quatre ondes ne peut pas se faire analytiquement dans le cas général. Nous ne considérons maintenant que l'état stationnaire. Dans le cadre de l'approximation du régime d'excitation quasi-continue, le champ de charge d'espace  $E_1$  est proportionnel au taux de modulation  $M$  si celui-ci reste faible devant 1. Par exemple, pour une figure d'interférence en intensité il s'écrit :

$$M = 2 \frac{\hat{e}_4^* \hat{e}_1 A_1 A_4^* + \hat{e}_2^* \hat{e}_3 A_3 A_2^*}{\|A_1\|^2 + \|A_2\|^2 + \|A_3\|^2 + \|A_4\|^2} . \tag{6.4}$$

Les équations couplées du mélange à quatre ondes s'obtiennent en suivant la procédure qui nous avait menée au système (5.1) d'équations couplées du mélange à 2 ondes. Une façon plus simple de les écrire est de s'inspirer du schéma de diffraction de la figure 26. Puisque

nous ne prenons en compte que le réseau par transmission, il existe deux systèmes de diffraction séparés. Les amplitudes  $A_1$  et  $A_4$  sont couplées par diffraction sur le réseau. Il en est de même pour les amplitudes  $A_3$  et  $A_2$ . Nous obtenons alors directement les équations couplées du mélange à 4 ondes à partir de (4.33). En supposant le milieu non absorbant et en reportant (6.4) dans (4.33), nous obtenons :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = \frac{-i\omega n_1 n_4^2}{4c (\vec{p}_1' \hat{z})} r_{eff}^{1,4} E_{sc} e^{i\varphi} M A_4, \\ \frac{\partial A_4}{\partial z} = \frac{-i\omega n_4 n_R^2}{4c (\vec{p}_4' \hat{z})} r_{eff}^{1,4*} E_{sc} e^{-i\varphi} M^* A_1, \\ \frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{i\omega n_3 n_2^2}{4c (\vec{p}_3' \hat{z})} r_{eff}^{3,2} E_{sc} e^{i\varphi} M A_2, \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = \frac{i\omega n_2 n_3^2}{4c (\vec{p}_2' \hat{z})} r_{eff}^{3,2*} E_{sc} e^{-i\varphi} M^* A_3. \end{cases} \quad (6.5)$$

Les coefficients électro-optiques effectifs  $r_{eff}^{1,4}$  et  $r_{eff}^{3,2}$  peuvent ne pas être égaux puisqu'ils dépendent non seulement des paramètres du milieu non-linéaire photoréfractif mais aussi des polarisations et des orientations des ondes.

De même que pour le mélange à deux ondes, nous allons alléger les notations en négligeant la biréfringence dans les équations couplées et en considérant que les angles d'incidence sont symétriques. Nous posons donc également (équation (5.7)) :

$$n_i n_j^2 / (\vec{p}_i' \hat{z}) \approx n^3 / \cos \theta. \quad (6.6)$$

### 6.3 Mélange à quatre ondes avec faisceaux de pompe externes

Le système (6.5) peut se résoudre pour différentes conditions aux limites [130]. Nous commençons par étudier un miroir à conjugaison de phase avec ondes de pompe externes c'est-à-dire où l'expérimentateur envoie les deux ondes de pompe, 1 et 2, dans le matériau. Nous avons donc  $A_1(z=0) \neq 0$  et  $A_2(z=l) \neq 0$  avec les deux faces d'entrée disposées en  $z=0$  et en  $z=l$ . Nous choisissons 4 comme onde signal. Les dernières conditions aux limites s'écrivent donc,  $A_3(z=l)=0$  et  $A_4(z=0)$  incident connu. Nous recherchons les expressions des ondes 3 et 4 en fonction de  $z$ . Nous continuons le calcul dans l'approximation des ondes de pompe intenses et non atténuées par l'interaction,  $I_1, I_2 \gg I_3, I_4$ , soit  $I_0 \approx I_1 + I_2$ . Si les faisceaux 1 et 4 (respectivement 3 et 2) ont la même polarisation et si l'angle  $\theta$  est faible alors,  $\cos \theta \approx 1$ ,  $\hat{e}_4^* \hat{e}_1 = \hat{e}_2^* \hat{e}_3 \approx 1$  et les équations précédentes se réduisent à :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_4^*}{\partial z} = \frac{i\omega n^3}{2c} r_{eff}^{1,4} E_{sc} e^{i\varphi} \frac{\|A_1\|^2 A_4^* + A_3 A_2^* A_1^*}{\|A_1\|^2 + \|A_2\|^2}, \\ \frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{i\omega n^3}{2c} r_{eff}^{3,2} E_{sc} e^{i\varphi} \frac{A_1 A_4^* A_2 + A_3 \|A_2\|^2}{\|A_1\|^2 + \|A_2\|^2}. \end{cases} \quad (6.7)$$

Ce système peut se résoudre sous la forme matricielle suivante :

$$\frac{\partial \vec{V}}{\partial z} = B \vec{V} \quad \text{avec} \quad B = \begin{bmatrix} a_{44} & a_{43} \\ a_{34} & a_{33} \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{V} = \begin{bmatrix} A_4^* \\ A_3 \end{bmatrix}. \quad (6.8)$$

Les valeurs propres  $b_1$  et  $b_2$  de la matrice  $M$  et les deux vecteurs propres associés sont :

$$b_{1,2} = \frac{1}{2} \left( (a_{33} + a_{44}) \pm \sqrt{(a_{33} - a_{44})^2 + 4 a_{43} a_{34}} \right) \quad \text{et} \quad \vec{V}_{1,2} = \begin{bmatrix} a_{33} - b_{1,2} \\ -a_{34} \end{bmatrix}. \quad (6.9)$$

En introduisant deux constantes d'intégration  $c_1$  et  $c_2$ , la solution du système (6.8) s'écrit :

$$\begin{bmatrix} A_4^*(z) \\ A_3(z) \end{bmatrix} = c_1 \bar{V}_1 e^{b_1 z} + c_2 \bar{V}_2 e^{b_2 z} . \quad (6.10)$$

En prenant comme conditions aux limites  $A_3(l) = 0$  et  $A_4(0)$  incident connu, nous obtenons :

$$\begin{cases} A_4^*(z) = A_4^*(0) \frac{(a_{33} - b_1) e^{(z-l)b_1} - (a_{33} - b_2) e^{(z-l)b_2}}{(a_{33} - b_1) e^{-b_1 l} - (a_{33} - b_2) e^{-b_2 l}} , \\ A_3(z) = -a_{34} A_4^*(0) \frac{e^{(z-l)b_1} - e^{(z-l)b_2}}{(a_{33} - b_1) e^{-b_1 l} - (a_{33} - b_2) e^{-b_2 l}} . \end{cases} \quad (6.11)$$

La réflectivité du miroir s'écrit :

$$R = \left\| \frac{A_3(0)}{A_4^*(0)} \right\|^2 = \left\| \frac{-a_{34} (e^{-b_1 l} - e^{-b_2 l})}{(a_{33} - b_1) e^{-b_1 l} - (a_{33} - b_2) e^{-b_2 l}} \right\|^2 . \quad (6.12)$$

L'onde  $\bar{E}_3^\omega$  sera donc bien l'onde conjuguée en phase de l'onde  $\bar{E}_4^\omega$  si les trois conditions suivantes sont remplies.

- Le mélange doit être dégénéré ou quasi-dégénéré (ondes de mêmes fréquences ou de fréquences très voisines).
- Le vecteur d'onde de l'onde 3 doit être opposé à celui de 4, ce qui, en plus de la condition de Bragg (6.3), impose que les vecteurs d'onde des deux faisceaux de pompe soient également opposés.
- La réflectivité ne doit pas dépendre des coordonnées  $x$  et  $y$ ; les ondes pompes, outre être conjuguées en phase l'une de l'autre, doivent également avoir des intensités  $I_1$  et  $I_2$  uniformes sur la section du faisceau sonde 4.

Nous n'avons pas pris en compte l'absorption dans cette analyse. Sa prise en compte conduit à une expression légèrement plus compliquée qui comporte une intégrale devant être résolue numériquement. Elle est donnée dans [130]. L'effet principal de l'absorption est de diminuer la réflectivité. La prise en compte de l'atténuation des faisceaux pompe par le couplage peut également être faite dans la mesure où il n'y a pas d'absorption. Les expressions obtenues [130] à partir de la résolution du système (6.5), bien qu'analytiques, sont bien plus lourdes. Néanmoins, cette résolution n'est toujours pas valable si le taux de modulation  $m$  devient fort car le champ de charge d'espace n'est plus proportionnel à  $m$  et le système (6.5) est alors faux.

L'étude de l'établissement temporel du faisceau conjugué en phase, en l'absence d'absorption et dans l'hypothèse des faisceaux de pompe non atténués, a été menée analytiquement dans la référence [131]. Il y est montré que le temps d'établissement est d'autant plus court que le gain photoréfractif est fort. Il y est aussi montré que le signal conjugué peut être instable temporellement pour certaines valeurs du gain et du rapport des intensités des faisceaux pompe.

Dans ce qui suit nous continuons avec cette approche simple des faisceaux de pompe non atténués. Nous considérons deux cas particuliers que nous distinguons par la polarisation des ondes de pompe.

### 6.3.1 Les polarisations des deux ondes de pompe sont parallèles

Pour cette configuration nous avons,  $r_{eff}^{1,4} = r_{eff}^{3,2}$ ,  $b_2 = 0$  et  $b_1 = a_{33} + a_{44}$ . De l'équation (6.12), nous déduisons immédiatement la réflectivité :

$$R = \left\| \frac{\text{sh}(b_1 l / 2)}{\text{ch}(b_1 l / 2 + \ln(r) / 2)} \right\|^2 \quad \text{avec } r = \frac{I_2}{I_1} \quad \text{et } b_1 = i \frac{g}{2} e^{i\varphi} . \quad (6.13)$$

La valeur de  $r$  qui rend cette réflectivité maximale est :

$$\text{Re}(b_1 l + \ln(r)) = 0 . \quad (6.14)$$

Pour un réseau photoréfractif créé par la diffusion des porteurs de charge, la réflectivité est finie car  $\varphi = \pm \pi/2$ . Elle n'est généralement pas très grande. Par exemple, on trouve une réflectivité de  $R \approx 13$  pour la valeur optimale de  $r \approx 1,8\%$  si le gain photoréfractif est de  $\Gamma = 20 \text{ cm}^{-1}$  avec une longueur d'interaction de  $l = 4 \text{ mm}$ , valeurs que l'on peut aisément obtenir dans un échantillon de titanate de baryum. Avec des matériaux tels que les sillénites ou les semi-conducteurs qui présentent des produits  $\Gamma l$  plus faibles, typiquement  $\Gamma l = 1$  sans champ appliqué, la réflectivité reste limitée à 6%.

L'équation (6.13) montre que la réflectivité devient infinie si  $\text{Im}(b_1 l) = \pi$  et si (6.14) est vérifiée, auquel cas on a auto-oscillation. C'est-à-dire qu'un faisceau conjugué en phase est spontanément créé par le miroir même en l'absence de faisceau sonde incident. Pour un réseau local,  $\varphi = 0$ ,  $b_1 = i g/2$  est imaginaire pur. Cette réflectivité infinie est prévue pour  $g l = 2\pi$  et  $r = 1$  c'est-à-dire pour les intensités des ondes de pompe égales.

Ces configurations donnant l'auto-oscillation peuvent être également obtenues dans les matériaux photoréfractifs par application d'un champ externe, auquel cas  $\varphi$  s'écarte de  $\pm \pi/2$ . En fait, si le gain est suffisamment grand, un léger désaccord de fréquence pourrait apparaître spontanément entre les ondes de pompe à la fréquence  $\omega$ , l'onde sonde à la fréquence  $\omega + \delta\omega$  et l'onde conjuguée à la fréquence  $\omega - \delta\omega$ . Ces deux ondes, signal et conjuguée, sont créées avec les décalages en fréquences optimaux. Nous laissons le soin au lecteur de faire la démonstration en introduisant l'expression du champ de charge d'espace en régime périodique dans les équations couplées (voir les paragraphes 5.3.2 et 5.5.2).

### 6.3.2 Les polarisations des ondes de pompe sont orthogonales

Nous venons de voir que la réflectivité reste faible si le déplacement des charges s'effectue par diffusion et si toutes les polarisations sont identiques. Cela provient de ce que les transferts d'énergie par mélange à deux ondes entre les ondes 1 et 4 d'une part, et les ondes 3 et 2 d'autre part, sont identiques en sens et amplitude. Ainsi, si on choisit une configuration telle que l'on amplifie le signal sonde faible 3 alors, du fait du transfert d'énergie de 4 vers 2, le faisceau conjugué 4 restera faible. Pour augmenter la réflectivité, il semble intéressant de dissymétriser ce transfert d'énergie en jouant sur les polarisations des ondes.

#### 6.3.2.1 Cristaux ferroélectriques de classe 4mm

Le champ de charge d'espace est créé par diffusion,  $\varphi = \pm \pi/2$ . Les coefficients du tenseur électro-optique mis en jeu sont différents pour les polarisations extraordinaires et ordinaires,  $r_{eff}^{ext.} \gg r_{eff}^{ord.}$ . Nous pouvons donc faire en sorte que  $r_{eff}^{1,4} \neq r_{eff}^{3,2}$ . Cependant le sens du transfert reste le même pour les 2 couples d'ondes.

En reprenant les équations précédentes, on montre que la réflectivité du miroir à conjugaison de phase sera plus importante si les ondes 1 et 4 sont polarisées ordinairement et les deux autres extraordinairement. Cela permet de fortement transférer l'énergie de l'onde 2 dans la direction de 3, tandis que 4 n'est pas trop atténuée par mélange avec 1. Il n'y a toujours pas d'auto-oscillation mais la réflectivité est plus importante.

#### 6.3.2.2 Cristaux semi-conducteurs de classe $\bar{4}3m$

Nous verrons dans le chapitre 7 que lorsque le vecteur d'onde du réseau est selon la direction cristallographique (110), le signe du coefficient électro-optique est différent selon que les polarisations sont à  $+45^\circ$  ou  $-45^\circ$  de la direction (001). Ainsi lorsque les polarisations des ondes de pompe sont croisées et à  $\pm 45^\circ$  de (001),  $r_{eff}^{1,4} = -r_{eff}^{3,2}$ . Si de plus  $\varphi = \pi/2$  alors,  $b_2 = 0$  et  $b_1 = a_{33} + a_{44}$ . Nous obtenons la réflectivité :

$$R = \left( \frac{\text{sh}(b_1 l/2)}{\text{sh}(b_1 l/2 + \ln(r)/2)} \right)^2 \quad \text{avec} \quad b_1 = -\frac{g}{2} \frac{I_1 - I_2}{I_0} \quad (6.15)$$

Il y a auto-oscillation lorsque  $b_l l = -\ln(r)$  c'est-à-dire lorsque :

$$\frac{gl}{2} = \frac{1+r}{1-r} \ln(r) . \quad (6.16)$$

Cette équation n'a de solution en  $gl$  que si :

$$|gl| > 4 . \quad (6.17)$$

Pour observer l'auto-oscillation il faut donc un gain suffisamment fort. Ce seuil en gain croît avec l'absorption.

Dans un miroir à conjugaison de phase, on ne recherche pas forcément à avoir auto-oscillation mais plus simplement à obtenir de fortes réflectivités. Avec l'exemple précédent des sillenites ou des semi-conducteurs sans champ électrique appliqué, nous avons pris  $\Gamma l = 1$  ce qui nous donne une réflectivité d'environ 11%, optimisée en jouant sur le rapport  $r$ . Cette valeur est à comparer aux 6% obtenus avec les faisceaux polarisés de la même façon.

## 6.4 Miroirs autopompés

Nous venons de voir que des ondes peuvent naître spontanément. Nous allons maintenant nous intéresser à des configurations dans lesquelles seules une ou deux ondes signal sont envoyées dans le matériau. Ces configurations vont être choisies de façon à ce que les ondes de pompe soient créées automatiquement à partir de la diffusion de la lumière. Les ondes signal seront conjuguées en phase sans le recours à des faisceaux de pompe externes. Ces miroirs autopompés possèdent un certain nombre de caractéristiques communes que nous allons détailler sur l'exemple du miroir à double conjugaison de phase. De nombreux autres miroirs à conjugaison de phase autopompés existent. Nous passerons en revue les principaux de façon plus succincte. Plus de détails sur ces miroirs sont regroupés dans la référence [132].

### 6.4.1 Miroir à double conjugaison de phase

#### 6.4.1.1 Équations d'évolution

Le système (6.5) peut être résolu pour d'autres conditions aux limites. Nous allons maintenant étudier le miroir à double conjugaison de phase [133, 134]. Dans cette configuration seules deux ondes 1 et 3, sont envoyées sur le cristal. Elles correspondent à deux ondes signal que l'on désire conjuguer en phase :  $A_1(z=0)$  et  $A_3(z=l)$  sont donc connues. Les ondes 2 et 4 sont spontanément créées par le système soit,  $A_2(z=l) = 0$ ,  $A_4(z=0) = 0$ . Nous recherchons maintenant les expressions de  $A_2(z=0)$  et de  $A_4(z=l)$ .

Nous allons encore une fois faire l'approximation des ondes non atténuées par l'interaction. Le système d'équations (6.5) se réduit donc à un système de deux équations à deux inconnues. Pour alléger l'écriture nous supposons toujours l'angle  $\theta$  faible et  $\hat{e}_4^* \hat{e}_1 = \hat{e}_2^* \hat{e}_3 \approx 1$  ce qui nous donne :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_4}{\partial z} = \frac{-i\omega n^3}{2c} r_{eff}^{1,4*} E_{sc} e^{-i\varphi} \frac{\|A_1\|^2 A_4 + A_3^* A_1 A_2}{\|A_1\|^2 + \|A_3\|^2}, \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = \frac{i\omega n^3}{2c} r_{eff}^{3,2*} E_{sc} e^{-i\varphi} \frac{A_3 A_1^* A_4 + \|A_3\|^2 A_2}{\|A_1\|^2 + \|A_3\|^2}. \end{cases} \quad (6.18)$$

Ce système peut s'écrire sous une forme similaire au système (6.8) :

$$\frac{\partial \vec{V}'}{\partial z} = B' \vec{V}' \quad \text{avec} \quad B' = \begin{bmatrix} a'_{44} & a'_{42} \\ a'_{24} & a'_{22} \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{V}' = \begin{bmatrix} A_4 \\ A_2 \end{bmatrix}. \quad (6.19)$$

La résolution en est identique. Pour pouvoir effectuer cette résolution, nous supposons pour l'instant que  $A_4(z=0) \neq 0$ . Une fois les résultats obtenus, nous ferons tendre  $A_4(z=0)$  vers 0. Nous aboutissons à :

$$\begin{cases} A_4(z) = A_4(0) \frac{(a'_{22} - b'_1) e^{(z-l)b'_1} - (a'_{22} - b'_2) e^{(z-l)b'_2}}{(a'_{22} - b'_1) e^{-b'_1 l} - (a'_{22} - b'_2) e^{-b'_2 l}}, \\ A_2(z) = -a'_{24} A_4(0) \frac{e^{(z-l)b'_1} - e^{(z-l)b'_2}}{(a'_{22} - b'_1) e^{-b'_1 l} - (a'_{22} - b'_2) e^{-b'_2 l}}, \end{cases} \quad (6.20)$$

avec,

$$b'_{1,2} = \frac{1}{2} \left( (a'_{22} + a'_{44}) \pm \sqrt{(a'_{22} - a'_{44})^2 + 4 a'_{42} a'_{24}} \right). \quad (6.21)$$

Si le dénominateur de l'équation (6.20) s'annule alors il y a auto-oscillation, c'est-à-dire que l'on aura  $A_4(l) \neq 0$  et  $A_2(0) \neq 0$  même avec  $A_4(0) = 0$  et  $A_2(l) = 0$ . Nous recherchons cette condition d'auto-oscillation en nous restreignant au cas où toutes les polarisations sont identiques et avec  $\varphi = \pi/2$ . Nous avons donc  $r_{\text{eff}}^{1,4} = r_{\text{eff}}^{3,2}$ ,  $b_2 = 0$  et  $b'_1 = a'_{44} + a'_{22}$ . Nous retrouvons la même condition d'auto-oscillation que celle donnée par l'équation (6.16), soit :

$$\frac{gl}{2} = \frac{1+r}{1-r} \ln(r), \quad (6.22)$$

qui n'a de solution en  $gl$  que si

$$|gl| > 4. \quad (6.23)$$

Le calcul de l'état stationnaire au-dessus de seuil est un peu laborieux bien qu'il soit analytique [130, 133, 135]. Néanmoins cette résolution basée sur le système (6.5) ne prend pas en compte les non-linéarités de l'effet photoréfractif qui sont obtenues aux forts taux de modulation. Pour les prendre en compte, seule une résolution numérique est appropriée [136, 137]. On montre que ces non-linéarités diminuent l'efficacité du dispositif. Ces résolutions numériques permettent également d'inclure les effets de l'absorption qui diminue l'efficacité et augmente le seuil.

#### 6.4.1.2 Explication de l'auto-oscillation

Au-dessus du seuil, les deux ondes 4 et 2 émergent du matériau. Que représentent elles? Pour le comprendre, nous pouvons nous référer à la figure 28. Pour l'instant nous considérons que tout se passe dans le plan de la figure. Le système démarre sur la diffusion amplifiée, comme la coma photoréfractive que nous avons présentée dans le paragraphe 5.4.2, et comme les cavités résonantes à amplificateur photoréfractif du paragraphe 5.5. L'onde 1 est atténuée au détriment de sa lumière diffusée. Un continuum de réseaux est ainsi inscrit. De même, l'onde 3 inscrit un autre continuum entre elle-même et sa lumière diffusée. Cette lumière diffusée et amplifiée se propage vers le bas de la figure, comme pour le premier continuum. Cela vient de ce que les polarisations sont identiques sur les deux faisceaux et donc le sens du transfert d'énergie est le même. Les vecteurs d'onde de ces deux continums diffèrent tous sauf pour deux d'entre eux qui se trouvent communs aux deux continums (vecteurs en gris sur la figure 28). Il se passe alors le phénomène suivant. Lorsque le faisceau 1 se propage vers les  $z$  positifs, il renforce ce réseau particulier mais efface tous les autres réseaux du second continuum. De même le faisceau 2 efface tous les réseaux du premier continuum sauf ce réseau particulier qu'il renforce. On assiste à un effet boule de neige : à l'état stationnaire et si le gain est suffisamment grand, seul ce réseau persiste.

On aurait pu faire exactement le même raisonnement sans passer par les ondes planes. Le système se met à osciller dans la mesure où l'onde 1 inscrit avec sa lumière diffusée un réseau qui peut se superposer à un autre inscrit entre l'onde 3 et sa lumière diffusée. Cette condition s'écrit :

$$A_1 A_4^* e^{i(\vec{k}_1 - \vec{k}_4) \cdot \vec{r}} \propto A_3 A_2^* e^{i(\vec{k}_3 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}}, \quad (6.23)$$

soit,

$$A_1 A_4^* \propto A_3 A_2^* \quad \text{et} \quad \vec{k}_1 - \vec{k}_4 = \vec{k}_3 - \vec{k}_2. \quad (6.24)$$

La deuxième condition de (6.24) équivaut à la condition d'accord de Bragg (6.3). Si l'on se cantonne au plan de la figure 28, les vecteurs d'onde  $\vec{k}_4$  et  $\vec{k}_2$  sont parfaitement définis.





#### 6.4.1.5 Transfert d'information.

Le faisceau 4 correspond à la diffraction du faisceau 1 sur le réseau photoréfractif. La structure spatiale de 4 est donc celle du conjugué de 3 mais sa structure temporelle est celle de 1. Il en est de même pour 2 et 3. Cette propriété permet donc d'envoyer de l'information temporelle véhiculée par 1 vers la source de l'onde 3; elle est à la base de nombreux dispositifs d'interconnexion [133].

#### 6.4.1.6 Influence de la coma photoréfractive

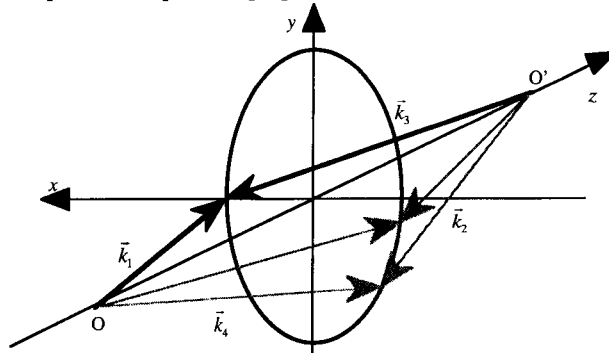
Nous avons souligné le fait que le miroir à double conjugaison de phase démarre sur la lumière diffusée. La conjugaison de phase est donc en compétition avec le phénomène de coma photoréfractive. Des résolutions numériques [113, 141] ont montré qu'un gain photoréfractif trop fort diminue l'efficacité de diffraction du miroir au détriment de la coma. Un produit  $\Gamma l$  optimum existe donc.

Cette lumière diffusée étant à l'origine des oscillations, l'état stationnaire est atteint d'autant plus vite que la quantité de lumière diffusée est importante. Un faisceau externe peut jouer le rôle de cette lumière diffusée afin de diminuer le temps de réponse [142, 143].

#### 6.4.1.7 Dégénérescence conique

Pour décrire le fonctionnement du miroir à double conjugaison de phase, nous avons raisonné dans un plan, celui de la figure 28. En fait, rien ne restreint les vecteurs d'onde à rester dans ce plan. La condition de Bragg offre en effet une dégénérescence conique (paragraphe 4.2.2). En reprenant notre raisonnement en onde plane, nous nous apercevons, voir figure 29, qu'une multitude de couples  $(\vec{k}_2, \vec{k}_4)$  vérifient la condition (6.24). Les ondes correspondantes peuvent donc exister. Ces vecteurs d'onde définissent deux cônes d'origine O et O' et dont la base est le cercle de la figure 29. Pour ces solutions hors du plan  $(x, z)$ , les ondes 2 et 4 ne sont pas les conjuguées en phase des ondes 1 et 3.

Différentes techniques existent pour lever cette dégénérescence conique et éliminer ainsi toutes les ondes hormis les ondes conjuguées. L'une consiste à ne pas utiliser des ondes planes incidentes mais des ondes portant de très fortes aberrations [144, 145]. Dans une seconde méthode [146, 147], on contraint toutes les ondes à rester dans le plan  $(x, z)$  à l'aide d'optiques cylindriques. Une solution plus compliquée consiste à faire intervenir deux échantillons séparés par un composant optique [148].



**Figure 29** : Dégénérescence conique dans le miroir à double conjugaison de phase. Deux couples de vecteurs d'onde en gris sont solutions de (6.24) sans pour autant représenter des ondes conjuguées en phase de 1 et 3.

### 6.4.2 Miroirs auto-pompés à miroirs externes

#### 6.4.2.1 Miroirs à boucle externe en anneau

De nombreux autres miroirs à conjugaison de phase autopompés existent. Celui représenté sur la figure 30, le miroir en anneau, est dérivé du miroir à double conjugaison de phase que nous

avons présenté ci-dessus. Il fonctionne avec les mêmes polarisations et avec la même orientation du transfert d'énergie, de 1 vers 4 et de 3 vers 2. Le faisceau 3 n'est autre que le faisceau signal 4 qui a traversé le matériau et que l'on renvoie par l'intermédiaire d'un jeu de miroirs sur ce même matériau. Ce miroir hérite des particularités du miroir à double conjugaison de phase. Il souffre de dégénérescence conique que l'on peut lever en insérant des éléments optiques, tels que lentilles et prismes à l'intérieur de la cavité [149, 150]. Il fonctionne également avec des faisceaux de faible longueur de cohérence et reste très peu sensible aux vibrations. Ces vibrations peuvent même être utiles. En effet, si la longueur de cohérence de la source laser est supérieure à la longueur de la boucle, alors des réseaux peuvent s'inscrire par réflexion entre les faisceaux de chaque couple (1, 2) et (3, 4). Par diffraction sur ces réseaux, par exemple 1 qui se diffracte sur le réseau inscrit par le couple (1, 2), on crée un faisceau 2' qui se propage dans la direction de 2 avec la structure spatiale de ce dernier. Ce faisceau diffracté 2' se superpose au faisceau conjugué. Habituellement il est malheureusement en opposition de phase avec 2. Ces réseaux supplémentaires réduisent donc la réflectivité du miroir à conjugaison de phase et de plus, peuvent rendre le faisceau conjugué 2 instable. Faire vibrer le montage, ou un des miroirs de renvoi, permet de faire varier la longueur de la boucle et donc de brouiller les franges de ces réseaux par réflexion. Ceci augmente la réflectivité lorsque l'on emploie des sources laser de grande longueur de cohérence. Par contre cela ne brouille pas les réseaux par transmission.

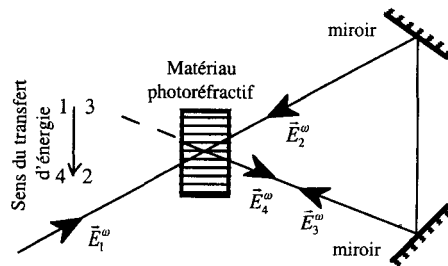


Figure 30 : Miroir à conjugaison de phase auto-pompé à cavité en anneau.

L'analyse du fonctionnement de ce miroir présentée dans la référence [130] montre que le seuil d'oscillation en gain est abaissé à  $|g| = 2$  du fait de la présence de la boucle. Une analyse mettant en évidence l'importance de la lumière diffusée est présentée en [141, 113]. Les non-linéarités de l'effet photoréfractif aux forts taux de modulation sont prises en compte dans [137].

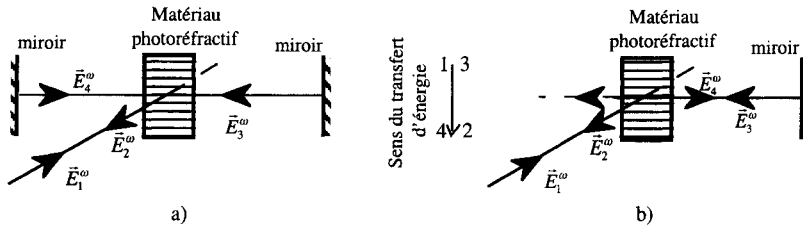
#### 6.4.2.2 Miroirs à cavités linéaires et semi-linéaires

Un miroir à conjugaison de phase autopompé à cavité linéaire est constitué d'un matériau photoréfractif inséré dans une cavité résonante linéaire de type Fabry Perot. Sur la figure 31.a nous avons représenté une cavité formée de deux miroirs mais celle-ci pourrait être stabilisée par l'emploi de miroirs sphériques ou à l'aide d'une lentille. L'oscillation dans la cavité part à partir de la lumière diffusée et amplifiée à partir du faisceau signal 1. Le processus est similaire à celui que nous avons décrit pour les cavités en anneau (paragraphe 5.5). Il suffit pour cela que le gain,  $\exp(\Gamma l)$ , obtenu par transfert d'énergie entre 1 et 4 soit supérieur aux pertes dans la cavité. Par construction les faisceaux 4 et 3 sont conjugués en phase l'un de l'autre. Le faisceau 3 se diffracte sur le réseau inscrit et produit le faisceau 2 conjugué de l'onde signal 1. Le seuil en gain de ce miroir à conjugaison de phase est par définition égal aux pertes. Pour un système sans pertes, ou avec des pertes négligeables, il est nul.

Le faisceau qui oscille dans la cavité, l'onde 4 qui se transforme en 3 par réflexion, est un mode de la cavité. Sa fréquence est donc définie par le chemin optique de cette cavité. Nous retrouvons donc les mêmes problèmes que ceux nous avons rencontrés lors de l'étude des cavités en anneau dans le paragraphe (5.5) : sensibilité à la longueur de la cavité et décalage

en fréquence entre le faisceau qui oscille et le faisceau 1 que l'on injecte. Un fonctionnement stable de ces cavités impose un asservissement en longueur.

Cette sensibilité à la longueur de la cavité provient de ce que le faisceau qui oscille doit interférer avec le faisceau 1 après plus d'un aller et retour. Pour cette raison, ce système ne peut fonctionner qu'avec des faisceaux de longueurs de cohérence plus grandes que la longueur de la cavité, ou avec une cavité dont la longueur est un multiple de celle de la source laser. Pour cette même raison le système est très sensible aux vibrations.



**Figure 31 :** Miroirs à conjugaison de phase autopompés à cavité linéaire a) et semi-linéaire b).

Une fois que le système fonctionne, et si le gain est suffisamment élevé, on peut enlever le miroir de gauche sur la figure 31.a. Le système fonctionne toujours. On obtient ainsi le miroir à conjugaison de phase autopompé semi-linéaire représenté sur la figure 31.b. Si l'on ne prend en compte que le système d'équations (6.5), c'est-à-dire sans prendre en compte la lumière diffusée, la cavité semi-linéaire ne peut pas démarrer seule et il faut partir de la cavité linéaire pour lancer l'oscillation avant d'enlever un miroir [130]. En fait, l'expérience a montré que très souvent la diffusion de la lumière est suffisamment importante pour que le dispositif démarre avec son seul miroir. Cela est confirmé par l'analyse numérique menée dans [136].

#### 6.4.3 Miroirs autopompés à réflexions internes

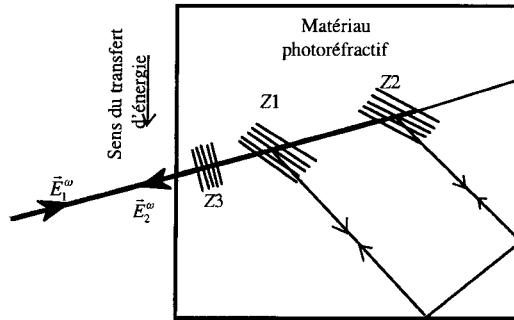
Le miroir à réflexions internes est un système autopompé dans lequel la cavité formant la boucle de réaction est fermée par les réflexions sur les faces de l'échantillon [151].

Le fonctionnement représenté sur la figure 32 est dit "à deux zones d'interaction couplées" [152] mais d'autres fonctionnements existent [153]. Dans chacune de ces deux zones Z1 et Z2 on a une interaction à 4 ondes. Ces deux zones définissent deux miroirs. Ils ferment une cavité dont les deux autres miroirs sont composés par les réflexions sur les faces de l'échantillon. Dans cette cavité ainsi définie oscille un faisceau. Cette géométrie à deux zones d'interaction est probablement une simplification extrême du fonctionnement du miroir dans lequel les zones d'interaction sont probablement moins bien spatialement définies.

Il a été démontré récemment que le trajet de la lumière dans la boucle impose des pertes minimales dues à l'absorption qui devraient limiter la réflectivité à des valeurs inférieures à celles mesurées [154]. On soupçonne donc l'existence d'un réseau par réflexion (zone Z3 sur la figure 32) qui renvoie une partie de la lumière dans le faisceau conjugué en phase. Le trajet optique est ainsi minimisé ce qui diminue d'autant les pertes.

De très fortes réflectivités ont été mesurées avec ce type de miroirs, par exemple 76% avec un cristal de  $BaTiO_3$  dans la gamme de longueurs d'onde 720-1004 nm. [154].

Si obtenir un faisceau conjugué en phase avec ce type de miroirs est relativement aisé, l'optimisation se révèle être plus délicate. Pour un échantillon donné, les paramètres de cette optimisation sont l'angle d'incidence du faisceau signal, sa section et sa position sur la face d'entrée. Le faisceau conjugué présente parfois des instabilités temporelles [155]. Faire vibrer légèrement l'échantillon photoréfractif peut stabiliser ce conjugué en phase en éliminant des réseaux parasites [154].



**Figure 32** : Miroir à conjugaison de phase autopompé à réflexions internes, Z1 et Z2 sont les deux zones principales d'interaction, Z3 est une troisième zone qui peut exister dans certaines configurations.

## 7. PRÉSENTATION DE MATÉRIAUX

### 7.1 Introduction

Les matériaux photoréfractifs présentent une très grande diversité qu'il est illusoire de vouloir décrire en quelques pages. De plus, la souplesse de préparation des matériaux organiques comme les polymères, rend ces échantillons très différents les uns des autres dès que le protocole de préparation est modifié. Pour cette raison, nous allons limiter la présentation suivante aux cristaux photoréfractifs inorganiques les plus utilisés. Ils sont souvent disponibles commercialement avec des propriétés reproductibles. Des informations complémentaires sur ces cristaux et d'autres cristaux photoréfractifs, sont rassemblées dans la référence [156].

Plusieurs critères entrent en ligne de compte lors de la sélection d'un échantillon pour une expérience donnée. Parmi ceux-ci, on peut citer :

- la longueur d'onde d'utilisation;
- la sensibilité;
- l'absorption;
- la variation d'indice induite;
- la qualité optique;
- l'utilisation ou non d'un champ appliqué;
- la résolution des images enregistrées;
- la constante de temps de mémorisation dans l'obscurité;
- la possibilité ou l'impossibilité de fixer les hologrammes;
- le processus de diffraction désiré (isotrope, anisotrope);
- la géométrie d'interaction (copropageante, 90°, contrepropageante);
- etc.

Dans la définition d'une application, ces critères sont souvent interdépendants. Par exemple, la lumière diffusée à partir d'un faisceau de référence fort peut totalement noyer le faisceau signal que l'on veut analyser. Est-il préférable d'avoir un matériau d'excellente qualité optique mais qui fonctionne avec un faible angle entre les faisceaux signal et référence (i.e. en copropageant) ou un matériau de moindre qualité mais utilisable à 90° (auquel cas le faisceau signal se propage dans une direction éloignée du maximum de diffusion du faisceau de référence)?

Du fait de la diversité de ces critères, cette sélection est donc souvent délicate à effectuer. Le dessin de l'application doit absolument prendre en compte les caractéristiques du matériau.

Avant de décrire ces matériaux, nous récapitulons une procédure que l'on peut suivre pour choisir une configuration photoréfractive.

## 7.2 Configurations photoréfractives

Avant d'employer un matériau photoréfractif il faut tout d'abord définir le processus de diffraction voulu : isotrope ou anisotrope. Si on souhaite un processus isotrope il faudra s'assurer que le processus anisotrope est nul ou négligeable (et vice versa). Il faut également vérifier que les ondes de lecture sont à l'angle de Bragg pour le processus souhaité. En effet, du fait de la forte anisotropie optique de certains matériaux, l'angle de Bragg pour un processus anisotrope (respectivement isotrope) peut se trouver à plus de  $10^\circ$  des angles d'incidence des ondes d'écriture si celles-ci sont polarisées de la même façon (respectivement orthogonalement). Toujours à cause de cette anisotropie, il faut vérifier que les ondes incidentes sur le matériau se couplent bien dans les ondes propres désirées. Si elles se couplent chacune en deux ondes polarisées orthogonalement, deux réseaux sont inscrits. Ces réseaux ne se superposent généralement pas et peuvent se brouiller l'un l'autre. Il est souvent préférable que chaque onde incidente ne se couple qu'à une seule onde propre du matériau.

La sélection d'une configuration expérimentale consiste donc à choisir :

- i) la direction du vecteur d'onde du réseau (soit les directions des vecteurs d'onde des faisceaux d'écriture) par rapport aux axes cristallographiques;
- ii) le pas de ce réseau;
- ii) la direction d'un éventuel champ électrique appliqué;
- iii) la polarisation de ou des ondes de lecture et celle de ou des ondes diffractées.

Une fois cette configuration choisie et à cause de l'angle de réfraction limite, il peut être nécessaire de retailler l'échantillon photoréfractif pour pouvoir y faire rentrer les ondes.

Nous allons maintenant présenter quelques matériaux photoréfractifs et détailler les configurations d'utilisation habituelles. Nous ne prenons en compte que l'effet Pockels qui est suffisant pour définir ces configurations. Néanmoins, il est parfois nécessaire d'ajouter la contribution de l'effet élasto-optique pour calculer exactement le coefficient électro-optique effectif.

Certaines des valeurs données ci-dessous, comme les densités de centres, l'absorption, la plage de longueur d'onde utilisable, dépendent très fortement du dopage et des traitements d'oxydoréduction. Elles varient d'un échantillon à l'autre suivant la préparation subie. Elles ne sont donc données qu'à titre indicatif.

## 7.3 Titanate de baryum $BaTiO_3$

### 7.3.1 Présentation et valeurs des paramètres

Le titanate de baryum est un cristal uniaxe négatif de la classe de symétrie 4mm à température ambiante. Il est ferroélectrique. Ci-dessous l'axe  $\hat{c}$  est numéroté 3. Il possède une transition de phase aux environs de  $6^\circ\text{C}$ . Si un échantillon passe en dessous de cette température pour remonter ensuite à température ambiante, les multiples domaines ferroélectriques créés rendent l'échantillon inutilisable à moins de le repolariser pour le rendre à nouveau monodomaine. Une contrainte appliquée suivant l'axe ferroélectrique  $\hat{c}$  peut également le désorienter.

Actuellement, les échantillons sont disponibles dans des petites dimensions inférieures au centimètre cube. Plusieurs dopants sont utilisés couramment, notamment :

- le dopage au fer produit des matériaux sensibles dans le domaine visible, de 800 nm à 480 nm;

- le dopage au cobalt, toujours pour le domaine de 800 nm à 480 nm, accroît la densité de pièges photoréfractifs et rend les caractéristiques plus reproductibles que pour ceux dopés au fer;

- le dopage au rhodium augmente la sensibilité dans le proche infra-rouge jusqu'à 1,06  $\mu\text{m}$ ; la forte augmentation de l'absorption rend ce dopage inutilisable pour le domaine visible.

La densité effective de centres photoréfractifs dépend fortement du dopant, de sa concentration, et de la longueur d'onde employée. Pour un premier calcul, on peut prendre les valeurs suivantes :

$$\begin{cases} N_{eff} \approx 10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ pour un échantillon nominalelement non dopé ou faiblement dopé,} \\ N_{eff} \approx 5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ pour un échantillon dopé.} \end{cases} \quad (7.1)$$

Aux longueurs d'onde d'utilisation, l'absorption est de l'ordre de  $1 \text{ cm}^{-1}$ .

Le tenseur électro-optique à déformations nulles, à la longueur d'onde de 514 nm et à température ambiante est donné par :

$$[r^{u=0}] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13}^{u=0} \\ 0 & 0 & r_{13}^{u=0} \\ 0 & 0 & r_{33}^{u=0} \\ 0 & r_{42}^{u=0} & 0 \\ r_{42}^{u=0} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} r_{13}^{u=0} = 11,9 \text{ pm / V,} \\ r_{33}^{u=0} = 47,5 \text{ pm / V,} \\ r_{42}^{u=0} = 750 \text{ pm / V.} \end{cases} \quad (7.2)$$

Ces valeurs sont extraites de la référence [157] dans laquelle se trouvent également les dépendances de ces coefficients avec la longueur d'onde et la température. Il faut noter la très grande valeur du coefficient  $r_{42}$  qui fait l'intérêt du titanate de baryum.

Les permittivités diélectriques relatives à fréquence nulle et à déformations nulles sont [158] :

$$[\epsilon_s^{r,u=0}] = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^{u=0} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11}^{u=0} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33}^{u=0} \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} \epsilon_{11}^{u=0} = 2174, \\ \epsilon_{33}^{u=0} = 56. \end{cases} \quad (7.3)$$

L'effet photo-élastique est très fort dans le titanate de baryum. La correction qu'il apporte doit absolument être prise en compte pour une interprétation fine de l'effet photoréfractif. Les valeurs des coefficients des tenseurs des rigidités élastiques à champ nul, des tenseurs piézoélectriques et photoélastiques sont réunies dans les références [158, 159]. À la longueur d'onde de 514 nm, les indices valent  $n_1 = n_2 = n_o = 2,49$  et  $n_3 = n_e = 2,42$  [160]. La biréfringence est donc forte et doit être prise en compte pour déterminer les angles de Bragg.

La transition de phase étant proche de la température ambiante, tous ces coefficients varient très rapidement avec la température. Des mesures en fonction de la température sont données dans les références [157-160].

Dans les échantillons brut de croissance la photoconduction s'effectue par l'excitation de trous vers la bande de valence. L'effet photovoltaïque est faible et peut être négligé pour calculer le champ de charge d'espace. Une réduction des échantillons permet d'avoir une photoconduction par électrons. La réduction des échantillons change totalement les propriétés photoréfractives, l'absorption, les constantes de temps et la densité de pièges.

La mobilité est fortement anisotrope [161]. De même, la longueur de diffusion dépend de l'orientation du vecteur réseau. Pour les trous, les valeurs suivantes ont été mesurées [162] :

$$\text{pour } \vec{k}_r // \hat{c}, L \approx 0,08 \mu\text{m} ; \text{ pour } \vec{k}_r \perp \hat{c}, L \approx 0,32 \mu\text{m}. \quad (7.4)$$

Des valeurs similaires ont été obtenues pour les longueurs de diffusion des électrons [26].

L'efficacité quantique du processus d'excitation des charges est faible; ce matériau est peu sensible. Typiquement pour les orientations qui donnent un fort gain photoréfractif (voir ci-dessous) on trouve  $\tau_e I \approx 1 \text{ J/cm}^2$ .

7.3.2 Configurations d'utilisation

Le cristal étant uniaxe, nous prendrons l'axe  $\hat{z}$  parallèle à l'axe  $\hat{c}$ . Le champ  $\vec{E}_1$ , donc la direction du vecteur d'onde du réseau, est dans le plan  $yOz$  et fait un angle  $\beta$  avec l'axe  $\hat{z}$ . Les notations sont reportées sur la figure 33. Les deux axes  $\hat{x}$  et  $\hat{y}$  sont équivalents.

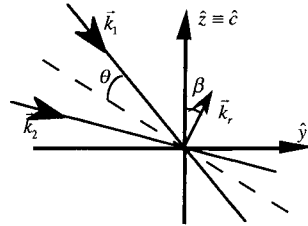


Figure 33 : Définition des orientations des vecteurs d'onde par rapport aux axes cristallographiques.

L'intérêt du titanate de baryum réside essentiellement dans la valeur élevée du coefficient  $r_{42}$  qui permet d'obtenir des variations d'indice, donc des non-linéarités, importantes. Pour atteindre ce coefficient ( $r_{42} = r_{51} \equiv r_{zyy}$ ), il faut que le champ électrique ait une composante non nulle suivant l'axe  $\hat{y}$  ou  $\hat{x}$  et que les polarisations se projettent suivant les deux axes  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  ou  $\hat{x}$  et  $\hat{z}$ . C'est la raison pour laquelle il faut faire le calcul avec le vecteur d'onde  $\vec{k}_r$  incliné d'un angle  $\beta$  par rapport à l'axe  $\hat{z}$ .

Nous allons calculer les deux coefficients électro-optiques effectifs de diffraction isotrope : celui  $r_o$  qui couple une polarisation ordinaire avec une polarisation ordinaire et celui  $r_e$  qui couple une polarisation extraordinaire avec une polarisation extraordinaire et met en jeu  $r_{42}$ . Ces coefficients électro-optiques effectifs  $r_e$  et  $r_o$  sont à la fois fonction du demi-angle  $\theta$  entre les directions de propagation des deux ondes et de l'angle  $\beta$  entre l'axe du cristal et le vecteur réseau  $\vec{k}_r$ . Sans tenir compte de l'effet élasto-optique et en négligeant les composantes longitudinales du champ électrique optique, nous obtenons après un court calcul :

$$n^4 r_e = \frac{1}{2} [n_o^4 r_{13} (\cos 2\theta - \cos 2\beta) + 4 n_e^2 n_o^2 r_{42} \sin^2 \beta + n_e^4 r_{33} (\cos 2\beta + \cos 2\theta)] \cos \beta, \quad (7.5)$$

et,

$$r_o = r_{13} \cos \beta. \quad (7.6)$$

De même pour le coefficient diélectrique effectif :

$$\epsilon_{s,eff}^r = \epsilon_{11} \sin^2 \beta + \epsilon_{33} \cos^2 \beta. \quad (7.7)$$

Ces relations montrent bien que le coefficient  $r_{42}$  n'apparaît que lorsque la polarisation est extraordinaire, c'est-à-dire dans le plan d'incidence, et uniquement si l'angle  $\beta$  entre l'axe  $\hat{c}$  et le champ électrique est non nul. Du fait du large coefficient électro-optique les efficacités de diffraction sont fortes et il n'est pas nécessaire d'appliquer un champ au matériau. Pour un angle  $\beta$  donné, le champ de charge d'espace sera maximum pour l'angle  $\theta$  tel que  $E_q = E_d$ . Pour cet optimal optimum, le pas photo-induit vaut :

$$\Lambda = 2\pi \sqrt{\epsilon_0 \epsilon_{s,eff}^r k_B T / e^2 N_{eff}}. \quad (7.8)$$

Compte tenu de ce que cet angle optimum est faible, la valeur de  $\beta$  qui optimise l'effet photoréfractif sera celle qui optimise le produit  $r_e E_{sc}$  ou de façon équivalente le rapport

$r_e / \sqrt{\epsilon_{s,eff}^r}$ . Cet angle  $\beta$  optimum est de l'ordre de :

$$\beta \approx 45^\circ. \quad (7.9)$$

Cette orientation optimale du vecteur réseau dépend peu de l'échantillon. En effet les valeurs habituelles de  $N_{eff}$  conduisent à des valeurs de  $\theta$  qui sont faibles (géométrie copropageante) et qui interviennent donc peu dans l'expression (7.5) de  $r_e$ . Par exemple avec  $N_{eff} \approx 5 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$  et pour une longueur d'onde dans le vide de 514 nm, nous trouvons :

$$\Lambda \approx 1 \mu\text{m} \text{ et } \theta \approx 6^\circ . \quad (7.10)$$

Pour cette configuration, le gain photoréfractif est très grand et vaut :

$$\Gamma \approx 80 \text{cm}^{-1} . \quad (7.11)$$

Pour pouvoir atteindre ces grandes variations d'indice, et du fait de l'angle de réfraction limite, il est nécessaire d'employer des échantillons dans une coupe dite à 45° de l'axe  $\hat{c}$ . Les faces d'entrée et de sortie de l'échantillon seront des faces (011). Avec un échantillon coupé à 0° (i.e. suivant les plans cristallographiques (100), (010) et (001)) les gains sont plus faibles mais des valeurs de  $\Gamma \approx 20 \text{cm}^{-1}$  sont néanmoins courantes.

Le titanate de baryum peut également s'employer dans une configuration d'enregistrement à 90°, c'est-à-dire avec deux faisceaux se croisant à angle droit. Cela peut être intéressant pour des expériences de type mémoire car cette configuration optimise la sélectivité angulaire. Pour cela la solution la plus simple est d'utiliser des ondes polarisées ordinairement et d'aligner le réseau suivant l'axe  $\hat{c}$ , donc avec  $r_o = r_{13}$ . Le cristal devra également être coupé à 45° de l'axe  $\hat{c}$  et les faisceaux entreront par des faces adjacentes.

Des configurations contrepropageantes sont également possibles.

Pour une analyse fine de l'effet photoréfractif il est nécessaire de prendre en compte l'effet élasto-optique. Il faut alors calculer les coefficients  $r_{ij}^{tot}$  à partir de l'équation (3.34) ou plus simplement, utiliser les expressions précalculées pour  $r_{ij}^{tot}$  données dans la référence [159]. Il reste ensuite à inclure ces expressions dans (7.5) et (7.6). L'expression du coefficient diélectrique effectif prenant en compte cet effet élasto-optique est également donnée dans cette même référence [159]. La prise en compte de cet effet élasto-optique ne modifie pas significativement les valeurs (7.9) et (7.10) qui donnent la configuration optimale.

## 7.4 Niobate de strontium et de baryum, $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$

### 7.4.1 Présentation et valeurs des paramètres

À température ambiante le niobate de strontium et de baryum est ferroélectrique de classe 4mm comme le titanate de baryum. Il est également uniaxe négatif. Les propriétés photoréfractives dépendent fortement de la valeur de  $x$  dans la formule  $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$  que l'on abrège en SBN: $x\%$ . Les coefficients électro-optiques sont plus forts dans le SBN:75 que dans le SBN:60 [163]. Les cristaux sont plus faciles à faire croître pour  $x = 60\%$ , et nous donnons toutes les valeurs des paramètres pour cette composition.

Le dopant le plus employé est le cérium [163-165]. Les échantillons sont sensibles dans tout le spectre visible de 450 à 750 nm. La dépendance de l'absorption avec la concentration de cérium est donnée dans la référence [165]. Elle est approximativement proportionnelle à la concentration et vaut environ  $\alpha \approx 1 \text{cm}^{-1}$  à la longueur d'onde de 514 nm pour une concentration en cérium de 0,1% en poids.

La densité effective de pièges photoréfractifs dépend également de cette concentration et de la longueur d'onde [164]. Par exemple [166] pour une longueur d'onde de 532 nm et une concentration en oxyde de cérium de 0,025% en poids, la valeur suivante a été mesurée :

$$N_{eff} \approx 1,7 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3} . \quad (7.12)$$

Le tenseur électro-optique à contrainte nulle vaut [167] :



$$[r^{T=0}] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13}^{T=0} \\ 0 & 0 & r_{13}^{T=0} \\ 0 & 0 & r_{33}^{T=0} \\ 0 & r_{42}^{T=0} & 0 \\ r_{42}^{T=0} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} r_{13}^{T=0} = 46,7 \text{ pm / V,} \\ r_{33}^{T=0} = 235 \text{ pm / V,} \\ r_{42}^{T=0} = ?? \text{ pm / V.} \end{cases} \quad (7.13)$$

Pour cette composition  $x = 60\%$ , le coefficient  $r_{42}$  n'a pas été mesuré mais il est supposé être plus faible que  $r_{33}$ . L'intérêt du SBN réside dans cette grande valeur de  $r_{33}$ .

Les coefficients diélectriques relatifs à basse fréquence et pour un matériau libre sont [163] :

$$[\epsilon_s^{r,T=0}] = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^{T=0} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11}^{T=0} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33}^{T=0} \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} \epsilon_{11}^{T=0} = 900, \\ \epsilon_{33}^{T=0} = 450. \end{cases} \quad (7.14)$$

Les autres coefficients, piézoélectriques, des rigidités élastiques et élasto-optiques, ne sont pas tous connus de sorte qu'il n'est pas possible de calculer exactement les coefficients électro-optiques et diélectriques effectifs.

Les indices de réfraction ont été mesurés pour du SBN:25, du SBN:50 et du SBN:75. La biréfringence est notable, par exemple à la longueur d'onde de 633 nm et pour du SBN:50, ils valent  $n_1 = n_2 = n_o = 2,31$  et  $n_3 = n_e = 2,27$  [168].

La photoconduction s'effectue par les électrons [164]. La longueur de diffusion mesurée le long de l'axe  $\hat{c}$  sur un échantillon de SBN:60 est de [166] :

$$L \approx 0,20 \mu\text{m} \quad (7.15)$$

À la longueur d'onde de 514 nm, une efficacité quantique  $Q \approx 0,06$  a été mesurée [169]. Cette faible valeur explique la faible sensibilité de ce matériau. La constante de temps de croissance de l'effet photoréfractif dépend de la concentration en dopant mais vaut typiquement  $\tau_e I \approx 1 \text{ J/cm}^2$  [164].

#### 7.4.2 Configuration d'utilisation

Le coefficient électro-optique le plus grand est  $r_{33}$  et le coefficient diélectrique le plus faible est  $\epsilon_{33}$ . La meilleure configuration d'enregistrement est donc la configuration copropageante symétrique. Les faisceaux se propagent dans le plan  $(y, z)$  et sont incidents symétriquement par rapport à l'axe  $\hat{x}$ , ou  $\hat{y}$ , de sorte que le vecteur d'onde du réseau induit soit suivant l'axe cristallographique  $\hat{c}$ . Ils sont polarisés dans le plan d'incidence c'est-à-dire extraordinairement. Étant donné les valeurs de la densité effective de pièges, l'angle  $2\theta$  entre les faisceaux est faible et les polarisations sont suivant l'axe  $\hat{c}$ . Le coefficient électro-optique utilisé est donc bien  $r_{33}$ .

Le SBN s'utilise habituellement sans champ électrique appliqué. Le gain photoréfractif dépend du dopage mais est de l'ordre de  $\Gamma \approx 10 \text{ cm}^{-1}$  pour la configuration optimale [164].

### 7.5 Niobate de potassium, $KNbO_3$

#### 7.5.1 Présentation et valeurs des paramètres

Le niobate de potassium fait partie de la classe de symétrie mm2. Il est ferroélectrique à température ambiante. Le dopant le plus couramment utilisé est le fer mais de nombreux autres ont été essayés [170, 171]. Le domaine de sensibilité s'étend du visible jusqu'à environ  $1 \mu\text{m}$ .

Pour un échantillon dopé au fer à 300 ppm, brut de croissance, les paramètres suivants ont été mesurés à 514 nm [170] :

$$\alpha \approx 0,5 \text{ cm}^{-1}; N_{\text{eff}} \approx 2 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}; \tau_e I \approx 50 \text{ mJ/cm}^2. \quad (7.16)$$

Dans cet échantillon, la photoconduction s'effectue par les trous. En réduisant les échantillons, la photoconductivité devient électronique et les cristaux sont beaucoup plus sensibles.

Le cristal est optiquement biaxe. Les coefficients électro-optiques à la température de 22°C et pour la longueur d'onde de 633 nm valent [172] :

$$[r^{\mu=0}] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13}^{\mu=0} \\ 0 & 0 & r_{23}^{\mu=0} \\ 0 & 0 & r_{33}^{\mu=0} \\ 0 & r_{42}^{\mu=0} & 0 \\ r_{51}^{\mu=0} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} r_{13}^{\mu=0} = 21 \text{ pm/V}, \\ r_{23}^{\mu=0} = 7,1 \text{ pm/V}, \\ r_{33}^{\mu=0} = 35 \text{ pm/V}, \\ r_{42}^{\mu=0} = 360 \text{ pm/V}, \\ r_{51}^{\mu=0} = 28 \text{ pm/V}. \end{cases} \quad (7.17)$$

Les permittivités diélectriques relatives à fréquence nulle et à déformations nulles sont :

$$[\epsilon_s^{r,\mu=0}] = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^{\mu=0} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{22}^{\mu=0} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33}^{\mu=0} \end{pmatrix} \text{ avec } \begin{cases} \epsilon_{11}^{\mu=0} = 34, \\ \epsilon_{22}^{\mu=0} = 780, \\ \epsilon_{33}^{\mu=0} = 24. \end{cases} \quad (7.18)$$

Il existe un fort effet élasto-optique qui doit être pris en compte pour effectuer des calculs précis. Tous les coefficients nécessaires sont regroupés dans la référence [172].

Les indices du niobate de potassium sont connus pour toute une gamme de longueurs d'onde et de température. Par exemple à la longueur d'onde de 514 nm, les indices valent  $n_a = 2,334$ ,  $n_b = 2,395$  et  $n_c = 2,212$  [173]. La biréfringence est donc forte et doit être prise en compte pour déterminer les angles de Bragg.

La longueur de diffusion a été mesurée dans un échantillon dopé au fer [174] pour deux orientations différentes :

$$\text{pour } \vec{k}_r // \hat{c}, L \approx 0,11 \mu\text{m}; \text{ pour } \vec{k}_r // \hat{b}, L \approx 0,27 \mu\text{m}. \quad (7.19)$$

### 7.5.2 Configurations d'utilisation

Comme pour le titanate de baryum, le coefficient électro-optique le plus important est  $r_{42}^{\mu=0}$  et la constante diélectrique la plus faible est  $\epsilon_{33}^{\mu=0}$ . Pour mettre à profit ce coefficient, il faut utiliser la géométrie de la figure 33 avec un angle  $\beta$  important, de l'ordre de 45°, entre l'axe  $\hat{c}$  et le vecteur d'onde du réseau, les faisceaux étant polarisés extraordinairement, c'est-à-dire dans le plan d'incidence.

Le niobate de potassium semble plus intéressant que le titanate de baryum et le SBN pour travailler dans une configuration à 90° similaire à celle que nous avons décrite dans le paragraphe 7.3.2. En effet, pour les petits pas photoinduits qu'impose cette configuration, la variation d'indice induite est proportionnelle à  $r_{13}/\epsilon_{33}$ ; rapport qui est le plus fort pour le niobate de potassium.

## 7.6 Tellurure de cadmium, CdTe

### 7.6.1 Présentation et valeurs des paramètres

Plusieurs semi-conducteurs de la classe de symétrie  $\bar{4}3m$  ont été utilisés pour l'effet photoréfractif : l'arséniure de gallium, le phosphore d'indium et le tellurure de cadmium. Ce dernier est celui qui possède le plus fort effet électro-optique. Sans champ électrique appliqué il

est optiquement isotrope. Le dopage au vanadium [175] est le plus utilisé et rend le  $CdTe$  sensible dans la gamme de longueurs d'onde de 1 à 1,5  $\mu\text{m}$  [176, 177].

La densité effective de centres photoréfractifs est de l'ordre de [177] :

$$N_{\text{eff}} \approx 5 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3} . \quad (7.20)$$

Le tenseur électro-optique ne comporte que trois coefficients, tous égaux. Il a été mesuré à la longueur d'onde de 1,06  $\mu\text{m}$  [175] :

$$[r] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix} \text{ avec } r_{41} = 5,5 \text{ pm / V} . \quad (7.21)$$

Dans cette publication, il n'est pas précisé si cette mesure correspond à un matériau contraint ou libre. Dans ce qui suit, nous ne prendrons donc plus en compte l'effet élasto-optique.

Les permittivités diélectriques relatives à fréquence nulle et à déformations nulles sont [175] :

$$[\epsilon'_s] = \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{11} \end{pmatrix} \text{ avec } \epsilon_{11} = 10,3 . \quad (7.22)$$

L'indice de réfraction est élevé. À la longueur d'onde de 1,06  $\mu\text{m}$  il vaut  $n = 2,82$  [178].

À cette même longueur d'onde de 1,06  $\mu\text{m}$  la photoconduction s'effectue majoritairement par les électrons. Quand la longueur d'onde croît, la compétition électron-trou augmente et à 1,55  $\mu\text{m}$  les trous deviennent majoritaires. La longueur de diffusion varie d'un échantillon à l'autre. Par exemple, pour un échantillon, il a été mesuré [179] :

$$L \approx 1,4 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour les électrons et } L \approx 0,25 \text{ } \mu\text{m} \text{ pour les trous} . \quad (7.23)$$

L'efficacité quantique du processus d'excitation des charges est proche de 1. Ce matériau est donc très sensible, typiquement on a  $\tau_e I \approx 100 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$ .

## 7.6.2 Configurations d'utilisation

Il existe deux configurations communément utilisées dans lesquels les ondes sont copropageantes. Ce sont celles que nous allons présenter mais d'autres configurations à 90° ou avec des ondes contrepropageantes sont également imaginables.

### 7.6.2.1 Vecteur réseau selon [110]

Cette configuration est également appelée "efficacité de diffraction"; nous en verrons la raison lors de la présentation des cristaux de la famille des sillénites. La coupe de l'échantillon est représenté sur la figure 34. Les faisceaux sont incidents dans le plan (001) et entrent par une face (1 $\bar{1}$ 0). Le vecteur d'onde du réseau est donc aligné selon l'axe [110]. Pour augmenter l'effet photoréfractif, on applique souvent un champ électrique suivant le même axe (voir figure 34). L'échantillon qui était initialement optiquement isotrope devient anisotrope avec les axes principaux de l'ellipsoïde des indices définis dans le repère cristallographique par :

$$\hat{x}' = \begin{pmatrix} -1/2 \\ -1/2 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix} \quad \hat{y}' = \begin{pmatrix} 1/2 \\ 1/2 \\ \sqrt{2}/2 \end{pmatrix} \quad \hat{z}' = \begin{pmatrix} -\sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \\ 0 \end{pmatrix} . \quad (7.24)$$

Les nouveaux indices sont :

$$\begin{cases} n_x = n + \Delta n/2 , \\ n_y = n - \Delta n/2 , \\ n_z = n , \end{cases} \text{ avec } \Delta n = n^3 r_{41} E_0 . \quad (7.25)$$

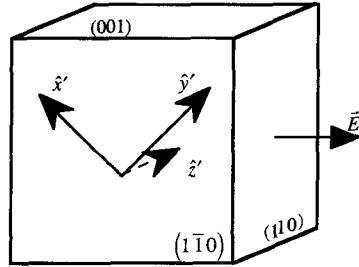


Figure 34 : Axes principaux induits par le champ appliqué dans la configuration dite "efficacité de diffraction".

A priori, il faudrait faire le calcul des coefficients électro-optiques effectifs en considérant des ondes propres. Si l'angle de réfraction est faible, elles se propagent suivant l'axe  $\hat{z}'$ . Avec un champ appliqué, les ondes propres sont polarisées suivant  $\hat{x}'$  et  $\hat{y}'$  avec les deux indices  $n_x$  et  $n_y$ . Nous notons  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  les angles que font les vecteurs  $\hat{e}_1$  et  $\hat{e}_2$  avec la direction  $[110]$ . Les polarisations propres correspondent à  $\alpha_1 = \pm 45^\circ$  et  $\alpha_2 = \pm 45^\circ$ . En considérant que l'angle  $2\theta$  entre les vecteurs d'onde est faible, un court calcul donne le coefficient suivant :

$$r_{\text{eff}}^{12} \approx r_{41} \sin(\alpha_1 + \alpha_2). \quad (7.26)$$

Pour des ondes propres,  $\alpha_1 = \pm 45^\circ$  et  $\alpha_2 = \pm 45^\circ$ , seuls existent des processus de diffraction isotrope, c'est-à-dire pour  $\alpha_1 = \alpha_2$ . Entre ces deux processus de diffraction isotrope le coefficient électro-optique change de signe : il vaut  $+r_{41}$  si les polarisations sont suivant  $\hat{y}'$  et  $-r_{41}$  si elles sont alignées le long de  $\hat{x}'$ . Nous avons montré dans le chapitre 6 comment utiliser cette dépendance pour optimiser la réflectivité des miroirs à conjugaison de phase.

Même si au sens propre du terme le coefficient électro-optique effectif est nul pour la diffraction anisotrope, une onde incidente polarisée linéairement peut se diffracter en une onde polarisée orthogonalement. En effet, si la biréfringence est suffisamment faible ( $E_0 \leq 10$  kV/cm), ou si les ondes arrivent symétriquement par rapport à l'axe  $\hat{z}'$ , ou si les angles de réfraction sont faibles, alors on peut considérer que l'onde incidente se réfracte en deux ondes propres qui sont toutes les deux incidentes à l'angle de Bragg pour leur processus de diffraction isotrope. Dans ce cas, il n'y a pas lieu de considérer la structure d'ondes propres et, par exemple, en lisant avec une onde incidente telle que  $\alpha_1 = 0^\circ$  l'onde diffractée émergente est telle que  $\alpha_2 = 90^\circ$ .

#### 7.6.2.2 Champ électrique selon $[001]$

Cette configuration, également appelée "couplage", est définie sur la figure 35. L'échantillon est coupé de la même façon que précédemment; les faisceaux entrent toujours par la même face  $(1\bar{1}0)$  mais se propagent maintenant dans le plan  $(110)$ . Le vecteur d'onde du réseau est donc aligné selon l'axe  $[001]$ , axe suivant lequel on applique également le champ destiné à intensifier l'effet photoréfractif. Les axes principaux induits par le champ électrique et exprimés dans l'ancienne base cristallographique sont alors :

$$\hat{x}' = \begin{pmatrix} \sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{y}' = \begin{pmatrix} -\sqrt{2}/2 \\ \sqrt{2}/2 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{z}' = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (7.27)$$

Les nouveaux indices sont :

$$\begin{cases} n_x = n - \Delta n/2, \\ n_y = n + \Delta n/2, \text{ et toujours } \Delta n = n^3 r_{41} E_0. \\ n_z = n, \end{cases} \quad (7.28)$$

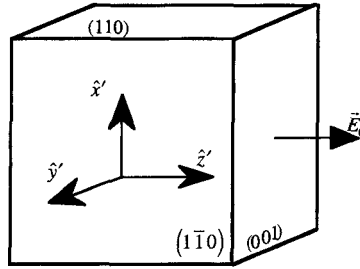


Figure 35 : Axes principaux induits par le champ appliqué dans la configuration dite "couplage d'ondes".

Nous supposons que les angles entre les faisceaux et l'axe  $\hat{y}'$  sont petits et nous notons  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  les angles que font les vecteurs unitaires  $\hat{e}_1$  et  $\hat{e}_2$  avec la direction de l'axe  $\hat{x}'$ . Les ondes propres correspondent donc à  $\alpha_{1,2} = 0^\circ$  ou  $90^\circ$ . Nous obtenons alors :

$$r_{eff}^{12} = r_{41} \cos(\alpha_1) \cos(\alpha_2) . \quad (7.29)$$

Encore une fois, seule la diffraction isotrope est possible. Une onde incidente ne peut plus être diffractée en une onde polarisée orthogonalement comme cela était possible dans la configuration précédente.

## 7.7 Famille des sillenites

### 7.7.1 Présentation et valeurs des paramètres

Les cristaux de la famille des sillenites sont au nombre de trois :  $Bi_{12}GeO_{20}$  (abrégié en BGO),  $Bi_{12}SiO_{20}$  (BSO),  $Bi_{12}TiO_{20}$  (BTO). Ils sont de la classe de symétrie 23. Les propriétés photoréfractives de ces cristaux sont très proches de celles des semi-conducteurs vus ci-dessus. La plus grosse différence est qu'ils possèdent une activité optique forte. Les valeurs mesurées de l'activité optique à la longueur d'onde de 633 nm sont de [180-182] :

$$\begin{cases} \rho \approx 6^\circ \text{ mm}^{-1} \text{ pour du BTO,} \\ \rho \approx 22^\circ \text{ mm}^{-1} \text{ pour du BGO,} \\ \rho \approx 23^\circ \text{ mm}^{-1} \text{ pour du BSO.} \end{cases} \quad (7.30)$$

Nous ne pouvons donc pas négliger cette activité optique et devons la prendre en compte dans le calcul des coefficients de couplage.

Ces matériaux sont sensibles dans le visible avec une sensibilité décroissant continûment de 480 nm à 700 nm. Ils s'utilisent souvent sans dopage particulier. La densité effective de pièges est alors de l'ordre de [183, 184] :

$$N_{eff} \approx 10^{21} \text{ m}^{-3} \text{ pour du BGO et, } N_{eff} \approx 10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ pour du BSO ou du BTO.} \quad (7.31)$$

Les absorptions sont typiquement de  $\alpha \approx 1 \text{ cm}^{-1}$  à la longueur d'onde de 514 nm. Un dopage, par exemple au cuivre, permet augmenter la densité effective de pièges et l'absorption.

Le tenseur électro-optique possède la même forme que pour les cristaux  $\bar{4}3m$  (équation (7.21)). Les valeurs des coefficients électro-optiques que l'on trouve dans la littérature sont dispersées. Le BTO possède un effet plus fort que le BSO et ce dernier que le BGO. Typiquement les valeurs mesurées sont de [180, 181, 185] :

$$\begin{cases} r_{41}^{u=0} = 5,3 \text{ pm/V ; } r_{41}^{T=0} = 5,5 \text{ pm/V pour du BTO,} \\ r_{41}^{T=0} = 4,1 \text{ pm/V pour du BSO,} \\ r_{41}^{T=0} = 3,6 \text{ pm/V pour du BGO.} \end{cases} \quad (7.32)$$

Les différences entre les coefficients libres et contraints, voir les valeurs pour le BTO, existent mais restent faibles. Les valeurs des coefficients nécessaires pour tenir compte de l'effet photo-élastique sont connues. Elles sont regroupées dans les références [69, 186]. La correction, bien que significative, étant faible et inférieure à la dispersion des valeurs trouvées dans la littérature, nous ne la prenons pas en compte ici. Les permittivités diélectriques relatives aux basses fréquences sont :

$$\begin{cases} \varepsilon_s^{r,T=0} = 48 \text{ pour du BGO,} \\ \varepsilon_s^r = 56 \text{ pour du BSO,} \\ \varepsilon_s^r = 47 \text{ pour du BTO.} \end{cases} \quad (7.33)$$

L'indice de réfraction est très élevé. À la longueur d'onde de 514 nm, il vaut  $n \approx 2,6$  pour du BGO et du BSO et  $n \approx 2,7$  pour du BTO [181, 187].

Les longueurs de diffusion varient d'un échantillon à un autre. Elles sont les plus faibles dans le BTO. Typiquement, on a [100, 183] :

$$L \approx 1 \mu\text{m pour les BGO et BSO et } L \approx 0,1 \mu\text{m pour le BTO.} \quad (7.34)$$

L'efficacité quantique du processus d'excitation des charges étant proche de 1, ces matériaux sont sensibles avec  $\tau_e I \approx 1 \text{ mJ/cm}^2$ .

### 7.7.2 Ondes propres d'un matériau optiquement actif

En appliquant un champ électrique aux sillenites, il apparaît une biréfringence linéaire. Afin de calculer les coefficients électro-optiques effectifs, il faut d'abord déterminer les ondes propres de ces matériaux qui sont optiquement actifs et linéairement biréfringent [72]. Le champ électrique et le déplacement électrique de l'onde optique sont reliés par [74] :

$$\vec{D}^\omega = \varepsilon_0 [\varepsilon_\omega^r] \vec{E}^\omega + \gamma \text{rot } \vec{E}^\omega. \quad (7.35)$$

Nous nous plaçons dans la base propre  $\hat{x}''$ ,  $\hat{y}''$  (lignes neutres) de la lame sans activité optique. Les deux indices, en l'absence d'activité optique, s'écrivent :

$$n_+ = n + \delta n/2 \text{ et } n_- = n - \delta n/2. \quad (7.36)$$

Nous recherchons les ondes propres du milieu sous la forme :

$$\vec{E}_\pm^\omega = 0,5 \left( \hat{e}_\pm A e^{-i(\omega \vec{x} - \vec{k}_{\pm,\rho} \cdot \vec{r})} + cc \right) \text{ avec } k_{\pm,\rho} = n_{\pm,\rho} \omega/c \text{ et } \vec{k}_{\pm,\rho} \cdot \vec{r} = k_{\pm,\rho} z''. \quad (7.37)$$

En prenant des notations complexes, en ne conservant que les termes à l'ordre 1 en  $\delta n$  et dans cette base, nous pouvons réécrire l'équation (7.35) sous la forme :

$$\begin{bmatrix} D_{\pm x''}^\omega \\ D_{\pm y''}^\omega \end{bmatrix} = \varepsilon_0 \begin{bmatrix} (n + \delta n/2)^2 & -i\Gamma_0 \\ i\Gamma_0 & (n - \delta n/2)^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{\pm x''}^\omega \\ E_{\pm y''}^\omega \end{bmatrix} \text{ avec } \Gamma_0 = \frac{n\omega}{\varepsilon_0 c} \gamma = n\rho\lambda/\pi, \quad (7.38)$$

où  $\rho$  est l'activité optique par unité de longueur,  $\lambda$  la longueur d'onde dans le vide et où nous avons fait l'approximation  $\text{div } \vec{E}_\pm^\omega \approx 0$  ce qui est une très bonne approximation car la biréfringence linéaire reste faible.

En injectant cette expression dans l'équation de propagation de l'onde et en résolvant le système, nous obtenons les polarisations propres qui sont orthogonales et elliptiques. Dans la base  $\hat{x}''$ ,  $\hat{y}''$  elles s'écrivent :

$$\hat{e}_+ = \frac{1}{\sqrt{1+\alpha^2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i\alpha \end{bmatrix}, \quad \hat{e}_- = \frac{1}{\sqrt{1+\alpha^2}} \begin{bmatrix} \alpha \\ -i \end{bmatrix} \text{ et } \alpha = -\frac{\delta n - \sqrt{\delta n^2 + (\Gamma_0/n)^2}}{(\Gamma_0/n)} \quad (7.39)$$

$\alpha$  étant l'ellipticité des polarisations.

Les deux indices qui correspondent à chacune de ces polarisations sont :

$$n_{\pm,\rho} = n \pm 0,5 \sqrt{\delta n^2 + (\Gamma_0/n)^2}. \quad (7.40)$$

On retrouve bien les cas limites, à savoir si le pouvoir rotatoire est nul les polarisations propres sont linéaires; si la biréfringence linéaire est nulle les polarisations propres sont circulaires.

### 7.7.3 Configurations photoréfractives

Les deux configurations les plus souvent employées sont les mêmes que pour les cristaux de la famille  $\bar{4}3m$  et que nous avons décrites sur les figures 34 et 35.

#### 7.7.3.1 Vecteur réseau selon [110]

Dans cette configuration, figure 34, le champ électrique est appliqué suivant la direction cristallographique [110]. Les deux ondes se propagent dans le plan (001) et font un angle  $\pm\theta$  avec l'axe  $[1\bar{1}0]$ . Pour alléger les calculs, nous faisons  $\theta \approx 0$  ce qui est une excellente approximation du fait de la forte valeur de l'indice. La base qui nous a servi à définir les ondes propres, paragraphe 7.7.2, est donc telle que  $\hat{x}'' \equiv \hat{x}'$  et  $\hat{y}'' \equiv \hat{y}'$  avec  $\hat{x}'$  et  $\hat{y}'$  définis par l'équation (7.24). La biréfringence linéaire qui sert à définir l'ellipticité des ondes propres, équation (7.39), est donc  $\delta n = \Delta n$  avec  $\Delta n$  donné par (7.25). Bien que le calcul puisse se mener à bien dans n'importe quelle base, nous exprimons tout dans la base cristallographique. Les polarisations propres sont d'après (7.39) et dans la base cristallographique :

$$\hat{e}_+ = \frac{1}{2\sqrt{1+\alpha^2}} \begin{bmatrix} -1+i\alpha \\ -1+i\alpha \\ (1+i\alpha)\sqrt{2} \end{bmatrix}, \quad \hat{e}_- = \frac{1}{2\sqrt{1+\alpha^2}} \begin{bmatrix} -\alpha-i \\ -\alpha-i \\ (\alpha-i)\sqrt{2} \end{bmatrix}. \quad (7.41)$$

Nous trouvons les deux coefficients électro-optiques effectifs pour la diffraction isotrope. Ils sont opposés :

$$r_{eff}^{++} \approx -\frac{1-\alpha^2}{1+\alpha^2} r_{41} \quad \text{et} \quad r_{eff}^{--} \approx +\frac{1-\alpha^2}{1+\alpha^2} r_{41}. \quad (7.42)$$

De même pour les coefficients de diffraction anisotrope, nous trouvons :

$$r_{eff}^{+-} = r_{eff}^{+ -} \approx -\frac{2\alpha}{1+\alpha^2} r_{41}. \quad (7.43)$$

En l'absence de champ appliqué, polarisations propres circulaires  $\alpha = 1$ , il n'y a que de la diffraction anisotrope dans cette configuration. Par contre pour un champ très fort la biréfringence linéaire domine la biréfringence circulaire,  $\alpha \approx 0$ , et il n'existe plus que de la diffraction isotrope. On retombe sur les résultats obtenus dans le paragraphe 7.6.2 pour le tellurure de cadmium.

Sans champ appliqué, du fait de la forte biréfringence circulaire, les ondes d'écriture ne peuvent pas se diffracter sur le réseau inscrit dès que la longueur d'interaction est telle que  $\rho l > \pi$  (voir paragraphe 4.4.2 et équation (4.41)). Il n'y a donc pas de couplage d'ondes pour des matériaux un tant soit peu épais. Néanmoins si la longueur d'interaction est telle que  $\rho l < \pi$ , les ondes d'écriture peuvent se diffracter suivant le processus anisotrope. Pour analyser la diffraction, il faut décomposer chaque onde en deux ondes propres et résoudre un système de 4 équations couplées. Le couplage avec les ondes en entrée et en sortie du matériau doit se faire en considérant les lois de la réfraction. On peut ainsi montrer qu'on peut avoir du couplage d'ondes si l'échantillon est mince. Dans cette même configuration et avec un matériau mince, on peut également faire en sorte qu'une onde incidente polarisée linéairement conduise, en sortie du matériau, à une onde diffractée polarisée orthogonalement.

#### 7.7.3.2 Champ électrique selon [001]

Le calcul des coefficients de couplage s'effectue sans difficulté de manière similaire à celle que nous avons employée pour la configuration précédente. Les deux ondes font un angle  $\pm\theta$  avec

l'axe  $[\bar{1}10]$ , figure 35. Pour alléger les calculs, nous faisons encore l'approximation  $\theta \approx 0$ . Nous avons donc  $\hat{x}'' \equiv \hat{x}'$  et  $\hat{y}'' \equiv \hat{z}'$  avec  $\hat{x}'$  et  $\hat{z}'$  donnés par l'équation (7.27). La biréfringence linéaire est maintenant  $\delta n = -\Delta n/2$  avec  $\Delta n$  donné par (7.28). Les deux coefficients électro-optiques effectifs pour la diffraction isotrope ne sont identiques qu'en l'absence de biréfringence linéaire :

$$r_{\text{eff}}^{++} \approx r_{41} \frac{1}{1 + \alpha^2} \quad \text{et} \quad r_{\text{eff}}^{--} \approx r_{41} \frac{\alpha^2}{1 + \alpha^2}. \quad (7.44)$$

Les coefficients électro-optiques de diffraction anisotrope sont :

$$r_{\text{eff}}^{-+} = r_{\text{eff}}^{+-} = \hat{e}_-'^t [r] \hat{k}_r \hat{e}_+ = r_{41} \frac{\alpha}{1 + \alpha^2}. \quad (7.45)$$

Sans champ appliqué, les coefficients de couplage dans cette configuration sont inférieurs de moitié à ceux obtenus dans la première configuration. L'efficacité de diffraction sera supérieure dans la première configuration, l'onde interagissant toujours avec un réseau, d'où le nom de cette première configuration dite parfois "rendement" ou "efficacité de diffraction". Contrairement à la première configuration, les coefficients de diffraction isotrope sont non nuls même en l'absence de champ appliqué. C'est la raison pour laquelle cette seconde configuration est également appelée "couplage d'ondes".

## Références

- [1] Ashkin A., Boyd G.D., Dziedzic J.M., Smith R.G., Ballman A.A., Levinstein J.J. et K. Nassau, *Appl. Phys. Lett.*, **9** (1966) p. 72.
- [2] Chen F.S., LaMacchia J.T. et Fraser D.B., *Appl. Phys. Lett.*, **13** (1968), p. 223.
- [3] Chen F.S., *J. Appl. Phys.*, **40** (1969) p. 3389.
- [4] Thaxter J.B., *Appl. Phys. Lett.*, **15** (1969) p. 210.
- [5] Feinberg J., Heiman D., Tanguay Jr. A.R. et Hellwarth R.W., *J. Appl. Phys.*, **51** (1980) p. 1297.
- [6] Mullen R.A. et Hellwarth R.W., *J. Appl. Phys.*, **58** (1985) p. 40.
- [7] Jonathan J.M., Hellwarth R.W. et Roosen G., *JOSA A*, **1** (1984) p. 1245.
- [8] Jonathan J.M., Roosen G. et Hellwarth R.W., *IEEE J. QE*, **22** (1986) p. 1936.
- [9] Amodei J.J., *Appl. Phys. Lett.*, **18** (1970) p. 22.
- [10] Staebler D.L. et Amodei J.J., *J. Appl. Phys.*, **43** (1972) p. 1042.
- [11] Glass A.M., von der Linde D. et Negran T.J., *Appl. Phys. Lett.*, **25** (1974) p. 233.
- [12] Young L., Wong W.K.Y., Thewalt M.L. et W. Cornish W.D., *Appl. Phys. Lett.*, **24** (1974) p. 264.
- [13] Su F.S. et Gaylord T.K., *J. Appl. Phys.*, **46** (1975) p. 5208.
- [14] Kukhtarev N.V., *Sov. Tech. Phys. Lett.*, **2** (1976) p. 438.
- [15] Kim D. M., Shah R. R., Rabson T.A. et Tittel F.K., *Appl. Phys. Lett.*, **28** (1976) p. 338.
- [16] Moharam M. G. et Young L., *J. Appl. Phys.*, **47** (1976) p. 40.
- [17] Peltier M. et Micheron F., *J. Appl. Phys.*, **48** (1977) p. 3683.
- [18] Moharam M. G., Gaylord T. K., Magnusson R. et Young L., *J. Appl. Phys.*, **50** (1979) p. 5642.
- [19] Kukhtarev N.V., Markov V.B., Odulov S.G., Soskin M.S. et Vinetskii V.L., *Ferrotelectrics*, **22** (1979) p. 949.
- [20] Kukhtarev N.V., Markov V.B., Odulov S.G., Soskin M.S. et Vinetskii V.L., *Ferrotelectrics*, **22** (1979) p. 961.
- [21] Schirmer O.F., Reyher H.J. et Wöhlecke M., "Characterization of point defects in photorefractive oxide crystals by paramagnetic resonance methods", Chapitre 4 dans "Insulating materials for optoelectronics", Agullo-Lopez F. Ed., World Scientific, Singapour 1995, p. 93.
- [22] van Stevendaal U., Buse K., Kämper S., Hesse H. et Krätzig E., *Appl. Phys. B*, **63** (1996) p. 315.



- [23] Mazur A., van Stevendaal U., Buse K., Weber M., Schirmer O.F., Hesse H. et Krätzig E., *Appl. Phys. B*, **65** (1997) p. 481.
- [24] Moerner W.E. et Silence S.M., *Chem. Rev.*, **94** (1994) p. 127.
- [25] Schildkraut J.S. et Buettner A.V., *J. Appl. Phys.*, **72** (1992) p. 1888.
- [26] Strohkendl F.P., Jonathan J.M.C. et Hellwarth R.W., *Opt. Lett.*, **11** (1986) p. 32.
- [27] Valley G.C., *J. Appl. Phys.*, **59** (1986) p. 3363.
- [28] Delaye P., Halter P.U. et Roosen G., *JOSA B*, **7** (1990) p. 2268.
- [29] Klein M.B. et Valley G.C., *J. Appl. Phys.*, **57** (1985) p. 4901.
- [30] Valley G.C., *Appl. Opt.*, **22** (1983) p. 3160.
- [31] Jariego F. et Agullo-Lopez F., *Appl. Opt.*, **30** (1991) p. 4615.
- [32] Brost G.A., Motes R.A. et Rotge J.R., *JOSA B*, **5** (1988) p. 1879.
- [33] Buse K. et Bierwirth T., *JOSA B*, **12** (1995) p. 629.
- [34] Chang J.Y., Garrett M.H., Tayebati P., Jensen H.P. et Warde C., *JOSA B*, **12** (1995) p. 248.
- [35] Buse K. et Krätzig E., *Appl. Phys. B*, **61** (1995) p. 27.
- [36] Huot N., Jonathan J.M.C. et Roosen G., *Appl. Phys. B*, **65** (1997) p. 489.
- [37] Schildkraut J. S. et Cui Y., *J. Appl. Phys.*, **72** (1992) p. 5055.
- [38] Montemezzani G. et Zgonik M., *Phys. Rev. E*, **55** (1997) p. 1035.
- [39] Montemezzani G., Medrano C., Günter P. et Zgonik M., *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) p. 3403.
- [40] Twarowski A., *J. Appl. Phys.*, **65** (1989) p. 2833.
- [41] Braun C.L., *J. Chem. Phys.*, **80** (1984) p. 4157.
- [42] Buse K., *JOSA B*, **10** (1993) p. 1266.
- [43] Wang Q.N., Brubaker R.M. et Nolte D.D., *Opt. Lett.*, **19** (1994) p. 822.
- [44] Darracq B., Canva M., Chaput F., Boilot J.P., Riehl D., Lévy Y. et Brun A., *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) p. 292.
- [45] Novikov A., Odulov S., Oleink O. et Sturman B., *Ferroelectrics*, **75** (1987) p. 295.
- [46] Sturman B., *JOSA B*, **8** (1991) p. 1333.
- [47] Sturman B.I. et Fridkin V.M., "Photovoltaic effect and similar phenomena in noncentrosymmetric crystals", Gordon & Beach Eds., New York, 1992.
- [48] Gu C., Hong J., Li H.-Y., Psaltis D. et Yeh P., *J. Appl. Phys.*, **69** (1991) p. 1167.
- [49] Günter P. et Zgonik M., *Opt. Lett.*, **16** (1991) p. 1826.
- [50] Daniel O., Sternlmach A., C-Jonathan J.M. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **113**, (1995) p. 559.
- [51] Cronin-Golomb M., *Opt. Comm.*, **89** (1992) p. 276.
- [52] Daniel O., Thèse de docteur en Sciences Physiques, Novembre 1995, Orsay.
- [53] Réfrégier Ph., Solymar L., Rajbenbach H. et Huignard J.P., *J. Appl. Phys.*, **58** (1985) p. 45.
- [54] Au L.B. et Solymar L., *Opt. Lett.*, **13** (1988) p. 660.
- [55] Brost G.A., *Opt. Comm.*, **96** (1993) p. 113.
- [56] Bledowski A., Otten J. et Ringhofer K.H., *Opt. Lett.*, **16** (1991) p. 672.
- [57] Huignard J.P. et Ledu B., *Opt. Lett.*, **7** (1982) p. 310.
- [58] Serrano E., Lopez V., Carrascosa M. et Agullo-Lopez F., *JOSA B*, **11** (1994) p. 670.
- [59] Pauliat G., Villing A., Launay J.C. et Roosen G., *JOSA B*, **7** (1990) p. 1481.
- [60] Partanen J.P., C. Jonathan J.M. et Hellwarth R.W., *Appl. Phys. Lett.*, **57** (1990) p. 2404.
- [61] Besson C., C. Jonathan J.M., Villing A., Pauliat G. et Roosen G., *Opt. Lett.*, **14** (1989) p. 1359.
- [62] Mathey P., Pauliat G., Launay J.C. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **82** (1991) p. 101.
- [63] Aubrecht I., Grunnet-Jepsen A. et Solymar L., *Opt. Comm.*, **17** (1995) p. 303.
- [64] Pauliat G. et Roosen G., *JOSA B*, **7** (1990) p. 2259.
- [65] Disdier L. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **88** (1992) p. 559.
- [66] Valley G. C., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE.19** (1983) p. 1637.
- [67] Valley G. C. et Klein M. B., *Opt. Eng.*, **22** (1983) p. 704.
- [68] Stepanov S.I., Shandarov S.M. et Khatkov N.D., *Sov. Phys. Solid State*, **29** (1987) p. 1754.

- [69] Pauliat G., Mathey P. et Roosen G., *JOSA B*, **8** (1991) p. 1942.
- [70] Frey L., Dumont M., Jonathan J.M.C., Pauliat G. et Roosen G., *Appl. Phys. B*, **68** (1999) p. 999.
- [71] Royer D. et Dieulesaint E., "Ondes élastiques dans les solides", Masson, Paris, 1996.
- [72] Nye J.F., "Propriétés physiques des cristaux", Dunod, Paris 1961.
- [73] Zgonik M., Nakagawa K. et Günter P., *JOSA B* (1995) p. 1416.
- [74] Landau L. et Lifchitz E., "Électrodynamique des milieux continus", Éditions Mir, Moscou.
- [75] Sapriel J., "L'acousto-optique", Paris, Masson, 1976.
- [76] Montemezzani G., Zozulya A.A., Czaia L., Anderson D.Z., Zgonik M. et Günter P., *Phys. Rev. A*, **52** (1995) p. 1791.
- [77] Born M. et Wolf E., "Principle of Optics", Cambridge University Press, 1985.
- [78] Kogelnik H., *Bell Syst. Tech. Journ.*, **48** (1969) p. 2909.
- [79] Magnusson R. et Gaylord T. K., *JOSA*, **68** (1978) p. 1777.
- [80] Moharam M. G. et Gaylord T. K., *JOSA*, **71** (1981) p. 811.
- [81] Burckhardt C. B., *JOSA*, **56** (1966) p. 1502.
- [82] Yevick D. et Thylén L., *JOSA*, **72** (1982) p. 1084.
- [83] Alves C., Pauliat G. et Roosen G., "Holographic memories with photorefractive crystals" chapitre 11 dans "Insulating materials for Optoelectronics", F. Agullo Lopez Ed., World Scientifique, Singapour, 1995 p. 277.
- [84] Moharam M. G., Gaylord T. K. et Magnusson R., *JOSA*, **70** (1980) p. 437.
- [85] Uchida N., *JOSA*, **63** (1973) p. 280.
- [86] Wolffer N., Gravey P. et Coquillé R., *J. Appl. Phys.*, **78** (1995) p. 6375.
- [87] Millerd J.E., Garmire E.M., Klein M. B., Wechsler B. A., Strohkendl F.P. et Brost G. A., *JOSA B*, **9** (1992) p. 1449.
- [88] Belic M.R., Timotijevic D., Petrovic M. et Jaric M.V., *Opt. Comm.*, **123** (1996) p. 201.
- [89] Heaton J.M. et Solymar L., *Optica Acta*, **32** (1985) p. 397.
- [90] Hermanns A., Benkert C., Liniger D.M. et Anderson D.Z., *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) p. 750.
- [91] Delaye Ph., de Montmorillon L.A. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **118** (1995) p. 154.
- [92] de Montmorillon L. A., Thèse de 3ème cycle, Université de Paris Sud, Avril 1997.
- [93] Brost G. A., *JOSA B*, **9** (1992) p. 1454.
- [94] Huignard J.P. et Marrakchi A., *Opt. Comm.*, **38** (1981) p. 249.
- [95] Stepanov S.I., Kulikov V.V. et Petrov M.P., *Opt. Comm.*, **44** (1982) p. 19.
- [96] Rajbenbach H., Huignard J.P. et Loiseaux B., *Opt. Comm.*, **48** (1983) p. 247.
- [97] Ma J., Taketomi Y., Fainman Y., Ford J. E., Lee S. H. et Chino K., *Opt. Lett.*, **16** (1991) p. 1080.
- [98] Stepanov S.I. et Petrov M.P., *Opt. Comm.*, **53** (1985) p. 292.
- [99] Walsh K., Powell A.K., Stace C. et Hall T.J., *JOSA B*, **7** (1990) p. 288.
- [100] Sochava S.L., Mokrushina E.V., Prokof'ev V.V. et Stepanov S.I., *JOSA B*, **10** (1993) p. 1600.
- [101] Gravey P., Picoli G. et Labandibar J.Y., *Opt. Comm.*, **70** (1989) p. 190.
- [102] Ozkul C., Picoli G., Gravey P. et Wolffer N., *Appl. Opt.*, **29** (1990) p. 2711.
- [103] Ozkul C., Picoli G., Gravey P. et Le Rouzic G., *Opt. Eng.*, **30** (1991) p. 497.
- [104] Partovi A., Kost A., Garmire E. M., Valley G. C. et Klein M. B., *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) p. 1087.
- [105] Millerd J. E., Koehler S. D., Garmire E.M., Partovi A., Glass A.M. et Klein M.B., *Appl. Phys. Lett.*, **57** (1990) p. 2776.
- [106] Wang Q. N., Nolte D. D. et Melloch M. R., *Appl. Phys. Lett.*, **59** (1991) p. 256.
- [107] Donckers M.C.J.M., Silence S.M., Walsh C.A., Burland D.M., Moerner W.E. et Twieg R.J., *Opt. Lett.*, **18** (1994) p. 1044.
- [108] Ford J. E., Fainman Y. et Lee S. H., *Appl. Opt.*, **28** (1989) p. 4808.
- [109] Shelby R.M., Hoffnagle J.A., Burr G.W., Jefferson C.M., Bernal M.-P., Coufal H., Grygier R.K., Günther H., Macfarlane R.M. et Sincerbox G.T., *Opt. Lett.*, **22** (1997) p. 1509.

- [110] Segev M., Ophir Y. et Fischer B., *Opt. Comm.*, **77** (1990) p. 275.
- [111] Hong Y.-H., Xie P., Dai J.-H., Zhu Y., Yang H.-G. et Zhang H.-J., *Opt. Lett.*, **18** (1993) p. 772.
- [112] Xie P., Dai J.-H., Wang P.-Y. et Zhang H.-J., *J. Appl. Phys.*, **75** (1994) p. 1891.
- [113] Zozulya A. A., *IEEE J. Quantum Electron.* **29** (1993) p. 538.
- [114] Huot N., C. Jonathan J.M., Rytz D. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **140** (1997) p. 296.
- [115] Vachss F. et Yeh P., *JOSA B*, **6** (1989) p. 1834.
- [116] Rajbenbach H., Delboulbé A. et Huignard J.P., *Opt. Lett.*, **14** (1989) p. 1275.
- [117] Joseph J., Pillai P.K.C. et Singh K., *Opt. Comm.*, **80** (1990) p. 84.
- [118] Rajbenbach H., Delboulbé A. et Huignard J.-P., *Opt. Lett.*, **16** (1991) p. 1481.
- [119] Breugnot S., Defour M., Rajbenbach H. et Huignard J.P., *Opt. Comm.*, **104** (1993) p. 118.
- [120] Breugnot S., Dolfi D., Rajbenbach H., Huignard J.P. et Dufour M., *Opt. Lett.*, **19** (1994) p. 1070.
- [121] Xu J., Zhang G., Liu J. et Liu S., *Opt. Comm.*, **107** (1994) p. 99.
- [122] White J.O., Cronin-Golomb M., Fisher B. et Yariv A., *Appl. Phys. Lett.*, **40** (1982) p. 450.
- [123] Laeri F., Tshudi T. et Albers J., *Opt. Comm.*, **47** (1983) p. 387.
- [124] Pauliat G. et Günter P., *Opt. Comm.*, **66** (1988) p. 329.
- [125] Rajbenbach H. et Huignard J.P., *Opt. Lett.*, **10** (1985) p. 137.
- [126] Novikov A., Odoulov S., Oleinik O. et Sturman B., *Ferroelectrics*, **75** (1987) p. 295.
- [127] Pauliat G., Ingold M. et Günter P., *IEEE J. of Quant. Elect.*, **25** (1989) p. 201.
- [128] Yeh P., *JOSA B*, **2** (1985) p. 1924.
- [129] Dambly L. et Zeghlache H., *Phys. Rev. A*, **47** (1993) p. 2264.
- [130] Cronin-Golomb M., Fischer B., White J. O. et Yariv A., *IEEE J. of Quantum Electron.*, **QE-20** (1984) p. 12.
- [131] Horowitz M., Kliger D. et Fischer B., *JOSA B*, **8** (1991) p. 2204.
- [132] Odoulov S., Soskin M. et Khizniak A., "Optical oscillators with degenerate four-wave mixing (dynamic grating lasers)", *Laser Science and Technology, an International Handbook*, Vol. 7, Harwood academic publishers, Paris, 1991.
- [133] Weiss S., Sternklar S. et Fischer B., *Opt. Lett.*, **12** (1987) p. 114.
- [134] Fischer B., Sternklar S. et Weiss S., *IEEE J. of Quantum Electron.*, **25** (1989) p. 550.
- [135] Weiss S., Werner O. et Fisher B., *Opt. Lett.*, **14** (1989) p. 186.
- [136] Wolffer N., Gravey P., Moissan J.Y., Laulan C. et Launay J.C., *Opt. Comm.*, **73** (1989) p. 351.
- [137] Millerd J. E., Garmire E. M. et Klein M. B., *JOSA B*, **9** (1992) p. 1499.
- [138] Cronin-Golomb M., Paslaski J. et Yariv A., *Appl. Phys. Lett.*, **47** (1985) p. 1131.
- [139] Korol'kov S. A., Mamaev A.V. et Shkunov V.V., *International Journal of Nonlinear Optical Physics*, **2** (1993) p. 157.
- [140] Kong H., Cronin-Golomb M. et Fisher B., *Opt. Comm.*, **93** (1992) p. 92.
- [141] Bogodaev N.V., Zozulya A.A., Ivleva L.I., Korshunov A.S., Mamaev A.V. et Polozkov N.M., *Sov. J. Quantum. Electron.*, **22** (1992) p. 410.
- [142] Jagannath H. et Venkateswarlu P., *Opt. Comm.*, **85** (1991) p. 443.
- [143] Christian W. R., Saxena R. et McMichael I., *JOSA B*, **9** (1992) p. 108.
- [144] Fisher B., Weiss S. et Sternklar S., *Appl. Phys. Lett.*, **50** (1987) p. 483.
- [145] Petrov M.P., Caufield X.D. et Makrushina E.V., *Kvantovaya Elektronika*, **19** (1992) p. 289.
- [146] Petrov M.P., Sochava S.L. et Stepanov S.I., *Opt. Lett.*, **14** (1989) p. 284.
- [147] Martel G., Wolffer N., Moisan J.Y. et Gravey P., *Opt. Lett.*, **20** (1985) p. 937.
- [148] Wolffer N., Royer V. et Gravey P., *Optical Computing*, *Compte rendu SPIE*, **1806** (1992) p. 177.
- [149] Korol'kov S.A., Kuzminov Y.S., Mamaev A.V., Shkunov V.V. et Zozulya A.A., *JOSA B*, **9** (1992) p. 664.
- [150] Mager L., Laquernoy C., Pauliat G., Garrett M.H., Rytz D. et Roosen G., *Opt. Lett.*, **19** (1994) p. 1508.
- [151] Feinberg J., *Opt. Lett.*, **7** (1982) p. 486.

- [152] MacDonald K.R. et J. Feinberg, *JOSA*, **73** (1982) p. 548.
- [153] Zhang J., Lian Y., Dou S.X. et Ye P., *Opt. Comm.*, **110** (1994) p. 631.
- [154] Ross G. W., Hribek P., Eason R. W., Garrett Ma. H. et Rytz D., *Opt. Commun.*, **101** (1993) p. 60.
- [155] Günter P., Voit E., Zha M.Z. et Albers J., *Opt. Comm.*, **55** (1985) p. 210.
- [156] Buse K., *Appl. Phys. B*, **164** (1997) p. 391.
- [157] Bernasconi P., Zgonik M. et Günter P., *J. Appl. Phys.*, **78** (1995) p. 2651.
- [158] Zgonik M., Bernasconi P., Duelli M., Schlessler R., Günter P., Garrett M.H., Rytz D., Zhu Y. et Wu X., *Phys. Rev. B*, **50** (1994) p. 5941.
- [159] Zgonik M., Nakagawa K. et Günter P., *JOSA B*, **12** (1995) p. 1416.
- [160] Buse K., Riehemann S., Loheide S., Hesse H., Mersch F. et Krätzig E., *Phys. Status Solidi (a)*, **135** (1993) K.87.
- [161] Bernasconi P., Biaggio I., Zgonik M. et Günter P., *Phys. Rev. Lett.*, **78** (1997) p. 106.
- [162] Sochava S., Buse K. et Krätzig E., *Opt. Comm.*, **98** (1993) p. 265.
- [163] Neurgaonkar R.R., Cory W.K., Oliver J.R., Ewbank M.D. et Hall W.F., *Opt. Eng.*, **26** (1987) p. 392.
- [164] Ewbank M.D., Neurgaonkar R.R. et Cory W.K., *J. Appl. Phys.*, **62** (1987) p. 374.
- [165] Buse K., van Stevendaal U., Pankrath R. et Krätzig E., *JOSA B*, **13** (1996) p. 1461.
- [166] Korneev N., Mayorga D., Stepanov S., Gerwens A., Buse K. et Krätzig E., *Opt. Comm.*, **146** (1998) p. 215.
- [167] Ducharme S., Feinberg J. et Neurgaonkar R.R., *IEEE J. Quant. Electr.*, QE **23** (1987) p. 2116.
- [168] Venturini E.L., Spencer E.G., Lenzo P.V. et Ballman A.A., *J. Appl. Phys.*, **39** (1968) p. 343.
- [169] Buse K., Gerwens A., Wevering S. et Krätzig E., *JOSA B*, **15** (1998) p. 1674.
- [170] Medrano C., Zgonik M., Sonderer N., Beyeler Ch., Krucker S., Seglins J., Wüest H. et Günter P., *J. Appl. Phys.*, **76** (1994) p. 5640.
- [171] Ewart M., Ryf R., Medrano C., Wüst H., Zgonik M. et Günter P., *Opt. Lett.*, **22** (1997) p. 781.
- [172] Zgonik M., Schlessler R., Biaggio I., Voit E., Tscherry J. et Günter P., *J. Appl. Phys.*, **74** (1993) p. 1287.
- [173] Zysset B., Biaggio I. et Günter P., *JOSA B*, **9** (1992) p. 380.
- [174] Noginova N., Kukhtarev N., Kukhtareva T., Noginov M.A., Caulfield H.J., Venkateswarlu P., Parker D. et Banerjee P.P., *JOSA B*, **14** (1997) p. 1390.
- [175] Bylisma R.B., Bridenbaugh P.M., Olson D.H. et Glass A.M., *Appl. Phys. Lett.*, **51** (1987) p. 889.
- [176] Schwartz R.N., Ziari M. et Trivedi S., *Phys. Rev. B*, **49** (1994) p. 5274.
- [177] de Montmorillon L.A., Delaye Ph., Roosen G., Bou Rjeily H., Ramaz F., Briat B., Gliès J.G., Zielinger J.P., Tapiero M., von Bardeleben H.J., Arnoux T. et Launay J.C., *JOSA B*, **13** (1996) p. 2341.
- [178] F. Marple D.T., *J. Appl. Phys.*, **35** (1964) p. 539.
- [179] Launay J. C., Mazoyer V., Tapiero M., Zielinger J.P., Guellil Z., Delaye Ph. et Roosen G., *Appl. Phys. A.*, **55** (1992) p. 33.
- [180] Lenzo P. V., Spencer E. G. et Ballman A. A., *Appl. Opt.*, **5** (1966) p. 1688.
- [181] Papazoglou D.G., Apostolidis A.G. et Vanidhis E.D., *Appl. Phys. B*, **65** (1997) p. 599.
- [182] Feldman A., Brower W. S. et Horowitz D., *Appl. Phys. Lett.*, **16** (1970) p. 201.
- [183] Pauliat G., Cohen-Jonathan J.M., Allain M., Launay J.C. et Roosen G., *Opt. Comm.*, **59** (1986) p. 266.
- [184] Kamshilin A.A., Raita E. et Khomenko A.V., *JOSA B*, **13** (1996) p. 2536.
- [185] Henry M., Mallick S., Rouède D., Celaya L. E. et Weidner A. G., *J. Appl. Phys.*, **59** (1986) p. 265.
- [186] Tuovinen H., Kamshilin A.A. et Jaaskelainen T., *JOSA B*, **14** (1997) p. 3383.
- [187] Aldrich R.E., Hou S.L. et Harvill M.L., *J. Appl. Phys.*, **42** (1971) p. 493.

## **Holographie spectro-temporelle**

J.-L. Le Gouët

*Laboratoire Aimé Cotton, UPR 3321 du CNRS, Centre Scientifique d'Orsay,  
bâtiment 505, 91405 Orsay cedex, France*

**Résumé :** L'utilisation d'un matériau photosensible sélectif en longueur d'onde permet d'étendre à la dimension spectro-temporelle les concepts de l'holographie, d'habitude restreints aux seules dimensions spatiales. Après avoir examiné le principe de l'enregistrement dans un tel matériau nous dressons un bref inventaire de quelques expériences réalisées ou projetées en vue d'applications au stockage et au traitement optique de l'information.

### **1. INTRODUCTION**

Alors que la photographie enregistre la distribution d'intensité de la lumière, c'est une cartographie complète (« holo » = tout entier) du champ électromagnétique que réalise l'holographie par le biais d'une gravure interférentielle. Encore enregistre-t-on seulement une répartition spatiale. Celle-ci suffit à décrire complètement un champ monochromatique mais le matériau photosensible, en général peu sélectif en longueur d'onde, est impuissant à enregistrer l'information contenue dans la distribution spectro-temporelle d'un champ polychromatique.

Le présent exposé traite d'holographie réalisée dans des matériaux tout différents, capables de sélectivité en longueur d'onde à l'échelle microscopique. Avec la dimension spectrale, c'est aussi la dimension temporelle, conjuguée de la première, qui s'ajoute à la cartographie du champ. Ces propriétés se paient par l'inconvénient d'un fonctionnement à très basse température. Quelles applications pourraient s'accommoder d'une telle contrainte? Puisqu'une dimension est ajoutée au volume de stockage, on envisage d'emblée la réalisation de mémoires optiques rapides de grande capacité. D'autre part, les propriétés de traitement optique du signal déjà rencontrées en holographie spatiale méritent d'être étendues au domaine spectro-temporel. Enfin, on cherche à exploiter les fonctionnalités que les hologrammes spectro-temporels partagent avec les modulateurs acousto-optiques, combinant comme eux sélectivité spectrale et spatiale, mais avec des bandes passantes et des produits temps  $\times$  bande passante bien supérieurs.

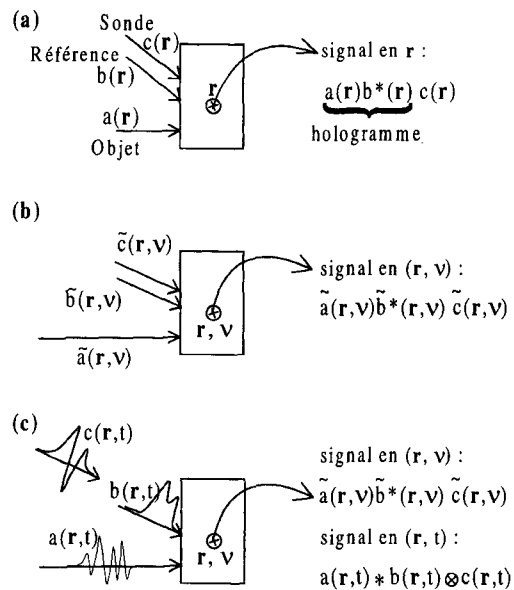
Les notions d'holographie évoquées dans l'introduction sont précisées dans le paragraphe 2. Le paragraphe 3 décrit les mécanismes physiques mis en jeu dans un

enregistrement sélectif en longueur d'onde. Dans le paragraphe 4 sont discutées des applications où des hologrammes monochromatiques sont enregistrés à différentes longueurs d'onde. La dimension temporelle est introduite dans le paragraphe 5 et les potentialités en termes de traitement optique spectro-temporel sont présentées dans le paragraphe 6.

Nous laisserons de côté la propriété de sélectivité de Bragg qui, dans le cas de l'holographie en volume, permet de réaliser une certaine discrimination spectrale [1]. Celle-ci repose sur un filtrage en longueur d'onde interférentiel lié à l'épaisseur du réseau enregistré dans le matériau photosensible.

## 2. ENREGISTREMENT DU CHAMP

Lors de l'enregistrement d'un hologramme conventionnel, un point  $\mathbf{r}$  d'un matériau photosensible est éclairé par les champs monochromatiques objet et référence  $a(\mathbf{r})$  et  $b(\mathbf{r})$ . La gravure effectuée en ce point est proportionnelle au produit  $a(\mathbf{r})b^*(\mathbf{r})$ . Le signal émis par ce point, lorsqu'il est interrogé par un champ de lecture  $c(\mathbf{r})$ , est proportionnel à  $a(\mathbf{r})b^*(\mathbf{r})c(\mathbf{r})$  (figure 1.a). Cette expression reflète le caractère local de l'émission, dans l'espace des positions : le signal émis au point  $\mathbf{r}$  est fonction de l'enregistrement effectué en ce point.



**Figure 1 :** Holographie conventionnelle, source monochromatique (a). Holographie spectro-spatiale dans un matériau sélectif en fréquence, source polychromatique (b). Holographie spectro-spatiale produite par des champs dépendant du temps (c).

En général la localité ne se manifeste pas dans l'espace des fréquences temporelles. Par exemple, à condition de satisfaire la condition d'accord de phase, on peut fort bien relire à l'aide d'un laser hélium-néon un hologramme gravé par le faisceau vert d'un laser à argon ionisé. Il existe pourtant des matériaux photosensibles où la propriété de localité se rencontre également dans l'espace des fréquences temporelles. Dans un tel matériau sélectif en

fréquence, il faut, pour définir un point, compléter ses coordonnées spatiales  $\mathbf{r}$  par sa fréquence temporelle  $\nu$  (figure 1.b). On peut alors mettre en oeuvre des champs polychromatiques qui au point  $(\mathbf{r}, \nu)$  sont caractérisés par les amplitudes  $\tilde{a}(\mathbf{r}, \nu)$ ,  $\tilde{b}(\mathbf{r}, \nu)$ ,  $\tilde{c}(\mathbf{r}, \nu)$ . La gravure en  $(\mathbf{r}, \nu)$  est proportionnelle à  $\tilde{a}(\mathbf{r}, \nu) \tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu)$  et la contribution de ce point spatio-spectral au signal holographique est donnée par [2] :

$$\tilde{s}(\mathbf{r}, \nu) = \tilde{a}(\mathbf{r}, \nu) \tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu) \tilde{c}(\mathbf{r}, \nu) \quad (1)$$

La composante spectrale du faisceau sonde à la fréquence  $\nu$  est diffractée par la composante de même fréquence du hologramme, et par elle seule.

Les amplitudes spectrales et temporelles  $\tilde{f}(\mathbf{r}, \nu)$  et  $f(\mathbf{r}, t)$  des champs lumineux sont reliées entre elles par transformation de Fourier suivant l'équation :

$$f(\mathbf{r}, t) = \int d\nu \tilde{f}(\mathbf{r}, \nu) \exp 2i\pi\nu t \quad (2)$$

Substituant cette relation dans l'équation 1, on exprime l'amplitude temporelle du signal sous la forme :

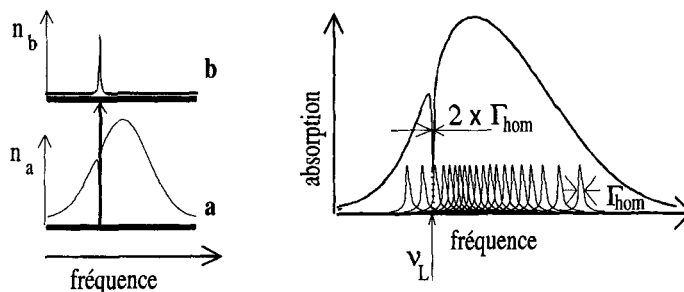
$$s(\mathbf{r}, t) = a(\mathbf{r}, t) * b(\mathbf{r}, t) \otimes c(\mathbf{r}, t) \quad (3)$$

où  $*$  et  $\otimes$  désignent respectivement la corrélation et la convolution des profils temporels des ondes excitatrices. Si la référence d'écriture  $b(\mathbf{r}, t)$  et l'onde de lecture  $c(\mathbf{r}, t)$  sont brèves et se propagent dans la même direction, le signal se réduit à  $a(\mathbf{r}, t)$ , il reproduit fidèlement le profil temporel du champ objet enregistré. En particulier on retrouve, entre l'onde de lecture et le signal, le même décalage qu'entre la référence  $b(\mathbf{r}, t)$  et l'objet  $a(\mathbf{r}, t)$ . On reconnaît le phénomène d'écho de photon stimulé [3], mis en évidence en 1978 dans le contexte de l'excitation résonnante d'une transition atomique et analogue au processus d'écho de spin rencontré en résonance magnétique nucléaire.

### 3. « HOLE BURNING » SPECTRAL

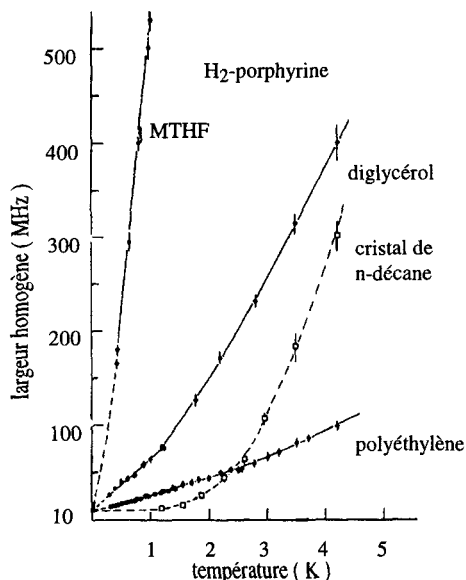
Les hologrammes conventionnels sont en général gravés sous forme de réseaux d'indice dans des matériaux quasi transparents, ce qui permet en principe d'atteindre une efficacité de diffraction élevée. L'holographie spectro-temporelle requiert une sélectivité spectrale que ne présente pas l'indice de réfraction mais que possède en revanche le coefficient d'absorption des matériaux refroidis à très basse température.

Lorsque des chromophores (ions ou molécules) sont dispersés dans un solide, leurs niveaux d'énergie interne sont déplacés par interaction avec l'environnement. Dans un cristal parfait, des centres absorbants, tous disposés identiquement par rapport au réseau cristallin, subiraient tous le même déplacement de niveaux. Leurs raies d'absorption seraient toutes identiques, centrées à la même fréquence, et posséderaient toutes la même largeur appelée largeur homogène et notée  $\Gamma_{\text{hom}}$ . Dans une matrice réelle, dont le réseau présente du désordre et des défauts, chaque site d'insertion donne naissance à un déplacement spécifique de la fréquence de transition. Les raies d'absorption individuelles, toujours caractérisées par une largeur commune  $\Gamma_{\text{inh}}$ , se trouvent distribuées sur un intervalle spectral de largeur  $\Gamma_{\text{inh}}$ ,



**Figure 2 :** Des centres absorbants à deux niveaux d'énergie a et b sont excités à la fréquence  $\nu_L$ . À gauche: distribution spectrale des populations des deux niveaux après excitation. À droite: modification du profil de la bande d'absorption. On a représenté les raies homogènes de largeur  $\Gamma_{\text{hom}}$  dont l'enveloppe constitue la bande de largeur inhomogène  $\Gamma_{\text{inh}}$ .

appelée largeur inhomogène. À basse température, le spectre inhomogène reste large cependant que les spectres individuels des chromophores dopants s'affinent considérablement. À 10 K, la largeur homogène  $\Gamma_{\text{hom}}$  peut être de  $10^3$  à  $10^9$  fois plus petite que la largeur inhomogène  $\Gamma_{\text{inh}}$ .



**Figure 3 :** Élargissement homogène de la raie à  $S_1-S_0$  0-0 de la porphyrine-base dispersée dans différentes matrices organiques

Il a fallu attendre l'invention du laser pour confirmer expérimentalement cette description. En effet la sous-structure homogène d'un spectre d'absorption n'est pas directement accessible. Le profil enregistré par spectroscopie linéaire conventionnelle est toujours affecté par l'élargissement inhomogène. Avec l'avènement du laser ont été inaugurées les techniques de spectroscopie de saturation qui, pour la première fois, ont donné



accès à  $\Gamma_{\text{hom}}$ . Il s'agit de processus en deux étapes. Accordé à la fréquence  $\nu_L$ , un laser monochromatique illumine tout d'abord l'échantillon et porte dans le niveau supérieur de la transition les centres absorbants dont la fréquence coïncident avec  $\nu_L$  à  $\Gamma_{\text{hom}}$  près. On peut alors analyser, par exemple à travers un Fabry-Perot, le spectre d'émission des atomes ainsi excités. C'est la technique d'*affinement de fluorescence* ou *Fluorescence Line Narrowing*. Par ailleurs, le dépeuplement du niveau fondamental et le peuplement corrélatif du niveau excité se traduisent par une réduction de l'absorption sur l'intervalle spectral atteint par le laser. C'est le phénomène de *hole burning* spectral. La technique d'*absorption saturée* consiste à analyser, par transmission d'un faisceau monochromatique accordable, ce « trou » de largeur  $2 \times \Gamma_{\text{hom}}$  creusé dans le profil de la bande d'absorption. D'abord appliquées aux vapeurs atomiques, où l'élargissement inhomogène est produit par l'effet Doppler [4], ces méthodes spectroscopiques se sont ensuite étendues aux solides [5-7].

La figure 3 présente un exemple de résultats obtenus par spectroscopie de saturation, sur la transition  $S_1-S_0$  0-0 d'un colorant organique, la porphyrine. Il s'agit d'une étude de la variation de  $\Gamma_{\text{hom}}$  en fonction de la température T, la porphyrine étant insérée dans différents matériaux [8]. L'élargissement en fonction de T dépend beaucoup de la nature de matrice hôte. À 1 K, la largeur homogène ne dépasse pas 10 MHz dans un cristal de n-décane mais atteint 600 MHz dans une matrice amorphe de méthyltétrahydrofurane. Lorsque la température tend vers zéro, toutes les courbes convergent vers la largeur naturelle de la raie, égale à la moitié de l'inverse de la durée de vie du niveau supérieur de la transition. Il est remarquable que la contribution de la matrice à l'élargissement homogène disparaisse à  $T = 0$ , alors même que subsiste le déplacement inhomogène de la fréquence de transition. Ceci reflète les caractères dynamique de l'un et statique de l'autre.

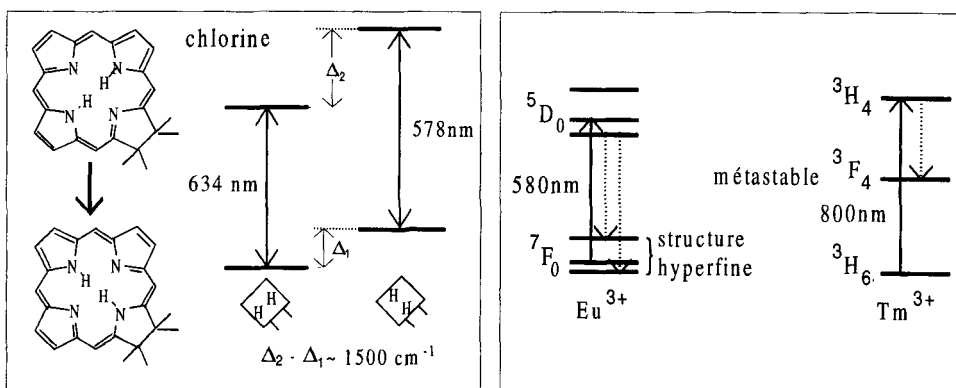
Lorsque le centre absorbant est porté dans un état excité, sa distribution électronique se modifie. La matrice hôte doit se déformer pour s'ajuster à cette transformation et atteindre un nouvel état d'équilibre. Le couplage entre la transition électronique et le réarrangement de la matrice est connue sous le nom de couplage électron-phonon. En raison de ce phénomène, la composante purement électronique de la raie homogène, dite *raie à zéro phonon*, de largeur  $\Gamma_{\text{hom}}$ , est flanquée sur son aile bleue d'une bande latérale de phonon, beaucoup plus large. L'élévation de la température a pour effet non seulement d'élargir la raie à zéro phonon mais surtout de l'effacer rapidement au profit de la bande latérale de phonon.

En permettant de modifier localement le profil d'absorption, le *hole burning* spectral apparaît comme un mécanisme potentiel d'enregistrement sélectif en fréquence. Cependant, lorsque les centres actifs se comportent comme de simples systèmes à deux niveaux d'énergie, ils reviennent rapidement à leur état fondamental et le trou spectral s'efface. En revanche des canaux de phototransformation peuvent s'ouvrir dans le niveau excité de centres actifs plus complexes. Alors l'état final du système diffère de son état fondamental initial et le trou creusé dans le profil de la bande d'absorption peut survivre pendant des heures, voire des jours entiers, à basse température [7]. Nous désignerons dans la suite sous le sigle PSHB (*persistent spectral hole burning*) les matériaux qui possèdent cette propriété.

La bande d'absorption se comporte comme une véritable plaque photographique dans l'espace des fréquences. La largeur inhomogène  $\Gamma_{\text{inh}}$  représente la dimension de la plaque tandis que le « grain de l'émulsion » est donné par  $\Gamma_{\text{hom}}$ . Deux grandes classes de matériaux ont été explorées, qui correspondent à des valeurs très différentes des paramètres  $\Gamma_{\text{inh}}$  et  $\Gamma_{\text{hom}}$ . Dans le cas des molécules organiques dispersées dans des verres ou des polymères, la largeur inhomogène atteint plusieurs THz tandis que la largeur homogène varie entre quelques dizaines de MHz et quelques GHz à la température de l'hélium liquide. Le nombres de points

séparables à l'intérieur du profil d'absorption varie donc entre  $10^3$  et  $10^5$ . Dans le cas des ions de terres rares insérés dans des cristaux inorganiques, la largeur inhomogène varie entre quelques GHz et quelques centaines de GHz suivant la régularité du réseau cristallin. La largeur homogène est typiquement de l'ordre de 100 KHz à 5 K, mais peut descendre jusqu'à 100 Hz à 1.4 K [9].

La figure 4 illustre quelques mécanismes susceptibles de maintenir la gravure au delà de la durée de vie radiative du niveau supérieur de la transition optique. Le premier représente une transformation photochimique dans la chlorine, un dérivé de la porphyrine. Lorsque la molécule est portée dans le premier état électronique excité par absorption à 634 nm, les deux protons au centre du cycle polypyrrrolique peuvent subir une rotation de  $90^\circ$  qui déplace la fréquence de transition à 578 nm. Lors du retour à l'état fondamental, le déficit d'absorption à la fréquence d'excitation est alors préservé. La transformation chimique est irréversible, tout au moins tant que le matériau est maintenu à basse température. Cependant le rendement quantique -probabilité de réaction par photon absorbé- est très faible, de l'ordre de  $10^{-3}$ , et la molécule excitée revient préférentiellement vers son état initial sans subir de transformation. Un autre facteur contribue à ralentir la gravure. Au lieu de revenir directement à l'état fondamental, la molécule relaxe, avec une probabilité de l'ordre de 90%, vers le niveau triplet de l'état électronique excité. D'une durée de vie de plusieurs dizaines de ms, ce triplet constitue un goulot d'étranglement dans le processus de pompage optique et empêche la molécule d'être rapidement disponible pour un nouveau cycle d'excitation. En conclusion, la probabilité de phototransformation d'une molécule ne dépasse pas quelques  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , quelle que soit l'énergie lumineuse disponible. Un mécanisme plus efficace serait une phototransformation à deux photons de couleurs différentes qui, outre qu'elle supprimerait les temps morts, assurerait aussi la fixation de la gravure [10].

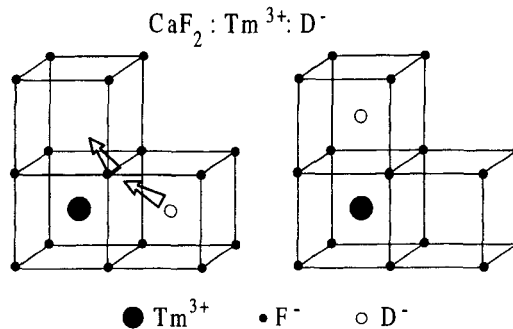


**Figure 4 :** Exemples de mécanismes de maintien du « hole burning » spectral dans les matériaux organiques et les ions de terres rares.

Dans les ions de terres rares d'autres processus permettent de sauvegarder la gravure spectrale effectuée par « hole burning ». Ainsi, dans l'ion Europium  $\text{Eu}^{3+}$  [11], l'excitation sur la transition  ${}^7\text{F}_0$ - ${}^5\text{D}_0$  modifie par pompage optique la répartition ionique entre les sous-niveaux hyperfins du fondamental  ${}^7\text{F}_0$ . Le retour à l'équilibre thermique de cette distribution demande plusieurs heures pendant lesquelles la gravure est préservée. La largeur inhomogène disponible est limitée à quelques GHz à cause du chevauchement des raies associées aux différents sous-niveaux hyperfins. On peut aussi tirer parti de la présence d'un niveau

métastable vers lequel relaxe l'ion excité optiquement avant de retourner au fondamental. C'est le cas dans l'ion Thulium  $Tm^{3+}$  [12] où la gravure ne subsiste cependant pas plus d'une dizaine de millisecondes, durée de vie du niveau intermédiaire  $^3F_4$ . Avec une largeur homogène de quelques kHz seulement à 1.5 K on peut espérer distinguer jusqu'à  $10^7$  canaux spectraux sur une largeur inhomogène de l'ordre de 10 GHz comme celle qu'on rencontre dans  $Tm^{3+}$ :YAG. Des recherches très récentes font apparaître une bande d'absorption de 270 GHz dans  $Tm^{3+}$ :YLuAG, dont la matrice cristalline est un peu plus désordonnée que le YAG. Le nombre de canaux spectraux accessibles atteint alors  $10^9$  à 1.5 K. La grande finesse de la raie homogène se paie par une très faible force d'oscillateur, de l'ordre de  $10^{-8}$ , qui contraint à mettre en oeuvre des flux lumineux élevés. Dans le cas précis d'un cristal dopé 0.1at %  $Eu^{3+}$ :  $Y_2SiO_5$  l'exposition requise pour creuser jusqu'à saturation un trou monochromatique est de  $8 \text{ mJ/cm}^2$  environ [13].

La gravure n'implique pas seulement des mécanismes internes aux centres absorbants. Ainsi a-t-on creusé des trous spectraux de plusieurs heures de durée de vie dans la bande d'absorption à 793 nm de l'ion  $Tm^{3+}$ , lorsque celui-ci est inséré dans une matrice de  $CaF_2$ :  $D^-$ . La migration d'ions  $D^-$  vibrationnellement excités par transfert d'énergie explique vraisemblablement cet effet [14] (figure 5). La largeur d'un trou atteint 20 MHz environ, pour une largeur inhomogène de 20 GHz.



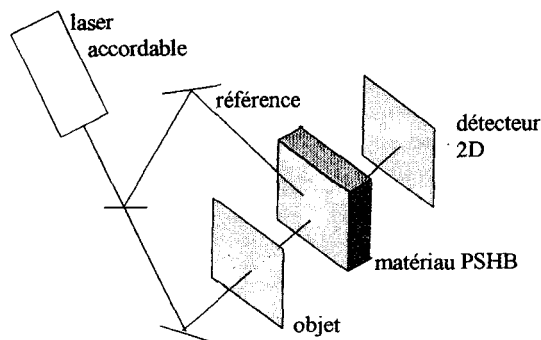
**Figure 5** : Mécanisme probable de gravure dans  $CaF_2 : Tm^{3+} : D^-$ . Dans le cristal excité sur la transition à 793 nm du thulium, l'ion  $D^-$  quitte un site pour migrer vers une autre position stable.

#### 4. HOLOGRAPHIE SPATIALE SÉLECTIVE EN LONGUEUR D'ONDE

Dans le paragraphe précédent nous avons examiné le mécanisme physique d'enregistrement sélectif en longueur d'onde en laissant de côté les dimensions spatiales du matériau utilisé. En fait le volume spatial de mémoire reste tout entier disponible à chaque longueur d'onde. Dans la perspective du stockage optique à grande capacité, des démonstrations de mémoires de pages à trois dimensions ont été réalisées [13, 15]. Les informations contenues dans une page spatiale à deux dimensions sont gravées ou lues en parallèle. Chaque page est caractérisée par une adresse spectrale qui constitue la troisième dimension.

La technique d'enregistrement et de lecture, représentée sur la figure 6, ne se distingue de l'holographie conventionnelle que par l'utilisation d'un laser accordable en fréquence qui permet d'accéder séquentiellement aux différentes adresses spectrales. La profondeur du trou spectral creusé par le laser monochromatique dépend de l'énergie reçue. Comme la

distribution spatiale de l'énergie reçue est déterminée par la figure d'interférence des faisceaux objet et référence, un hologramme d'absorption s'inscrit dans le matériau photosensible suivant la distribution spatiale du « hole burning » spectral. Le hologramme existe seulement à la longueur d'onde de la lumière de gravure. Quand un laser sonde est accordé à cette longueur d'onde, son faisceau est diffracté. Il ne rencontre plus l'enregistrement dès que sa fréquence s'écarte de plus de  $2\Gamma_{\text{hom}}$  de celle du laser de gravure. La sélectivité du « hole burning » est locale par essence et n'a aucun rapport avec la sélectivité de Bragg conventionnelle, qui dépend de l'épaisseur de l'échantillon. Chaque réseau gravé par « hole burning » spectral n'occupe donc qu'un canal de largeur  $2\Gamma_{\text{hom}}$  dans l'espace des fréquences. Au sein d'un matériau de largeur inhomogène  $\Gamma_{\text{inh}}$ , peuvent cohabiter  $\Gamma_{\text{inh}}/(2\Gamma_{\text{hom}})$  hologrammes indépendants. Chacun se construit sur un groupe de centres actifs spécifique et, dans un matériau parfait tout au moins, l'efficacité de diffraction de chacun d'eux est *indépendante de leur nombre*. Elle peut atteindre quelques pour cent. Ce comportement, caractéristique d'un enregistrement *multicanal*, diffère de celui du *multiplexage* en fréquence dans un photoréfractif. Dans ce dernier cas en effet, les réseaux gravés à différentes longueurs se partagent l'efficacité de diffraction maximum disponible. L'efficacité de diffraction sur chaque hologramme *décroit alors comme l'inverse du carré du nombre* de hologrammes multiplexés.

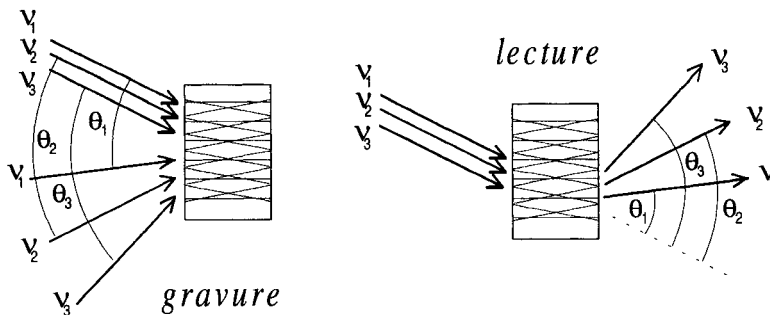


**Figure 6 :** Schéma de principe d'une mémoire de pages à trois dimensions, une de longueur d'onde et deux d'espace.

La première étude a été réalisée à ETH Zürich par le groupe de U. Wild dans un matériau organique, la chlorine, dispersée dans un film de polyvinylbutyral de  $65\ \mu\text{m}$  d'épaisseur, sur une surface de un pouce carré. Dans cette mince feuille ont été stockées 6000 pages de  $20 \times 20$  pixels, réparties sur les 4 THz de largeur de la bande d'absorption à  $634\ \text{nm}$  [15]. La vitesse d'accès aux adresses spectrales reste très faible en raison des difficultés rencontrées pour balayer un laser monochromatique sur un aussi grand intervalle. Par ailleurs la faible efficacité quantique du processus photochimique de gravure requiert des expositions de longue durée. Même réduite à 4 secondes par page, la durée cumulée des 6000 expositions atteint plus de 6 heures! Sur la transition  ${}^7F_0 - {}^5D_0$  à  $580\ \text{nm}$  dans l'ion de terre rare  $\text{Eu}^{3+}$  inséré dans un cristal de  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  l'efficacité quantique de photo-transformation est environ  $10^3$  fois plus grande, la largeur inhomogène de la bande d'absorption  $10^3$  fois plus petite pour un nombre de canaux spectraux au moins 10 fois plus élevé que dans l'échantillon organique précédent. L'enregistrement et la lecture cinématographiques en temps réel ont pu être démontrés dans

un tel matériau à l'occasion d'une collaboration entre des groupes de NTT et Olympus Co.[13]. Cependant la très grande stabilité du laser ( $10^{-12}$ ) et la basse température (7K) restent prohibitives pour un domaine d'application où des techniques beaucoup moins complexes et coûteuses continuent à progresser.

Se tournant vers des applications plus spécialisées, on pourrait exploiter l'association des coordonnées de fréquence et d'espace, afin de réaliser par exemple des opérations de balayage angulaire rapide, d'analyse spectrale, de corrélation. Des architectures à base de dispositifs acousto-optiques possèdent ces fonctionnalités mais les performances des matériaux PSHB permettent de concevoir des processeurs optiques dotés d'une bande passante 10 à 50 fois plus grande et d'un produit temps  $\times$  fréquence considérable. L'exemple de l'analyse spectrale à large bande instantanée et haute résolution [16] est schématisé sur la figure 7. Il consiste à séparer spatialement les composantes spectrales d'un faisceau lumineux modulé par un signal radiofréquence. Pour ce faire on tire parti de la possibilité de graver, dans un même cristal PSHB,  $\Gamma_{inh}/(2\Gamma_{hom})$  réseaux de Bragg indépendants. Chaque réseau enregistré à la fréquence  $\nu^{(n)}$  est caractérisé par un vecteur spécifique  $\mathbf{k}_2^{(n)} - \mathbf{k}_1^{(n)}$  défini par les vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_1^{(n)}$  et  $\mathbf{k}_2^{(n)}$  des deux faisceaux de gravure. Supposons que tous les vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_1^{(n)}$  soient orientés dans la direction commune  $\mathbf{k}_1$ . Alors les différentes composantes spectrales  $\nu^{(n)}$  d'un faisceau polychromatique incident suivant  $\mathbf{k}_1$  seront séparées et diffractées dans les directions  $\mathbf{k}_2^{(n)}$ . Elles pourront être détectées simultanément sur une matrice de photodétecteurs. Il faut souligner encore une fois que le filtrage spectral, dans un matériau PSHB, n'est pas lié à la sélectivité de Bragg mais au caractère résonnant de l'absorption à l'échelle atomique. À titre d'illustration, fixons comme objectif une résolution de 10 MHz, aisément accessible dans un matériau composé d'ions de terre rare. Pour atteindre la même résolution par sélectivité de Bragg, un cristal de  $\text{LiNbO}_3$  de 6 mètres de long, utilisé en configuration de contrepropagation, serait nécessaire.



**Figure 7 :** Principe de la séparation angulaire des fréquences temporelles. Dans un premier temps les réseaux de Bragg monochromatiques sont gravés sous différentes incidences. Ils sont alors disponibles pour diffracter différentes fréquences dans différentes directions.

La dimension temporelle est pour l'instant absente de cet exposé. Pourtant fréquence et temps, variables conjuguées, sont étroitement liées et nous n'avons pu ignorer la dimension temporelle qu'en supposant implicitement que les durées mises en jeu pour la gravure, le balayage de fréquence ou la lecture, étaient toutes très supérieures à l'inverse de la largeur homogène. Nous montrons dans le paragraphe suivant qu'il est possible de faire l'économie de cette hypothèse.

## 5. ASPECTS DYNAMIQUES

Par la méthode d'adressage en longueur d'onde décrite dans le paragraphe précédent, on accède successivement aux différents canaux spectraux définis dans la bande d'absorption du matériau mémoire. Le balayage séquentiel de ces adresses est représenté sur la figure 8. Si le temps passé à chaque adresse est noté  $\tau$ , alors une adresse occupe un intervalle spectral au moins égal à  $\tau^{-1}$ . La vitesse de transfert des données, égale elle aussi à  $\tau^{-1}$ , semble entrer en conflit avec la capacité de mémoire. En effet, la séparation des adresses spectrales, réparties sur l'intervalle  $\Gamma_{inh}$ , exige que le produit du nombre d'adresses par la vitesse de transfert soit inférieur à  $\Gamma_{inh}$ . Cette observation, si elle était correcte, conduirait à une vitesse d'accès maximale  $\Gamma_{inh}^{-1}$  dans une mémoire dont on exploiterait la pleine capacité  $\Gamma_{inh}/\Gamma_{hom}$ . Nous allons montrer cependant que les enregistrements peuvent se chevaucher dans l'espace des fréquences sans que cela nuise à leur lisibilité. C'est une propriété de multiplexage analogue à celle qu'on rencontre en holographie spatiale conventionnelle. Elle ne doit pas surprendre. Tout comme en holographie spatiale on enregistre la distribution spatiale du *champ* lui-même et non celle de son intensité, c'est bien la distribution spectrale du champ qu'on enregistre dans le matériau PSHB.

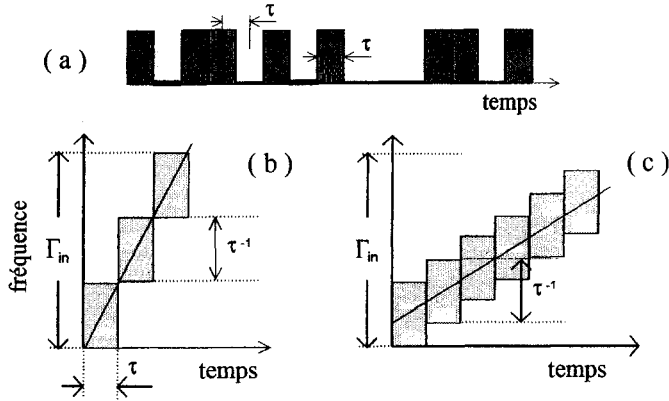
Lorsque les champs de référence et de lecture sont deux ondes planes de même direction de propagation et de durée inférieure à  $\Gamma_{inh}^{-1}$ , leur spectre est plat sur l'intervalle de gravure et le produit de leurs amplitudes spectrales prend la forme :

$$\tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu) \tilde{c}(\mathbf{r}, \nu) = \exp(-2i\pi\nu t_{23}) \quad (4)$$

où  $t_{23}$  désigne la séparation temporelle entre les deux impulsions. D'après les équations 1- 4 ,  $s(\mathbf{r}, t)$  reproduit alors la forme de l'objet  $a(\mathbf{r}, t)$ , à la translation de  $t_{23}$  près. Le hologramme  $\tilde{a}(\mathbf{r}, \nu) \tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu)$  associé à cet objet s'étend sur un intervalle spectral au plus égal à  $\Gamma_{inh}$ , sur lequel il est enregistré avec la résolution  $\Gamma_{hom}$ . Cela correspond dans le domaine temporel, d'après les propriétés de la transformation de Fourier et compte tenu de la brièveté de l'impulsion référence, à un objet de durée maximale  $\Gamma_{hom}^{-1}$  dont la structure est sauvegardée avec la résolution  $\Gamma_{inh}^{-1}$ . Un train de  $\Gamma_{inh}/\Gamma_{hom}$  impulsions de durée  $\Gamma_{inh}^{-1}$  satisfait ces conditions et représente bien une capacité maximale de  $\Gamma_{inh}/\Gamma_{hom}$  adresses explorées à la vitesse maximale  $\Gamma_{inh}$ , vitesse  $\Gamma_{inh}/\Gamma_{hom}$  fois plus élevée que ne le permettraient des adresses spectrales séparées.

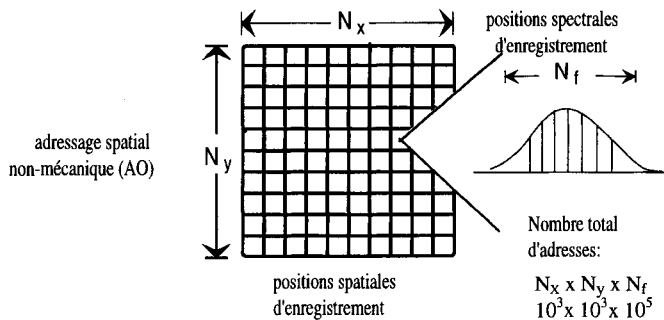
Une telle cadence de transfert dépasse cependant les performances de la plupart des dispositifs électroniques et on cherche plutôt à obtenir une vitesse intermédiaire entre  $\Gamma_{inh}$  et  $\Gamma_{hom}$ . L'holographie spectro-temporelle permet d'atteindre cet objectif. En effet, il n'est pas nécessaire d'utiliser des impulsions courtes pour exploiter la pleine capacité de la mémoire, tout en atteignant une vitesse très supérieure à  $\Gamma_{hom}$ . On peut restituer un champ objet spatio-temporel  $a(\mathbf{r}, t)$  si les deux conditions suivantes sont vérifiées :

- le produit  $\tilde{a}(\mathbf{r}, \nu) \tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu)$  s'étend sur un intervalle inférieur à  $\Gamma_{inh}$  et il ne présente pas de structure plus étroite que  $\Gamma_{hom}$ .
- le produit des spectres référence et lecture se réduit à  $\tilde{b}^*(\mathbf{r}, \nu) \tilde{c}(\mathbf{r}, \nu) = \exp(-2i\pi\nu t_{23})$  sur l'intervalle de gravure.



**Figure 8 :** Les données atteignent ou quittent la mémoire à la vitesse  $\tau^{-1}$  (a). Leur séparation spectrale limite le nombre des adresses à  $\Gamma_{inh}\tau$  (b). Par multiplexage on atteint pourtant la capacité d'adresses maximale  $\Gamma_{inh}/\Gamma_{hom}$  à la vitesse  $\Gamma_{inh}$  (c).

Sans faire appel à des impulsions brèves, on peut satisfaire ces conditions à l'aide de champs à glissement linéaire de fréquence de la forme  $\exp 2i\pi(\nu_0 + \alpha t)t$ . Les données sont alors gravées et lues sur un intervalle spectral de largeur  $\alpha T/2$  pendant la durée  $T$  du balayage. Par cette méthode ont été stockés expérimentalement 1760 bits sur un intervalle de 900 MHz [17] dans un échantillon de  $Tm^{3+}$ :YAG. La séparation spectrale des données aurait limité la vitesse de transfert à  $900/1760 \approx 0.5$  Mbits/s. Le multiplexage spectral a permis d'atteindre une vitesse de 20 Mbits/s. Pour cela on a dû multiplexer environ 40 adresses spectrales en chaque point du profil d'absorption, suivant le schéma de la figure 8c.



**Figure 9 :** Schéma de principe d'une mémoire à trois dimensions à accès séquentiel rapide (ODRAM). Chaque position spatiale est occupée par  $10^5$  adresses spectrales. Ce groupe d'adresses serait parcouru à une vitesse comprise entre 10 et 1000 Mbits/s. Les  $10^3 \times 10^3$  positions spatiales, réunies sur une petite surface d'environ  $7 \text{ cm}^2$ , pourraient être explorées à l'aide d'un déflecteur acousto-optique.

T. Mossberg, qui a réalisé ce travail à l'Université d'Oregon à Eugene insiste sur deux autres propriétés de ce type d'enregistrement. D'une part, en ajoutant la dimension spectrale au volume de mémoire on atteint des densités spatiales élevées : 1.2 Gbits/cm<sup>2</sup> dans cet exemple, alors qu'un dixième seulement de la bande d'absorption est occupée. D'autre part on accède à un si grand nombre de données en éclairant un seul point de l'échantillon, sans

déplacement mécanique, que la dimension spectrale peut constituer à elle seule un axe « rapide » de grande capacité. Mossberg tient le raisonnement suivant. Compte tenu des limites imposées par le bruit, il faut environ  $n = 10^4$  atomes pour enregistrer 1 bit. Par ailleurs l'intensité du signal est optimale dans un échantillon de densité optique voisine de 1. Il en résulte une valeur maximale de la densité surfacique des données enregistrées. Dans une mémoire orientée vers le stockage d'images bidimensionnelles de haute définition, on s'accommode de cette contrainte en élargissant le spectre du laser. On atteint ainsi davantage de centres actifs à travers un élément de surface et on réduit de ce fait l'aire requise pour produire le signal minimum détectable. L'amélioration de la résolution spatiale se paie par une dégradation de la résolution spectrale. Les centres actifs disponibles se partagent entre des canaux spectraux moins nombreux. Au contraire, et c'est l'objectif visé par Mossberg, on peut choisir d'accroître le nombre  $N_f$  d'adresses spectrales accessibles en un seul point éclairé. La surface à réserver à chaque pile d'adresses spectrales est alors déterminée par le nombre total  $nN_f$  d'atomes requis, divisé par la densité surfacique des atomes actifs dans une lame de densité 1 [18]. Pour  $N_f = 10^5$  dans  $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$  la surface nécessaire pour chaque pile est environ  $400 \mu\text{m}^2$ . Sur une plaque de 1 pouce carré on peut rassembler  $10^6$  piles spectrales, adressables en  $10 \mu\text{s}$  environ par déflexeur acousto-optique, et réaliser ainsi une unité de mémoire de 10 gigaoctets, avec une vitesse de transfert de quelques dizaines de Mbits/s à l'intérieur de chaque pile de  $10^5$  adresses, et un temps de latence de  $10 \mu\text{s}$  pour la commutation entre les points. Une telle mémoire, dont le principe est schématisé sur la figure 9, offrirait la capacité d'un support magnétique avec une vitesse d'accès beaucoup plus élevée. S'appuyant sur ce schéma, un prototype de mémoire séquentielle rapide est en cours de réalisation dans le cadre de la « startup company » TEMPLEX à Eugene.

En examinant le problème de la vitesse de transfert dans une mémoire sélective en fréquence nous avons rencontré des propriétés liées à la cohérence dans le domaine spectro-temporel. Le parallèle entre espace et temps/fréquence se poursuit dans le paragraphe suivant. Des architectures familières en holographie spatiale sont adaptées à la conception de processeurs optiques spectro-temporels.

## 6. PROCESSEURS SPECTRO-TEMPORELS

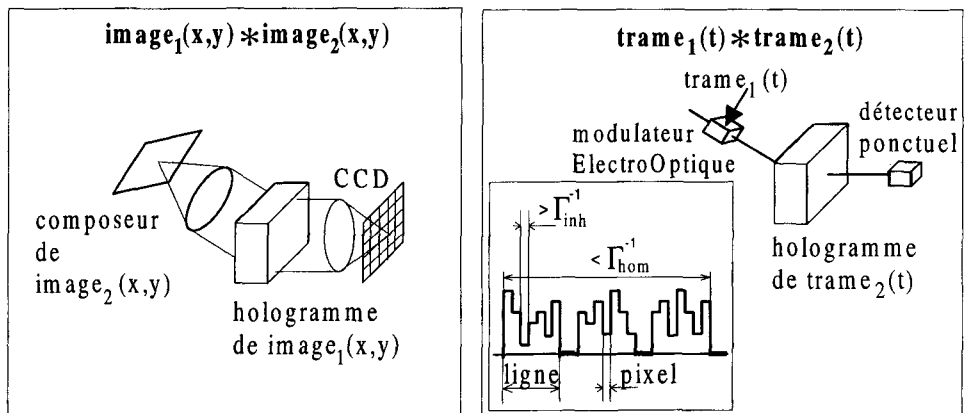
Dans le paragraphe 5 nous avons considéré la situation où la référence d'écriture  $b(\mathbf{r}, t)$  et l'onde de lecture  $c(\mathbf{r}, t)$  sont des impulsions brèves qui se propagent dans la même direction. Le signal se réduit alors à  $a(\mathbf{r}, t - t_2)$  et reproduit fidèlement le profil temporel du champ objet enregistré. C'est la configuration choisie pour réaliser une mémoire. Plus généralement l'équation 3 présente une forme similaire à celle qui, en holographie de Fourier, constitue la base de la conjugaison de phase ou de l'intercorrélacion d'images [19]. La coordonnée temporelle y joue le rôle tenu par les coordonnées d'espace en holographie conventionnelle. La situation équivalente à celle de la conjugaison de phase se manifeste lorsque  $a(\mathbf{r}, t)$  et  $c(\mathbf{r}, t)$  sont des impulsions brèves. Dans le domaine temporel, l'hologramme réalise alors une opération de renversement du temps, construisant  $b^*(\mathbf{r}, -t)$  à partir du champ enregistré  $b(\mathbf{r}, t)$ . À la correction de distorsion par conjugaison de phase répond, dans le domaine spectro-temporel, la correction de dispersion par inversion du temps [20]. L'opération d'intercorrélacion est effectuée lorsque  $a(\mathbf{r}, t)$  est une impulsion brève. L'équation 3 se réduit alors à l'expression :

$$s(\mathbf{r}, t) = b(\mathbf{r}, t) * c(\mathbf{r}, t) \quad (5)$$



qui fait apparaître le signal comme la corrélation entre la forme temporelle  $c(r, t)$ , présentée à l'entrée du corrélateur, et la référence  $b(r, t)$ , enregistrée dans la mémoire PSHB.

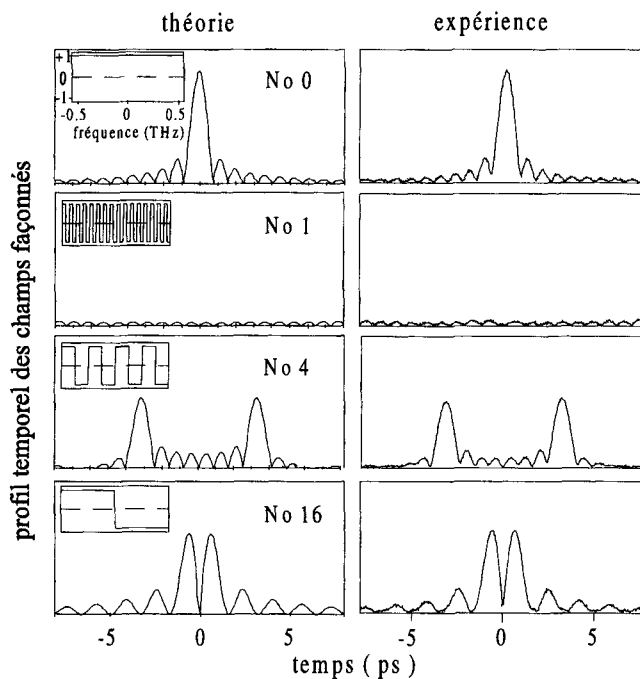
Le matériau PSHB travaillant comme un processeur optique se distingue par une bande passante instantanée qui, dans les ions de terres rares, dépasse 100 GHz avec un produit temps  $\times$  bande passante supérieur à  $10^6$  et, dans les matériaux organiques, dépasse 4 THz avec un produit temps  $\times$  bande passante de l'ordre de  $10^4$ . En outre les dimensions spatiales du processeur restent disponibles, par exemple pour combiner la sélectivité angulaire au traitement temporel.



**Figure 10** : Principe du corrélateur de trames. À gauche, corrélateur spatial conventionnel : la transformée de Fourier de l'image d'entrée bidimensionnelle  $image_2(x,y)$  est diffractée sur le hologramme de Fourier de l'image de référence; le signal de corrélation est détecté sur une matrice CCD. À droite la porteuse optique, modulée par la trame d'entrée  $trame_1(t)$ , est diffractée sur le hologramme spectral de la trame de référence. Le signal de corrélation est analysé dans le temps à l'aide d'un détecteur ponctuel rapide. La durée de chaque trame est limitée à  $\Gamma_{hom}^{-1}$  et la durée d'un pixel est au moins égale à  $\Gamma_{inh}^{-1}$ .

Proposée par Kelvin Wagner de l'Université du Colorado [21] dans le domaine de la corrélation d'images, une architecture met ces performances en évidence. Le principe en est présenté sur la figure 10. Dans un corrélateur optique conventionnel il est en général nécessaire de convertir un signal vidéo en image bidimensionnelle avant de l'adresser à un composeur d'image puis de convertir à nouveau en signal vidéo l'image de corrélation recueillie sur un détecteur bidimensionnel. Un corrélateur PSHB fait l'économie de ces deux opérations. La trame vidéo de l'image d'entrée reste sous la forme d'une séquence d'impulsions. Transformée en train d'impulsions lumineuses, elle est corrélée à la forme de référence enregistrée dans le matériau PSHB. Le signal de corrélation apparaît lui-même comme une séquence d'impulsions que reçoit un détecteur ponctuel. Compte tenu des caractéristiques des matériaux PSHB, un tel dispositif ne peut pas traiter les signaux vidéo standard basse fréquence. En revanche il pourrait faire merveille à des cadences d'analyse très élevées de plusieurs milliers d'images par seconde. Par ailleurs, plusieurs signaux de corrélation, correspondant à des formes de référence différentes, pourraient être détectés simultanément sur différents détecteurs ponctuels puisque les propriétés de parallélisme spatial restent disponibles.

Lorsque le matériau actif est composé d'ions de terre rare, les bandes passantes et les temps caractéristiques restent compatibles avec les performances des modulateurs acousto-optiques ou électro-optiques et des photodétecteurs disponibles [22]. Il en va différemment dans le domaine des bandes passantes de l'ordre du THz, caractéristique des colorants organiques dispersés dans des polymères. Ces très hautes fréquences restent hors d'atteinte des dispositifs électroniques. Pour réaliser une démonstration expérimentale de reconnaissance de forme temporelle par corrélation dans ce domaine de fréquences nous avons été confrontés au triple défi d'inscrire une « forme » cohérente de plusieurs THz de largeur dans le spectre d'une impulsion lumineuse, de graver cette forme sans distorsion dans le matériau sélectif en fréquence, puis de détecter le pic d'intercorrélation avec une résolution subpicoseconde.

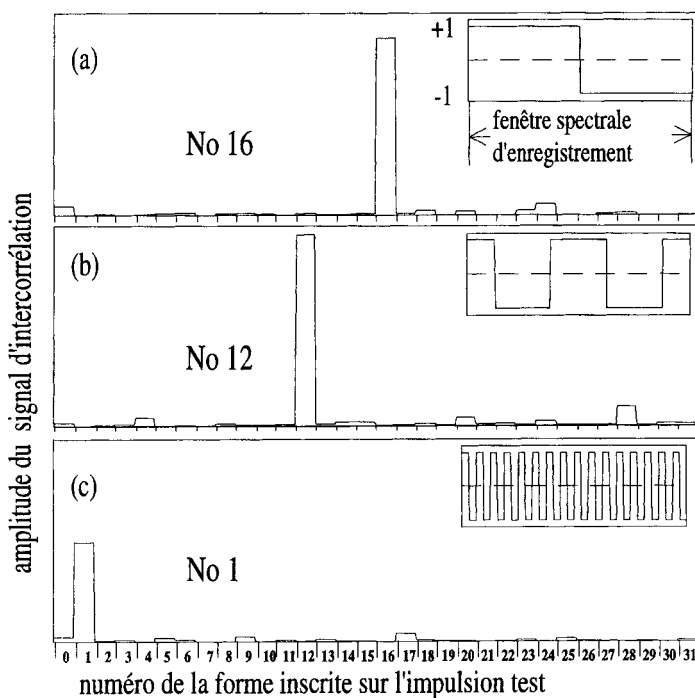


**Figure 11** : Profils temporels, théoriques et expérimentaux, du champ façonné spectralement. Les numéros repèrent les formes spectrales (représentées en insert) choisies dans la famille des 32 fonctions orthogonales.

Dans notre démonstration, nous définissons une famille de 32 facteurs de phase spectraux orthogonaux qui constituent les formes à reconnaître. L'une quelconque de ces formes est enregistrée par holographie spectro-temporelle dans le matériau mémoire. Les 32 formes sont ensuite successivement inscrites sur des impulsions tests qui sont dirigées sur l'échantillon. Le signal diffracté doit présenter un pic d'intercorrélation lorsque la forme spectro-temporelle dont il est chargé coïncide avec le motif de référence enregistré dans la mémoire optique [23]. La figure 11 illustre le réglage final du dispositif de façonnage spectral des impulsions lumineuses et du dispositif de détection interférométrique qui nous donne la résolution subpicoseconde requise. Les graphes de gauche représentent le profil temporel inscrit en théorie sur le spectre des impulsions lumineuses. En insert sont tracées les formes spectrales

correspondantes. Les graphes de droite représentent ce profil temporel, analysé expérimentalement.

Ce réglage effectué, nous avons pu mener à bien l'expérience de reconnaissance de forme proprement dite. Une forme de référence est d'abord gravée dans le matériau mémoire. Les 32 formes orthogonales sont ensuite successivement inscrites sur le spectre de l'impulsion d'entrée. Pour chacune des impulsions d'entrée ainsi façonnées, on mesure l'amplitude du champ diffracté à l'instant fixe  $t = 0$ , qui correspond à la position du pic d'intercorrélation. Ces séries d'amplitudes dessinent les profils présentés sur la figure 12. Différentes formes ont été utilisées comme références enregistrées dans le matériau mémoire. Le rapport entre le pic de corrélation vraie, observé lorsque l'impulsion d'entrée coïncide avec la référence, et le signal de fausse corrélation, obtenu dans le cas contraire, ne semble pas dépendre de la complexité de la forme spectrale enregistrée.



**Figure 12 :** Dans un premier temps on grave dans le matériau mémoire une forme de référence (n° 1, 12 ou 16 sur la figure). Les 32 formes orthogonales sont ensuite successivement chargées dans le spectre d'une impulsion. La figure représente l'amplitude du signal détecté en réponse à chacune de ces interrogations.

Un corrélateur en matériau PSHB organique pourrait permettre le diagnostic de signaux sub-picoseconde. La procédure de reconnaissance de forme prendrait tout son sens si on pouvait comparer simultanément l'impulsion d'entrée à un ensemble de filtres de référence enregistrés. Ceci est possible à condition d'associer une direction de diffraction spécifique à chaque forme enregistrée, tout comme on associe une direction de diffraction particulière à chaque fréquence dans l'analyseur spectral évoqué dans le paragraphe 4. Le diagnostic d'une forme temporelle serait alors effectué instantanément, et en un seul tir.

## 7. CONCLUSION

Plutôt qu'une revue des travaux expérimentaux déjà accomplis sur le « hole burning » spectral et ses applications au traitement optique de données, ce bref exposé présente un point de vue peut-être partial sur les difficultés rencontrées et les directions les plus convaincantes aux yeux de l'auteur. L'accent a été mis sur certaines recherches, souvent encore à l'état de projet, mais qui semblent intégrer les promesses de l'enregistrement sélectif en fréquence et les limitations des matériaux employés. Malgré les premiers succès rencontrés dans la réalisation de mémoires optiques rapides, les progrès continus des technologies plus conventionnelles compromettent le passage effectif à l'application. Le traitement optoélectronique du signal ouvre sans doute de meilleures perspectives. Les processeurs potentiels devront probablement tirer le meilleur parti de la combinaison des aspects spatiaux et spectraux des processus mis en jeu. Un fort couplage avec les spécialistes des architectures optoélectroniques semble indispensable.

## Références

- [1] Mazurenko Yu.T., *Appl. Phys. B* **50** (1990) 101-114; Rakuljic G.A., Lerya V. et Yariv A., *Opt. Lett.* **17** (1992) 1471-73; Rätsep M., Tian M., Grelet F., Le Gouët J.-L., Sigel C. et Roblin M.-L., *Opt. Lett.* **21** (1996) 1292-1294.
- [2] Mossberg T., *Opt. Lett.* **7** (1982) 77-79.
- [3] Fujita M., Nakatsuka H., Nakanishi H. et Matsuoka M., *Phys. Rev. Lett.* **42** (1979) 974-977; Mossberg T.W., Flusberg A., Kachru R. et Hartmann S.R., *Phys. Rev. Lett.* **42** (1979) 1665-1669; Hesselink W.H. et Wiersma D.A., *Phys. Rev. Lett.* **43** (1979) 1991-1994.
- [4] Hänsch T.W., Shahin I.S. et Schawlow A.L., *Phys. Rev. Lett.* **27** (1971) 707-710; *Nature* (Phys. Sci.) London, **235** (1972) 63-65.
- [5] Jessop P.E. et Szabo A., *Opt. Commun.* **33** (1980) 301-302; Jessop P.E., Muramoto T. et Szabo A., *Phys. Rev. B* **21** (1980) 926-936.
- [6] Szabo A., *Phys. Rev. B* **11** (1975) 4512-4517
- [7] Gorkhovskii A.A., Kaarli R.K. et Rebane L.A., *JETP Lett.* **20** (1974) 216-218; Kharlamov B.M., Personov R.I. et Bykovskaya L.A., *Opt. Commun.* **12** (1974) 191-193.
- [8] Thijssen H.P.H., Van den Berg R.E. et Völker S., *Chem. Phys. Lett.* **103** (1983) 93-98.
- [9] Equall R.W., Sun Y., Cone R.L. et Macfarlane R., *Phys. Rev. Lett.* **72** (1994) 2179-2182.
- [10] Rebane A., Reiss D., Renge I. et Wild Urs P., *Chem. Phys. Lett.* **262** (1996) 155-160.
- [11] Yano R., Mitsunaga M. et Uesugi N., *J. Opt. Soc. Am. B* **9** (1992) 992-997.
- [12] Macfarlane R., *Opt. Lett.* **18** (1993) 829-31, 1958-1960.
- [13] Mitsunaga M., Uesugi N., Sasaki H. et Karaki K., *Opt. Lett.* **19** (1994) 752-756.
- [14] Cone R., Proceedings, The frontiers of photospectral hole burning, Big Sky, Montana, mars 1997.
- [15] Kohler B., Bernet S., Renn A. et Wild U., *Opt. Lett.* **18** (1993) 2144-46; Maniloff E.S., Altner S.B., Bernet S., Graf F.R., Renn A. et Wild U., *Appl. Opt.* **34** (1995) 4140-4148.
- [16] Galaup J.-P., Grelet F., Le Gouët J.-L., Dolfi D. et Huignard, J.-P. demande de brevet FR 98 02 626.
- [17] Lin H., Wang T. et Mossberg T. W., *Opt. Lett.* **20** (1995) 1658-1660.
- [18] Babbitt W.R. et Mossberg T.W., *J. Opt. Soc. Am. B* **11** (1994) 1948-1953.
- [19] Goodman J., Introduction à l'optique de Fourier et à l'holographie (Masson, Paris, 1972).

- [20] Rebane A., *Opt. Commun.* **67** (1988) 301-304.
- [21] Anderson K. et Wagner K.H., postdeadline paper, Optics in Computing, Lake Tahoe, Nevada, mars 1997.
- [22] Zhu M., Babbitt W.R. et Jefferson C.M., *Opt. Lett.* **20** (1995) 2514-2516.
- [23] Lorgeré I., Rätsep M., Le Gouët J.-L., Grelet F., Tian M., Débarre A. et Tchénio P., *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28** (1995) L565-L570; Rätsep M., Tian M., Lorgeré I., Grelet F. et Le Gouët J.-L., *Opt. Lett.* **21** (1996) 83-85; Le Gouët J.-L., Grelet F., Lorgeré I., Rätsep M., Tian M., Roblin M.-L. et Sigel C., *Mol. Cryst. Liq. Crystal* **291** (1996) 295-302.



## **Correction dynamique des distorsions de faisceaux laser par interactions non linéaires**

A. Brignon

*Laboratoire Central de Recherches, Thomson-CSF, Domaine de Corbeville,  
91404 Orsay cedex, France*

**Résumé:** Les lasers solides présentent des avantages relatifs à leur compacité, facilité d'utilisation et à leur durée de vie. Cependant, une partie importante de l'énergie de pompage se dissipe sous forme de chaleur provoquant des distorsions de phase importantes dans le milieu laser. Cet effet indésirable dégrade la qualité spatiale du faisceau émis et peut abaisser considérablement la luminance du laser. Les techniques de conjugaison de phase par interactions non-linéaires permettent de corriger ces distorsions de façon adaptative et dynamique. Après avoir examiné le principe de la conjugaison de phase, nous passons en revue les principales interactions non-linéaires permettant d'obtenir cette fonction. Nous étudions en particulier la diffusion Brillouin stimulée, l'effet photoréfractif et les mélanges d'ondes dans le milieu laser lui-même.

### **1. INTRODUCTION**

Pour de nombreuses applications, il est indispensable de réaliser des sources lasers à haute énergie ou à puissance moyenne élevée conservant toutefois une très bonne qualité de faisceau (limité par la diffraction). De telles sources utilisent généralement des amplificateurs solides. S'ils présentent des avantages relatifs à leur compacité, facilité d'utilisation et à leur durée de vie, ils dégradent cependant les qualités spatiales de la lumière. En effet, la chaleur dissipée lors du pompage du milieu laser induit un gradient thermique dans ce dernier. Ce gradient thermique induit à son tour un gradient d'indice qui distord spatialement la phase de l'onde amplifiée.

Les sources lasers qui fonctionnent à fortes puissances moyennes doivent donc inclure des éléments optiques pour corriger ces distorsions. Pour cela, des lentilles ou des miroirs déformables peuvent être utilisés. Mais ces méthodes sont adaptées à des déformations constantes ou ne variant que faiblement dans le temps. Le gradient de température dépendant des conditions d'utilisation (fréquence de répétition, énergie de pompage ...), les déformations induites sur le faisceau en dépendent donc également. Or, pour de nombreuses applications, il est souhaitable de conserver des faisceaux de grande qualité de front d'onde quel que soit le régime d'utilisation. De plus, les distorsions induites ne sont pas toujours parfaitement sphériques. Toutes ces contraintes imposent donc une correction dynamique dans le temps, mais également adaptative spatialement. Une méthode particulièrement adaptée consiste à utiliser des miroirs non-linéaires à conjugaison de phase. De tels miroirs renvoient une onde dont la phase en tout point est une copie inversée de celle

de l'onde incidente. Ainsi, l'association d'un amplificateur et d'un miroir à conjugaison de phase permet d'amplifier une onde laser sans en modifier la divergence et ceci quelles que soient les distorsions de phase introduites par l'amplificateur.

Cette fonction de conjugaison de phase peut être obtenue par des interactions d'ondes optiques dans les matériaux non-linéaires dont, d'une façon générale, l'indice, l'absorption ou le gain changent avec l'intensité lumineuse [1]. Ces propriétés non-linéaires se rencontrent dans des matériaux possédant une susceptibilité du troisième ordre,  $\chi^{(3)}$ , ou d'ordre supérieur non nul. C'est le cas notamment des miroirs non-linéaires utilisant la diffusion Brillouin stimulée. Ce type de miroir s'est déjà montré très efficace pour compenser les distorsions d'amplificateurs lasers de puissance fonctionnant à la limite de diffraction avec une très grande stabilité de pointé du faisceau. Ces miroirs non-linéaires connus depuis plus d'une vingtaine d'années, font maintenant partie intégrante de lasers commerciaux. Les miroirs Brillouins efficaces utilisent en général des milieux liquides ou gazeux, ce qui peut être gênant pour certaines applications.

Parmi les matériaux solides envisageables, les cristaux photoréfractifs constituent une solution intéressante. Les miroirs à conjugaison de phase réalisés avec ces cristaux permettent de remplacer les cellules Brillouin de façon avantageuse, notamment en terme de compacité et de facilité d'utilisation. Par ailleurs, dans les sources lasers où un miroir à conjugaison de phase ne peut être utilisé (régime continu, milieux lasers à faible gain, ...), le "nettoyage de faisceau" par mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif est une alternative intéressante pour améliorer la qualité spatiale du faisceau.

Une autre idée consiste à utiliser le milieu laser lui-même comme milieu non-linéaire. Le mécanisme physique mis en jeu est la saturation du gain laser. Lorsque plusieurs ondes interfèrent dans le milieu laser, le gain du milieu au niveau des zones claires des franges d'interférence sera différent de celui situé dans les zones sombres, créant ainsi des réseaux de gain (ou réseaux d'amplitude). En utilisant, par exemple, une interaction dite de mélange à quatre ondes, la diffraction des ondes sur ces réseaux peut engendrer un faisceau conjugué en phase. Cette technique présente de très nombreux avantages et permet notamment la réalisation de sources lasers tout à l'état solide autocorrigées de leurs distorsions de phase.

## 2. DISTORSIONS SPATIALES INDUITES DANS UN MILIEU LASER SOLIDE

Les distorsions d'un milieu amplificateur solide proviennent principalement d'effets thermiques induits lors du pompage optique par lampes flash ou diodes lasers par exemple [2-4]. En effet, l'énergie de la pompe n'est que partiellement transférée au niveau haut de la transition laser. Une fraction, qui peut être très importante, de la puissance fournie par la pompe est alors transformée en chaleur. Une partie de cette chaleur peut être partiellement évacuée en périphérie du milieu par un circuit de refroidissement (circulation d'eau, circuit refroidisseur à effet Peltier ...). Cependant, la chaleur restante induit des changements locaux d'indice dans le milieu laser provoquant des distorsions de phase sur les ondes se propageant dans le milieu.

Ces distorsions dues aux effets thermiques apparaissent pour des amplificateurs fonctionnant à des fréquences de répétition plus grandes que l'inverse du temps de relaxation thermique  $1/\tau_{th}$  du milieu à gain. Pour un amplificateur du type  $Nd^{3+}$ :YAG on a [2, 5]

$$\tau_{th} = \frac{C\rho}{4K_T} r_0^2 \quad (1)$$

où  $C$  est la chaleur spécifique,  $\rho$  la densité et  $K_T$  la conductivité thermique.  $r_0$  est le



rayon du barreau amplificateur. En prenant les valeurs suivantes pour un amplificateur Nd:YAG [2, 6]:  $C = 0,59 \text{ W.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $\rho = 4,56 \text{ g.cm}^{-3}$ ,  $K_T = 0,12 \text{ W.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et un rayon typique de  $r_0 = 3,5 \text{ mm}$ , on trouve un temps de relaxation thermique de 0,7 secondes. Ainsi les distorsions thermiques atteignent un état stationnaire à des taux de répétitions supérieures à quelques Hertz.

Nous considérons un barreau amplificateur de longueur  $L$ . Nous supposons que le milieu s'échauffe uniformément sous l'action de lampes flash et que  $L \gg r_0$  de telle sorte que la répartition de la température est uniquement radiale. Le système de refroidissement périphérique du barreau maintient une température constante  $T(r_0)$  à la surface du barreau. L'équation à une dimension de conduction de la chaleur se met alors sous la forme [2]

$$\frac{d^2T}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dT}{dr} + \frac{4\Delta T}{r_0^2} = 0 \quad (2a)$$

$$\Delta T = \frac{\eta_T P_{pompe}}{4\pi L K_T} \quad (2b)$$

où  $P_{pompe}$  est la puissance électrique moyenne des lampes flash et  $\Delta T$  est la différence de température maximale entre le centre et la surface du barreau.  $\eta_T$  est la fraction de la pompe transformée en chaleur et est typiquement égale à  $\sim 3 - 5 \%$ . En régime stationnaire, la température atteint, en tout point du barreau, une valeur définie par

$$T(r) = T(r_0) + \Delta T \left[ 1 - \left( \frac{r}{r_0} \right)^2 \right] \quad (3)$$

Il s'établit donc un gradient de température dans la section transverse du barreau. Tout d'abord ce gradient donne lieu à une contrainte mécanique. En effet, la partie la plus chaude, au centre, voit son expansion limitée par la partie périphérique, plus froide. Cette contrainte va induire de la biréfringence par effet photo-élastique. Cet effet va provoquer la dépolarisation de l'onde amplifiée. Par exemple, une onde polarisée linéairement dans le plan vertical, voit environ 20 % de son énergie se transférer sur la composante horizontale après un passage dans un amplificateur Nd:YAG de 11,5 cm de long et fonctionnant à un cadence de 30 Hz.

Le gradient de température est également à l'origine de l'effet de lentille thermique. En effet, l'indice dans le barreau peut se mettre sous la forme

$$n(r) = n_0 + \Delta n_T(r) + \Delta n_\epsilon(r) \quad (4)$$

où  $\Delta n_\epsilon$  correspond aux variations d'indice engendrées par l'effet photo-élastique d'origine thermique. Sous l'effet de  $\Delta n_\epsilon$ , le barreau agit comme une lentille bifocale avec une focale différente pour les composantes de polarisations radiale et tangentielle.  $\Delta n_T$  est directement relié au gradient de température radial dans le barreau. Cet effet est le plus important puisqu'il intervient à 90 % dans la variation d'indice.  $\Delta n_T$  est donné par

$$\Delta n_T(r) = [T(r) - T(0)] \frac{\partial n}{\partial T} = -\Delta T \left( \frac{r}{r_0} \right)^2 \frac{\partial n}{\partial T} \quad (5)$$

où  $\partial n / \partial T \simeq 8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour Nd:YAG. Il est utile d'introduire un indice non-linéaire thermique  $n_2$  tel que  $\Delta n_T(r) = -1/2 n_2 r^2$ .  $n_2$  peut être mis sous la forme [5]

$$n_2 = \eta_T P_{pompe} C_0 \quad (6)$$

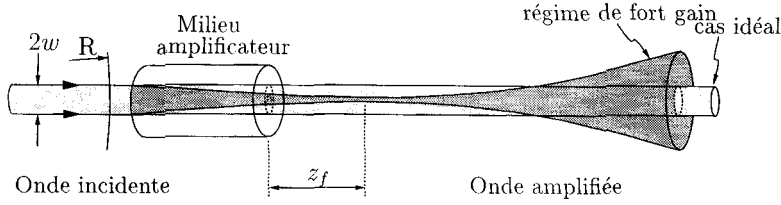


Figure 1: Représentation schématique de l'effet de lentille thermique dans un amplificateur laser solide.

$C_0$  étant une constante donnée par

$$C_0 = \frac{1}{2\pi r_0^2 L K_T} \frac{\partial n}{\partial T} \quad (7)$$

Pour un barreau de Nd:YAG de longueur  $L = 11,5$  cm,  $C_0 = 7,5 \times 10^{-3} \text{ kW}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ . Pour un faisceau incident de courbure  $\mathcal{R}$  et de diamètre  $2w$  à l'entrée du barreau ( $z = 0$ ), le changement de diamètre du faisceau le long de l'axe de propagation  $z$  à l'intérieur du milieu, peut être calculé à partir de la matrice de transfert paraxiale suivante [5, 7]

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\left(\sqrt{\frac{n_2}{n_0}} z\right) & \frac{1}{n_0} \sqrt{\frac{n_0}{n_2}} \sin\left(\sqrt{\frac{n_2}{n_0}} z\right) \\ -n_0 \sqrt{\frac{n_2}{n_0}} \sin\left(\sqrt{\frac{n_2}{n_0}} z\right) & \cos\left(\sqrt{\frac{n_2}{n_0}} z\right) \end{pmatrix} \quad (8)$$

puis, après le barreau, en considérant la matrice de transfert de propagation libre. Le faisceau subit un effet de focalisation, le milieu amplificateur se comportant alors comme une lentille convergente comme la montre la Figure 1.

La distance  $z_f$  entre la sortie du barreau et le point de focalisation de l'onde est donnée par

$$z_f = \frac{-w^4 (B + A\mathcal{R})(D + C\mathcal{R}) - (\lambda_0/\pi)^2 DB\mathcal{R}^2}{w^4 (D + C\mathcal{R})^2 + (\lambda_0/\pi)^2 D^2\mathcal{R}^2} \quad (9)$$

On peut simplifier la matrice donnée par l'Eq. (8) en considérant que  $n_2$  est petit par rapport à  $n_0$ . Ainsi la matrice de transfert de l'Eq. (8) se réduit à

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & z/n_0 \\ -n_2 z & 1 \end{pmatrix} \quad (10)$$

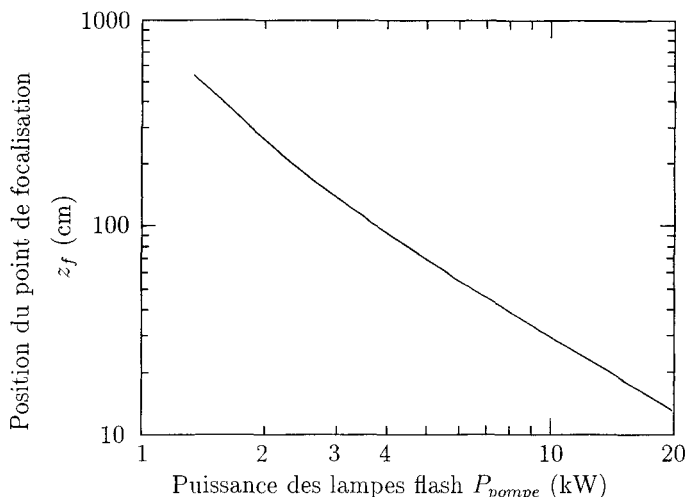
Et dans l'approximation où la longueur d'onde  $\lambda_0$  est suffisamment petite,  $z_f$  peut se simplifier de la façon suivante

$$z_f \simeq \frac{L + n_0 \mathcal{R}}{n_0 (Ln_2 \mathcal{R} - 1)} \quad (11)$$

Finalement dans l'approximation où  $\mathcal{R} \gg z_f$  et  $\mathcal{R} \gg L/n_0$ , le barreau laser peut être considéré comme une lentille de focale

$$f \simeq z_f \simeq \frac{1}{Ln_2} \quad (12)$$

La Figure 2 montre l'effet de la lentille thermique en fonction de la puissance électrique  $P_{pompe}$  des lampes flash. L'onde amplifiée se focalise d'autant plus près du barreau que



**Figure 2:** Mise en évidence de l'effet de lentille thermique: distance  $z_f$  entre le point de focalisation de l'onde amplifiée et la sortie du barreau en fonction de la puissance électrique moyenne des lampes flash. La courbe a été tracée avec les paramètres suivants:  $\eta_T = 4\%$ ,  $L = 11,5$  cm,  $\mathcal{R} = 3$  m,  $w = 2$  mm et  $\lambda_0 = 1,06$   $\mu\text{m}$ .

$P_{pompe}$  est grand. Il apparaît clairement que les effets thermiques distordent fortement le barreau laser puisque ce dernier peut devenir équivalent à une lentille de focale  $f \sim 10$  cm. Pour ces calculs, nous avons considéré l'expression complète de  $z_f$  donnée par l'Eq. (9).

### 3. LA CONJUGAISON DE PHASE

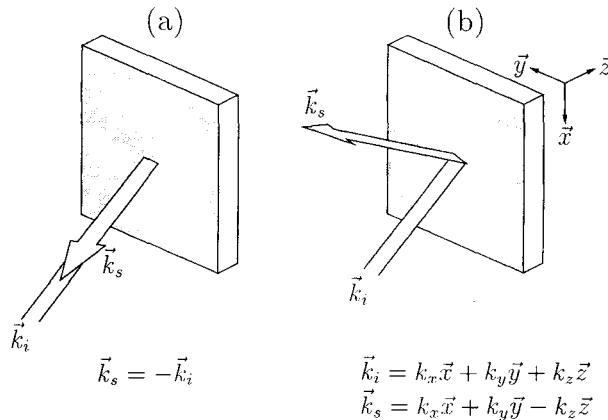
#### 3.1 Principe

L'origine de la reconstruction de front d'onde optique remonte aux études de D. Gabor, en 1948, qui aboutirent à l'invention de l'holographie [8, 9]. Cette technique permet d'enregistrer sur un hologramme (du grec "holos", entier et "gram", message) une image qui peut ensuite être relue par un faisceau lumineux. Toutes les informations optiques de l'image sont alors transférées sur le front d'onde du faisceau. Cependant, l'holographie présente le défaut d'être un processus statique. L'inscription et la relecture d'un hologramme sont en effet deux étapes bien distinctes et souvent longues à mettre en œuvre. Ainsi un hologramme donné ne peut pas corriger une onde se propageant dans des milieux (tels que l'atmosphère, les fibres optiques, les milieux amplificateurs ...) dont les distorsions peuvent varier dans le temps.

C'est en 1972 que B. Ya. Zel'dovich et ses collègues de l'Institut de Physique Lebedev, à Moscou, montrèrent expérimentalement qu'une onde "renversée temporellement" pouvait aussi être obtenue en réfléchissant un faisceau distordu sur un miroir Brillouin [10]. O. Y. Nosach et al. sont crédités de la première démonstration de correction de front d'onde utilisant la diffusion Brillouin stimulée [11]. Ils purent par cette technique diminuer la divergence d'un amplificateur laser à rubis. Ces auteurs introduisirent dans la littérature

la notion d'“inversion de front d'onde”. Ce phénomène fut appelé “Conjugaison de Phase Optique”. Cette expression a commencé à apparaître dans la littérature vers 1977/78, en connexion avec les études sur les processus non-linéaires tels que le mélange à deux ondes et le mélange à quatre ondes dégénéré [12-17]. L'analogie du mélange à quatre ondes avec l'holographie dynamique (ou en temps réel) fut alors rapidement établie. A cette époque, il fut également reconnu que le processus invoqué pour expliquer l'“holographie dynamique” était le même que l'“inversion de front d'onde” introduit par les Russes.

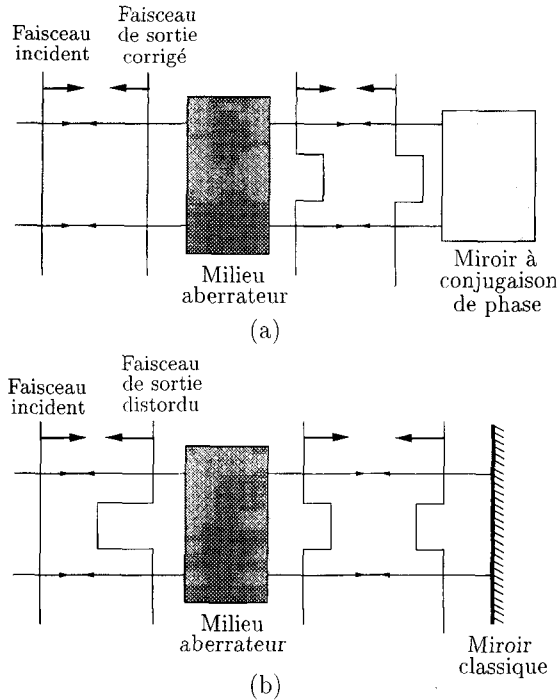
D'une façon générale, la conjugaison de phase optique permet de renverser la direction de propagation et la phase d'une onde optique [18-20]. Ce procédé peut être vu comme un miroir possédant des propriétés très particulières. Tout d'abord, un faisceau qui se réfléchit sur un miroir à conjugaison de phase, subit le même trajet que le trajet incident et ceci quel que soit l'angle du faisceau incident. La Figure 3(a) illustre cette propriété. Le miroir à conjugaison de phase produit l'inversion du vecteur  $\vec{k}_i$ , de telle sorte que le



**Figure 3:** Comparaison de la réflexion d'une onde lumineuse sur (a) un miroir à conjugaison de phase et sur (b) un miroir classique.

faisceau réfléchi retourne sur le trajet du faisceau incident et ceci indépendamment de l'orientation du miroir à conjugaison de phase. En comparaison [Fig. 3(b)], un miroir plan classique change le signe de la composante du vecteur d'onde  $\vec{k}_i$  normale au miroir alors que la composante tangentielle reste inchangée. Ainsi un faisceau incident peut être redirigé de façon aléatoire en tournant le miroir.

Outre le renversement du vecteur d'onde, le miroir à conjugaison de phase renverse également la phase de l'onde. Cette propriété s'avère être extrêmement utile pour corriger des fronts d'onde optique ayant subi des distorsions de phase. Comme le montre la Figure 4(a), l'onde plane incidente traverse un milieu aberrateur, une lentille divergente par exemple. Après réflexion sur un miroir à conjugaison de phase, le centre du faisceau voit se transformer son avance de phase en retard (inversion de la phase). Ce retard va alors être annulé par le deuxième passage dans le milieu aberrateur. A la sortie de ce système l'onde retrouve sa structure d'onde plane et est ainsi complètement corrigée en phase. En comparaison, après réflexion sur un miroir classique [Fig. 4(b)], le centre du faisceau conserve son avance de phase. Un deuxième passage dans le milieu aberrateur va alors doubler les distorsions introduites lors du premier passage. De façon plus formelle, si l'on considère une onde optique se propageant dans la direction de l'axe  $z$ , son champ



**Figure 4:** (a) Correction des distorsions de phase par un miroir à conjugaison de phase. (b) Doublement des distorsions de phase lorsqu'un miroir plan classique est utilisé.

électrique peut se mettre sous la forme

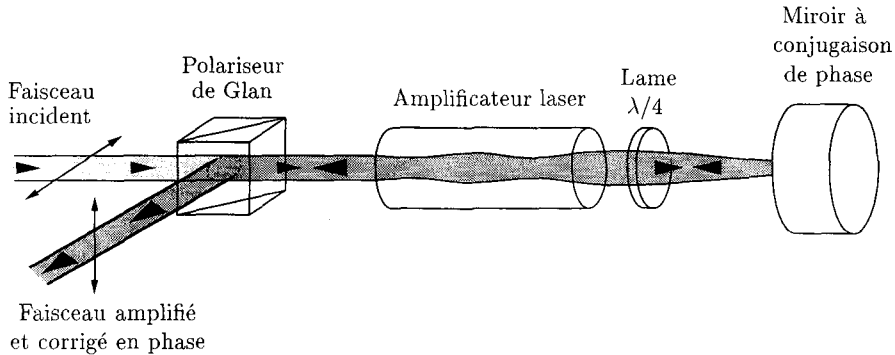
$$\vec{E} = A\vec{e}\cos(\omega t - kz - \phi) \quad (13)$$

où  $\omega$  est la pulsation de l'onde,  $k$  l'amplitude du vecteur d'onde,  $A$  l'amplitude du champ,  $\vec{e}$  le vecteur unitaire définissant la polarisation de l'onde et  $\phi$  sa phase. Nous avons vu qu'un miroir à conjugaison de phase change le signe du vecteur  $\vec{k}$  et celui de la phase  $\phi$ . Il en résulte que le champ de l'onde conjuguée est donnée par

$$\vec{E}_c \propto A\vec{e}_c \cos(\omega t + kz + \phi) \quad (14)$$

En fait l'expression de l'onde conjuguée peut directement s'obtenir à partir de l'Eq. (13) en changeant le signe de la variable de temps  $t$ . C'est pour cette raison que l'on parle souvent de renversement temporel lorsque l'on décrit le phénomène de conjugaison de phase.

Les applications qui découlent des propriétés des miroirs à conjugaison de phase sont nombreuses. Ainsi un faisceau de bonne qualité qui traverse une atmosphère turbulente peut décrire en sens inverse la même trajectoire s'il a été réfléchi par un de ces miroirs. Lorsque le faisceau revient à sa source, il n'est absolument pas déformé. De tels miroirs peuvent également être utilisés pour suivre la trace d'objets en mouvement, pour traiter



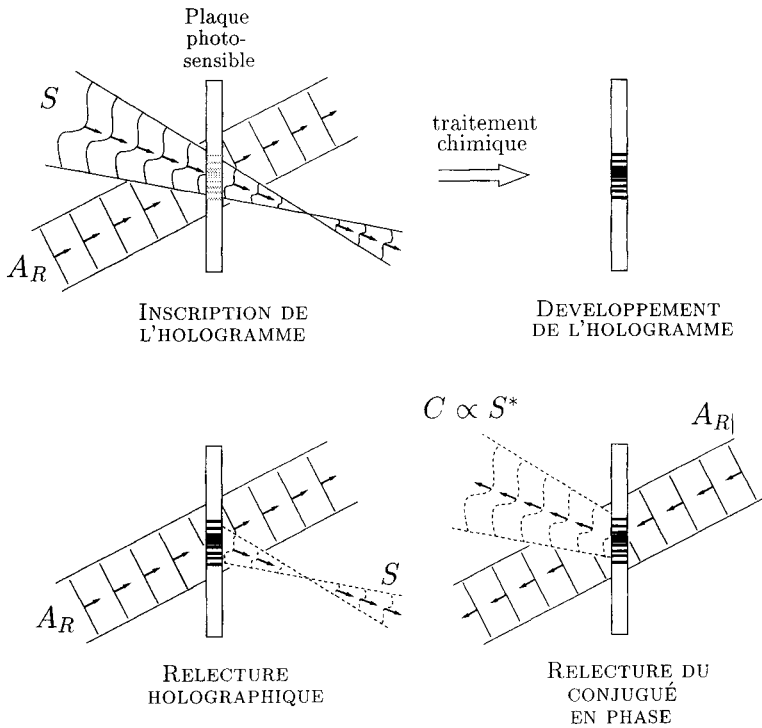
**Figure 5:** Configuration MOPA (“Master Oscillator-Power Amplifier”) en double passage avec un miroir à conjugaison de phase.

des images, en interférométrie, dans les gyroscopes lasers, dans les systèmes de communication par fibres ou par satellites, et en lithographie [18-21].

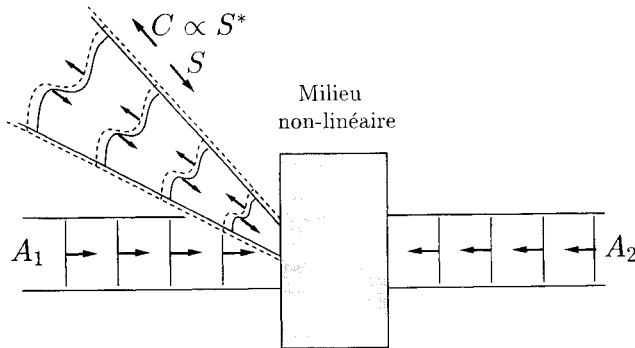
Une des applications de la conjugaison de phase qui est certainement la plus étudiée et la plus prometteuse, est la correction d’une onde lumineuse se propageant dans un amplificateur laser. A cet effet, on utilise souvent le montage MOPA (de l’anglais “Master Oscillator-Power Amplifier”) en double passage avec un miroir à conjugaison de phase, comme le montre la Figure 5 [22,23]. Ce montage utilise un oscillateur maître (non représenté sur la figure) délivrant un faisceau de faible énergie mais de très bonne qualité spatiale (typiquement limité par diffraction). Afin d’obtenir les fortes énergies lumineuses souhaitées, ce faisceau subit un passage dans un milieu laser à fort gain. Comme nous l’avons montré au Paragraphe précédent, la qualité du faisceau amplifié est dégradée par les distorsions de phase du milieu. Par réflexion sur le miroir à conjugaison de phase et un deuxième passage dans l’amplificateur, le faisceau finalement extrait est corrigé en phase et son front d’onde présente toutes les caractéristiques de celui de l’onde incidente. Une lame quart d’onde ( $\lambda/4$ ) est généralement utilisée pour tourner de  $90^\circ$  la polarisation de l’onde amplifiée de telle sorte qu’elle puisse être extraite à l’aide d’un cube séparateur de polarisation (polariseur de Glan). De plus, pour corriger l’effet de dépolarisation induit thermiquement, ce montage peut être perfectionné en remplaçant la lame quart d’onde soit par deux lames demi onde montées en série avec un décalage de  $45^\circ$  entre leurs axes neutres, soit par un rotateur de Faraday de  $45^\circ$  [2, 24].

### 3.2 Les miroirs à conjugaison de phase

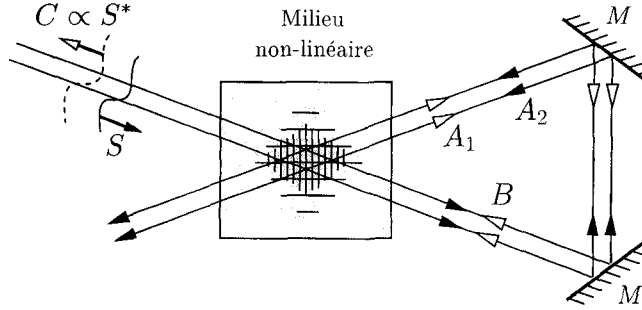
Le premier type de miroir à conjugaison de phase utilise le mélange à quatre ondes dégénéré [17]. Ce mécanisme non-linéaire peut se comprendre facilement par analogie avec l’holographie dont le principe est rappelé Figure 6. Dans un premier temps, un faisceau signal d’amplitude  $S$  contenant des informations de phase interagit, au niveau d’une plaque photosensible, avec une onde plane de référence d’amplitude  $A_R$ . Les deux faisceaux étant cohérents, il va résulter de leur interférence, une répartition de la lumière qui dépend de la différence de leur phase relative en tout point de l’espace. Via un effet photochimique et après développement de la plaque, cette distribution d’intensité va se trouver transposée sous forme de variation de l’indice de réfraction (créant ainsi un hologramme de phase)



**Figure 6:** Principe de l'holographie. L'enregistrement de l'hologramme se fait entre une onde plane de référence  $A_R$  et un signal  $S$ . Après développement, l'hologramme peut être relu soit avec le faisceau de référence  $A_R$  (relecture holographique), soit avec une seconde onde plane de référence d'amplitude  $A_{R|}$  contra-propagative par rapport à  $A_R$ . Dans ce dernier cas, l'onde conjuguée en phase de  $S$  est obtenue.



**Figure 7:** Miroir à conjugaison de phase utilisant le mélange à quatre ondes dégénéré dans un milieu non-linéaire dont l'indice complexe varie avec l'intensité.



**Figure 8:** Miroir à conjugaison de phase auto-pompé fondé sur le principe du mélange à quatre ondes. La boucle de rétro-réaction est formée à l'aide de deux miroirs plans ( $M$ ).

ou de variation de l'absorption (hologramme d'amplitude). C'est le processus d'écriture de l'hologramme. Dans un deuxième temps, l'hologramme peut être relu soit avec le faisceau de référence  $A_R$  (relecture holographique), soit avec une seconde onde plane de référence d'amplitude  $A_{Rl}$  contra-propagative par rapport à  $A_R$ . Dans ce dernier cas, l'onde conjuguée en phase d'amplitude  $C \propto S^*$  est obtenue. Dans le mélange à quatre ondes, toutes ces étapes se réalisent simultanément de façon dynamique et adaptative comme le montre la Figure 7. Le milieu non-linéaire dont l'indice varie avec l'intensité lumineuse tient lieu de support holographique. Les faisceaux pompes  $A_1$  et  $A_2$  du miroir à conjugaison de phase jouent le rôle des faisceaux de références  $A_R$  et  $A_{Rl}$  de l'holographie classique. De plus, l'hologramme dynamique inscrit à un temps donné n'est pas irréversible. Il peut être effacé en éclairant uniformément le milieu non-linéaire ou en inscrivant un nouvel hologramme.

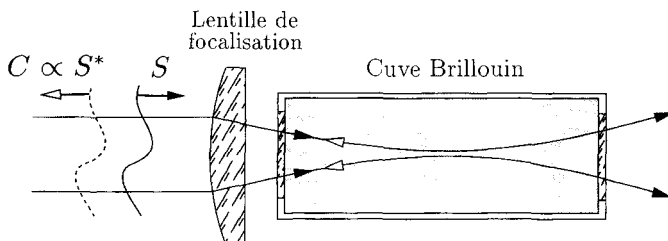
Le deuxième type de miroir à conjugaison de phase est également fondé sur le mélange à quatre ondes mais utilise la structure dite auto-pompée. Cette technique est schématisée sur la Figure 8 et présente l'avantage de ne pas utiliser de pompes extérieures comme dans le cas du mélange à quatre ondes classique. Le faisceau signal  $S$  traverse une première fois le milieu non-linéaire, puis y est réinjecté à l'aide d'une boucle de rétro-réaction. Cette boucle peut être réalisée soit à l'extérieur du milieu par un jeu de miroirs diélectriques, soit à l'intérieur du matériau par réflexion sur ces faces. On peut alors distinguer deux types d'interaction.

Dans un premier cas, le faisceau signal  $S$  interfère avec le faisceau  $A_2$ , créant un hologramme dynamique dans le milieu non-linéaire. Le faisceau  $B$  issu initialement du bruit (diffusion du faisceau incident sur des impuretés, émission laser spontanée ...) en se diffractant sur l'hologramme donne le faisceau  $A_1$ . Après un aller dans la boucle,  $A_1$  redonne  $B$ . Une oscillation constructive s'établit si la condition suivante est vérifiée

$$\eta G p > 1 \quad (15)$$

où  $\eta$  est l'efficacité de diffraction de l'hologramme dynamique inscrit par  $S$  et  $A_2$ ,  $T$  ( $< 1$ ) représente les pertes introduites dans la boucle. On voit qu'il est généralement nécessaire d'introduire un gain supplémentaire  $G > 1$  pour que la condition (15) soit satisfaite. Ce gain peut provenir d'un amplificateur laser introduit dans la boucle. Cette interaction est alors équivalente à un processus de mélange à quatre ondes où  $A_1$  et  $A_2$  représente les faisceaux pompes avant et arrière,  $S$  le signal et  $B$  le faisceau conjugué en phase au signal.





**Figure 9:** Miroir à conjugaison de phase auto-pompé utilisant la diffusion Brillouin stimulée dans un gaz à haute pression ou un liquide.

Dans le deuxième cas, le faisceau signal  $S$  n'interfère pas avec le faisceau  $A_2$ . C'est le faisceau  $A_1$  issu du bruit (diffusion du faisceau incident sur des impuretés, ...) qui en interférant avec  $S$  crée un hologramme. Dans certaines conditions, le faisceau  $A_1$  est amplifié par le signal  $S$  via le processus de mélange à deux ondes. Après un aller dans la boucle,  $A_1$  donne le faisceau  $B$  qui va lui-même être amplifié par  $A_2$ . Ces amplifications successives aboutissent à la formation du faisceau conjugué en phase.

Finalement, le troisième type de miroir à conjugaison de phase utilise la diffusion Brillouin stimulée. Comme le mécanisme précédent, ce miroir est "auto-pompé" car le faisceau signal suffit seul à engendrer l'onde conjuguée. Ce processus non-linéaire étant efficace pour de fortes densités d'énergie, l'onde signal incidente doit être focalisée dans la cuve Brillouin contenant généralement un gaz à haute pression ou un liquide (voir la Figure 9). Ce phénomène débute par la présence dans le milieu d'ondes acoustiques spontanées résultant des fluctuations thermiques. Dans la région focale, l'onde incidente  $S$  en interagissant avec ces ondes va diffuser dans toutes les directions.  $S$  et ces ondelettes diffusées donnent naissance à des figures d'interférence. La force électrostrictive qui tend à concentrer les molécules dans les zones à grandes intensités va créer des réseaux d'indice dans le milieu.  $S$  en diffractant sur ces réseaux, renforce les ondes diffusées. Comme l'onde conjuguée en phase présente le maximum de recouvrement spatiale avec  $S$ , c'est cette onde qui va s'établir préférentiellement au détriment de toutes les autres directions.

Les principaux matériaux non-linéaires utilisés comme miroirs à conjugaison de phase sont donnés dans le Tableau 1. Les mécanismes non-linéaires qu'ils emploient ainsi que leur domaine spectral et temporel d'utilisation sont également rappelés. Dans les paragraphes suivants, nous étudions plus précisément les mécanismes non-linéaires efficaces permettant d'obtenir une correction des aberrations des milieux lasers solides et plus particulièrement des lasers dopés au néodyme ( $\text{Nd}^{3+}$ ) émettant dans le proche infrarouge.

#### 4. DIFFUSION BRILLOUIN STIMULEE

Le premier mécanisme mis en jeu dans la diffusion Brillouin stimulée est l'interaction entre l'onde laser incidente et les ondes acoustiques spontanées présentes dans le milieu. Ces ondes acoustiques spontanées résultent des fluctuations thermiques existant dans un milieu à la température ambiante et ne dépendent évidemment pas de la présence de l'onde laser. Cette interaction spontanée va induire une diffusion aléatoire de l'onde incidente

mécanisme non-linéaire mis en jeu	matériaux	type de miroir à conjugaison de phase	longueurs d'onde typiques d'utilisation	régime d'utilisation
effet photoréfractif	BaTiO <sub>3</sub> , SBN, KNbO <sub>3</sub> , LiNbO <sub>3</sub> , BSO	DFWM,	visible, proche IR (jusqu'à ~ 1 μm)	continu,
	GaAs, InP, CdTe:V	SPPC	proche IR (jusqu'à ~ 1,5 μm)	impulsionnel
génération de porteurs libres	GaAs, Si	DFWM	visible, proche IR	impulsionnel
	CdTe, CdSe, CdS, HgCdTe, InSb		IR (5 à 10 μm)	
effet thermique	colorants, solvants, cristaux liquides	DFWM, SPPC	toutes longueurs d'onde	continu, impulsionnel ( $t_p > ns$ )
effets de réorientation moléculaire	CS <sub>2</sub>	DFWM		impulsionnel ( $t_p \sim ps$ )
	cristaux liquides	DFWM, SPPC		continu, impulsionnel
saturation de l'absorption et différence de populations atomiques	rubis, Cr:GdAlO <sub>3</sub> , verres dopés, colorants, absorbants saturables (BDN)	DFWM	dans la bande d'absorption du matériau (UV → IR)	continu, impulsionnel
	gaz SF <sub>6</sub> , vapeurs de Na, Rb, Ba	DFWM, SPPC		
saturation du gain	lasers Nd:YAG, colorants (Rh 6G), vapeurs de cuivre, gaz CO <sub>2</sub> , excimère (XeCl, ArF)	DFWM, SPPC	dans la courbe de gain du matériau (UV → IR)	impulsionnel
	solides verre, quartz			
diffusion Brillouin	fibres optiques liquides CS <sub>2</sub> , CCl <sub>4</sub> , SnCl <sub>4</sub> , TiCl <sub>4</sub> , Fréon gaz N <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , SF <sub>6</sub>	SBS	visible, proche IR (jusqu'à ~ 2 μm)	impulsionnel ( $t_p < 500 ns$ )

Tableau 1: Principaux matériaux non-linéaires utilisés pour la conjugaison de phase optique. DFWM: mélange à quatre ondes dégénéré, SPPC: conjugaison de phase auto-pompée fondée sur le mécanisme de mélange à quatre ondes, SBS: conjugaison de phase par diffusion Brillouin stimulée.  $t_p$ : durée des impulsions; IR: infrarouge.

dans toutes les directions mais avec une efficacité extrêmement faible. Un calcul classique [19] montre que chacune de ces composantes de diffusion, parmi lesquelles se trouve l'onde conjuguée en phase, ne recueille que  $e^{-30}$  fois la valeur de l'énergie incidente.

Le deuxième mécanisme, stimulé, va donc consister en une amplification sélective de la seule onde conjuguée en phase parmi toutes celles qui ont été diffusées par cette interaction spontanée. La diffusion stimulée s'opère elle-même en plusieurs étapes. Dans un premier temps, l'onde laser incidente et les ondes rétrodiffusées par l'interaction spontanée interfèrent, donnant naissance à des inhomogénéités de l'intensité. Si l'on prend l'exemple d'un gaz, la force électrostrictive tend à concentrer les molécules dans les zones à grandes intensités. Cette force transforme ainsi la figure d'interférence précédente en réseau de densité moléculaire, c'est à dire en une onde acoustique. Les ondes acoustiques ainsi créés

s'atténuent en un temps  $\tau_B$ , caractéristique du temps de réponse de l'effet Brillouin. L'indice d'un gaz étant proportionnel à la densité moléculaire, un réseau d'indice reproduit donc la figure d'interférence à un décalage spatial près. La diffusion de l'onde incidente sur ces réseaux d'indice est alors un mécanisme stimulée de grande efficacité. Parmi toutes les ondes diffusées, seule l'onde conjuguée en phase cumule un gain important dans tout le volume d'interaction. Pour que ce mécanisme stimulé s'opère, l'onde incidente doit être suffisamment intense. La diffusion Brillouin stimulée est donc un phénomène à seuil.

#### 4.1 Détermination du seuil Brillouin

Le modèle couramment utilisé pour décrire le processus de rétro-diffusion Brillouin stimulée permet d'aboutir à trois équations différentielles couplées donnant l'évolution du champ électrique  $A_L$  du laser incident, du champ électrique  $A_C$  de l'onde Stokes rétro-diffusée et de l'amplitude de l'onde sonore  $Q$ . Près du seuil, il est possible de considérer en bonne approximation que le champ incident  $A_L$  n'est pas atténué par le processus de rétro-diffusion ( $|A_C| \ll |A_L|$ ). Dans ce cas,  $A_L$  est constant et seulement deux équations couplées peuvent être conservées. Ces équations peuvent se mettre sous la forme suivante [25]

$$\frac{\partial A_C}{\partial z} - \frac{n}{c} \frac{\partial A_C}{\partial t} = g_1 Q^* \quad (16a)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial z} + \frac{Q}{\tau_B} = g_2 A_C^* \quad (16b)$$

où  $g_1$  et  $g_2$  sont les coefficients de couplage,  $n$  l'indice du milieu,  $c$  la vitesse de la lumière et  $\tau_B$  est la durée de vie du phonon.

Différents régimes temporels peuvent être identifiés en fonction de la durée de l'impulsion,  $t_p$ , par rapport à la durée de vie du phonon,  $\tau_B$  [26].

##### 4.1.1 Régime stationnaire ( $t_p > 15 \tau_B$ )

Dans le régime stationnaire, les dérivées partielles par rapport au temps sont nulles et la résolution des équations (16) permettent de calculer la réflectivité  $R$  du miroir non-linéaire

$$R = r_0 \exp(g I_0 L) \quad (17)$$

où  $r_0$  est la réflectivité initiale créée par la diffusion spontanée,  $g$  est le coefficient de gain Brillouin en régime stationnaire,  $I_0$  est l'intensité du laser incident et  $L$  est la longueur de l'interaction. Cette longueur est donnée par la longueur de Rayleigh, soit

$$L = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (18)$$

où  $w_0$  est le rayon du faisceau au point focal.

Le seuil Brillouin est franchi lorsque la diffusion stimulée devient plus importante que le bruit de l'émission spontanée. Cette condition est satisfaite lorsque le terme dans l'exponentielle de l'Eq. (17) vaut environ 30. Par conséquent l'intensité seuil,  $I_{seuil}$  est donnée par

$$\boxed{I_{seuil} = \frac{30}{gL}} \quad (\text{régime stationnaire}) \quad (19)$$

Comme l'énergie seuil,  $E_{seuil}$ , peut s'exprimer en fonction de  $I_{seuil}$  de la façon suivante

$$E_{seuil} = t_p \pi \omega_0^2 I_{seuil} \quad (20)$$

où nous avons supposé une impulsion de forme temporelle rectangulaire. On trouve finalement

$$E_{seuil} = t_p \lambda \frac{30}{g} \quad (\text{régime stationnaire}) \quad (21)$$

Cette dernière équation indique qu'en régime stationnaire le coefficient de gain Brillouin,  $g$ , doit être le plus grand possible pour optimiser le seuil.

#### 4.1.2 Régime transitoire ( $t_p < 15 \tau_B$ )

La résolution des équations couplées (16) en régime transitoire pour des impulsions de durée plus courte que la durée de vie du phonon permet de calculer la réflectivité  $R$  du miroir non-linéaire. Ces calculs montrent que [19]

$$R \propto \tau_0 \exp \left( -2 \frac{t_p}{\tau_B} + 2 \sqrt{2gI_0 L t_p / \tau_B} \right) \quad (22)$$

Cette solution a été obtenue en faisant l'hypothèse que la réflectivité atteint son maximum au moins à la fin de l'impulsion et que l'impulsion de durée  $t_p$  possède une forme temporelle rectangulaire. La différence essentielle entre l'Eq. (17) et l'Eq. (22) est que la réflectivité transitoire dépend du rapport  $t_p / \tau_B$ . Nous verrons que ceci a une influence très importante sur l'évolution du seuil Brillouin. Comme précédemment, le seuil est atteint lorsque le terme dans l'exponentielle de l'Eq. (22) vaut environ 30. Dans ce cas, l'intensité seuil,  $I_{seuil}$  est donnée par

$$I_{seuil} = \frac{(15 + t_p / \tau_B)^2}{2g L t_p / \tau_B} \quad (\text{régime transitoire}) \quad (23)$$

En utilisant l'Eq. (20), on trouve finalement [19, 25]

$$E_{seuil} = \lambda \frac{15}{g} \left( 7,5 \tau_B + t_p + \frac{t_p^2}{30 \tau_B} \right) \quad (\text{régime transitoire}) \quad (24)$$

Il apparaît que l'intensité seuil augmente très fortement en régime transitoire lorsque la durée de l'impulsion diminue. Ainsi

$$\begin{aligned} I_{seuil} (t_p = \tau_B / 10) &= 30 \times I_{seuil} (\text{stationnaire}) \\ I_{seuil} (t_p = \tau_B / 100) &= 400 \times I_{seuil} (\text{stationnaire}) \end{aligned}$$

En revanche, il faut approximativement toujours la même énergie pour franchir le seuil Brillouin en régime transitoire, et ceci quelle que soit la durée de l'impulsion incidente. En régime stationnaire,  $E_{seuil}$  augmente linéairement avec la durée de l'impulsion [voir Eq. (21)].

## 4.2 Paramètres importants

Les équations (19), (21), (23) et (24) montrent que le gain Brillouin  $g$  doit être le plus grand possible pour diminuer le seuil du mécanisme. le coefficient de gain Brillouin est donné par

$$g = \frac{4\pi^2\gamma_e}{cV_S\rho} \frac{\tau_B}{\lambda^2} \quad (25)$$

Dans cette expression  $\gamma_e$  est le coefficient electrostrictif,  $\tau_B$  est la durée de vie du phonon,  $c$  la vitesse de la lumière et  $\rho$  la masse volumique moyenne du milieu. Notons que  $\gamma_e$  et  $\tau_B$  sont proportionnels à  $\rho$ . Dans le cas d'un gaz,  $\gamma_e$  et  $\tau_B$  augmentent donc linéairement avec la pression. Le gain Brillouin augmente quadratiquement avec  $\rho$  ou avec la pression.

La réflexion de l'onde incidente sur le réseau d'indice induit un décalage en fréquence  $\Delta\nu_{Brill}$  entre faisceaux incident et réfléchi [19]

$$\Delta\nu_{Brill} = 2\frac{V_S}{\lambda} \quad (26)$$

où  $V_S$  est la vitesse du son dans le milieu considéré et  $\lambda$  la longueur d'onde du faisceau incident. Pour une onde excitatrice à  $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ , le décalage en fréquence Brillouin est de 0,3 à 1 GHz dans les gaz, de 2 à 3 GHz dans les liquides et d'une dizaine de GHz dans les solides.

Parmi toutes les ondes diffusées par le processus spontané, celle conjuguée en phase est celle qui dispose du plus grand gain d'amplification cumulé sur tout le volume d'interaction. Cette amplification sélective explique pourquoi les miroirs Brillouin sont des miroirs à conjugaison de phase. En revanche, une intensité incidente trop importante, en réduisant le volume d'interaction réduit cette sélectivité et donc la qualité de la conjugaison de phase. L'intensité du faisceau incident doit donc être bien ajustée d'une part pour être au dessus du seuil et d'autre part pour permettre une bonne reconstruction du front d'onde conjugué en phase. En pratique, on choisit une intensité incidente entre 5 et 10 fois l'intensité seuil.

En résumé, les paramètres importants de cette interaction sont donc

- le gain Brillouin,  $g$ , (qui doit être le plus grand possible pour diminuer le seuil)
- la durée de vie des phonons acoustiques,  $\tau_B$ , qui quantifie le temps de réponse du miroir non-linéaire
- le décalage en fréquence Brillouin,  $\Delta\nu_{Brill}$ .

Le tableau 2 présente ces paramètres à la longueur d'onde du laser Nd:YAG ( $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ ) pour les milieux non-linéaires les plus connus.

La figure 10 montre une courbe expérimentale typique de réflectivité d'un miroir à conjugaison de phase Brillouin en fonction de l'énergie incidente. La réflectivité est ici définie comme le rapport énergétique entre le faisceau conjugué en phase et le faisceau incident. Le matériau utilisé est ici du  $\text{SnCl}_4$  et le laser, un laser Nd:YAG déclenché fonctionnant à une longueur d'onde de  $1,06 \mu\text{m}$ . Dans ces conditions expérimentales, le seuil Brillouin est d'environ 2 mJ. Pour des énergies supérieures, la réflectivité du miroir non-linéaire augmente rapidement puis atteint une valeur de saturation d'environ 60 %. Il

Matériaux		$g$ (cm/GW)	$\Delta\nu_{Brill}$ (GHz)	$\tau_B$ (ns)
GAZ	CH <sub>4</sub> (120 bars)	90	0,87	18,7
	Xe (40 bars)	43	0,28	29,2
	SF <sub>6</sub> (22 bars)	25	0,25	17,1
	N <sub>2</sub> (135 bars)	30	0,7	22
LIQUIDES	CS <sub>2</sub>	130	3,3	5,2
	CCl <sub>4</sub>	4	2,8	0,6
	C <sub>2</sub> Cl <sub>3</sub> F <sub>3</sub> (Fréon 113)	6	1,75	0,84
	C <sub>8</sub> F <sub>18</sub>	6,5	1,4	1
	SnCl <sub>4</sub>	14	2,3	2
	TiCl <sub>4</sub>	20	3,3	1,7

**Tableau 2:** Paramètres importants de l'effet Brillouin stimulé pour différents milieux non-linéaires à  $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ .

faut noter que les miroirs Brillouin utilisés dans des conditions optimales peuvent atteindre des réflectivités supérieures à 90 %.

#### 4.3 Effets non-linéaires parasites

Le Tableau 2 montre que de nombreux gaz ou liquides possèdent les caractéristiques pour induire efficacement l'effet Brillouin stimulé. Pourtant, l'étude expérimentale de ces matériaux a permis de mettre en évidence des effets non-linéaires parasites qui peuvent très fortement diminuer, voir annuler, l'effet Brillouin recherché [27]. Les principaux mécanismes compétitifs à l'effet Brillouin peuvent être: l'ionisation du milieu, aussi appelée "claquage", la défocalisation thermique et l'effet Raman. Les milieux non-linéaires les mieux adaptés doivent donc être des matériaux qui possèdent un coefficient de gain Brillouin élevé et dans lesquels les effets parasites limitatifs sont les plus faibles possibles.

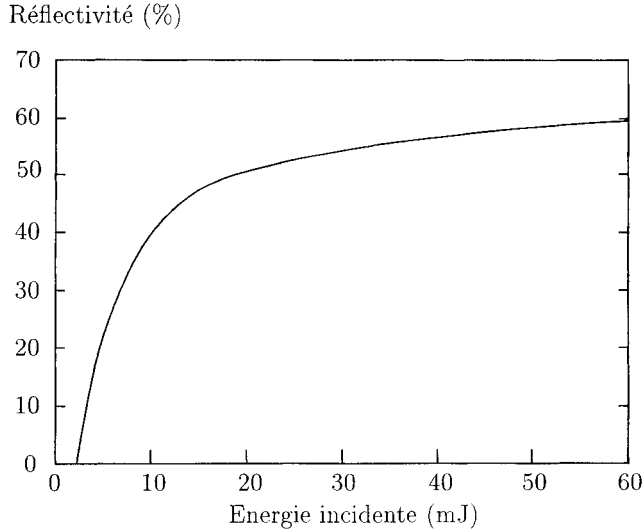
Parmi les effets non-linéaires parasites, les effets thermiques sont certainement les plus contraignants. La première conséquence de l'effet thermique est la défocalisation de l'onde au voisinage du point focal qui a pour effet d'augmenter le seuil Brillouin. La défocalisation thermique d'une impulsion laser monomode est caractérisée par une énergie critique  $E_{cr}$  pour laquelle la densité d'énergie au niveau du point focal est diminuée de moitié. Cette énergie critique est donnée par [28]

$$E_{cr} = \frac{\rho C_p \lambda^2}{2\pi (\partial n / \partial T)_p \alpha} \quad (27)$$

où  $n$  est l'indice du milieu,  $C_p$  la chaleur spécifique,  $T$  la température due à l'échauffement du milieu et  $\alpha$  est le coefficient d'absorption. Cette formule permet de calculer l'absorption du milieu pour laquelle les effets thermiques apparaissent avant même le seuil Brillouin. Une application numérique dans le cas des liquides chlorés (SnCl<sub>4</sub>, TiCl<sub>4</sub> ou CCl<sub>4</sub>) donne [28]

$$\alpha \text{ (cm}^{-1}\text{)} \leq \frac{10^{-9} \text{ ou } 10^{-8}}{N t_p} \quad (28)$$

où  $N$  est la cadence de répétition et  $t_p$  est la durée de l'impulsion. Pour une impulsion de durée  $t_p = 20$  ns et une cadence de répétition de  $N = 50$  Hz, le coefficient d'absorption



**Figure 10:** Réflectivité du miroir à conjugaison de phase en fonction de l'énergie incidente par impulsion d'un laser Nd:YAG déclenché fonctionnant à  $1,06 \mu\text{m}$ . Le matériau Brillouin utilisé est du  $\text{SnCl}_4$ .

du milieu doit être inférieur à environ  $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . Outre une absorption intrinsèque extrêmement faible, les milieux Brillouin doivent donc être parfaitement purifiés pour éviter l'absorption résiduelle par des impuretés.

#### 4.4 Influence des caractéristiques de la source sur le seuil Brillouin

Pour un fonctionnement optimum du miroir Brillouin, le laser incident doit posséder une largeur de raie très étroite. Le seuil Brillouin le plus faible est donc obtenu lorsque le laser est monomode longitudinal. Lorsque le laser s'écarte de ce fonctionnement, le seuil Brillouin augmente. Il est à noter que dans ce cas, on peut également observer une baisse de la fidélité du miroir non-linéaire. Afin d'évaluer l'augmentation du seuil avec l'élargissement de la raie laser, nous avons utilisé la modélisation de la Ref. [29]. Le seuil Brillouin pour un laser possédant une raie de largeur  $\Delta\omega$  est

$$E_{\text{seuil}}(\Delta\omega) = E_{\text{seuil}0} \left( 1 + \frac{4}{30} \frac{n\Delta\omega L}{c} \right)^{1/2} \quad (29)$$

où  $E_{\text{seuil}0}$  est le seuil Brillouin pour un laser monochromatique ( $\Delta\omega = 0$ ). Notons que cette expression a été calculée en considérant le régime stationnaire. En bonne approximation, les augmentations du seuil en régime stationnaire et transitoire suivent une loi identique. On remarque que le seuil Brillouin augmente comme la racine carrée de la largeur de raie laser.

La qualité spatiale du faisceau incident peut également influencer très fortement le seuil Brillouin. Les conditions optimales de focalisation qui aboutissent au seuil Brillouin le plus faible sont en effet obtenues lorsque le faisceau est limité par diffraction (divergence

$\Theta_0$ ). Pour un faisceau de divergence  $\Theta$  qui n'est pas limité par diffraction ( $\Theta > \Theta_0$ ), le seuil Brillouin devient [28]:

$$E_{seuil}(\Theta) = E_{seuil0} \frac{\Theta}{\Theta_0} \quad (30)$$

où  $E_{seuil0}$  est le seuil Brillouin pour un faisceau limité par diffraction. Cette formule montre que le seuil Brillouin augmente linéairement avec la divergence du faisceau incident.

#### 4.5 Exemple de réalisation

Un laser du type oscillateur-amplificateur (MOPA) avec miroir à conjugaison de phase Brillouin est schématisé sur la Figure 11. Notons que plusieurs (en général deux) amplificateurs peuvent être utilisés et qu'un système de correction de la dépolarisation peut également être incorporé. Le miroir à conjugaison de phase et sa lentille de focalisation associée sont ici simplement placés après le premier passage du faisceau dans le (ou les) amplificateur(s). Comme nous l'avons évoqué dans les paragraphes précédents, le choix du milieu Brillouin est très important et doit tenir compte des caractéristiques du faisceau incident sur la cellule (énergie par impulsion, cadence de répétition, distorsions, ...).

Quelques exemples de lasers à haute puissance et à haute qualité de faisceau:

- Laser Nd:YAG délivrant 1 J par impulsion à 100 Hz (100 W de puissance moyenne) entièrement pompé par diodes lasers [30]. Ce laser réalisé par TRW (USA) utilise un oscillateur Nd:YAG injecté pour un fonctionnement monomode longitudinal. L'amplificateur est un "slab" pompé par diodes lasers et la cellule Brillouin contient du Fréon 113. La qualité du faisceau en sortie du système est 1,1 fois la limite de diffraction.
- Laser Nd:YAP délivrant plus de 200 W de puissance moyenne avec une excellente qualité de faisceau réalisé à l'University de Berlin [31]. Le milieu Brillouin utilise du CS<sub>2</sub>.

Il est également possible de tirer profit du miroir à conjugaison de phase pour introduire dans le laser d'autres fonctions comme l'agilité angulaire du faisceau. Pour des applications industrielles comme le micro-usinage, il est nécessaire de dévier le faisceau rapidement avec une excellente précision de pointage. Pour réaliser cette fonction, on peut placer entre l'oscillateur et l'amplificateur un défecteur acousto-optique. Le faisceau défléchi est ensuite amplifié une première fois puis rencontre le miroir à conjugaison de phase. Ce dernier renvoie le faisceau, quelle que soit sa direction, dans l'amplificateur. En sortie du système, on obtient un faisceau énergétique, défléchi et limité par diffraction [32].

On peut finalement mentionner qu'un laser à conjugaison de phase Nd:YAG est commercialisé par la société Coherent. Ce laser utilise un oscillateur en anneau monofréquence pompé par diodes lasers, deux barreaux amplificateurs pompés par lampes flash et une cellule Brillouin contenant du Fréon 113. Ce laser délivre des impulsions de 400 mJ à une cadence de 100 Hz et la qualité du faisceau est environ 1,5 fois la limite de diffraction.

Dans ces lasers, les matériaux non-linéaires utilisés sont soit des gaz maintenus à haute pression (100-200 bar), soit des liquides, bien souvent toxiques. D'un point de vue pratique, il est préférable d'utiliser des milieux à l'état solide qui présentent des avantages relatifs à leur compacité, facilité de manipulation et fiabilité. Leur utilisation est même indispensable pour certaines applications.



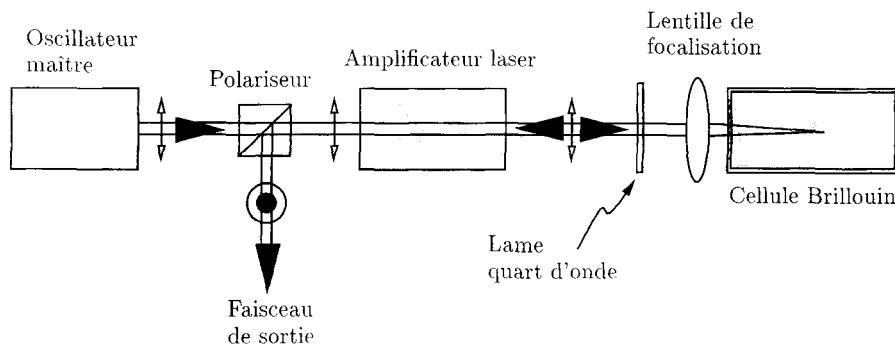


Figure 11: Réalisation d'un laser MOPA avec miroir à conjugaison de phase Brillouin.

Il peut être envisageable d'utiliser des matériaux solides pour réaliser des miroirs à conjugaison de phase Brillouin. Pour éviter tout phénomène non-linéaire parasite, ces matériaux doivent posséder un coefficient d'absorption très faible à la longueur d'onde d'utilisation. Dans le proche infrarouge, les verres optiques usuels (BK7) ou le quartz peuvent être employés. Cependant, leur coefficient de gain Brillouin est faible (environ 2-3 cm/GW) et leur seuil en énergie important (plusieurs dizaines de mJ). Pour un fonctionnement correct, des impulsions d'énergie supérieure à 100 mJ doivent être focalisées dans le milieu, ce qui pose des problèmes de tenue au flux. Une solution peut consister à utiliser des fibres optiques en verre ou en quartz très multimodes [31]. Comme le seuil Brillouin en intensité est inversement proportionnel au produit "coefficient de gain  $\times$  longueur d'interaction", il est facile de pallier le faible coefficient de gain Brillouin en utilisant une fibre de plusieurs mètres. Des reflectivités de conjugaison de phase supérieures à 50 % ont ainsi été obtenues avec des impulsions de puissance crête de seulement quelques kW (dans un liquide, par exemple  $\text{SnCl}_4$ , il faut plutôt des impulsions de puissance 1 MW). Des lasers MOPA avec une fibre à conjugaison de phase délivrant plus de 100 W de puissance moyenne ont ainsi pu être développés [33]. En revanche, la focalisation de l'onde incidente sur la face d'entrée de la fibre pose bien entendu des problèmes de positionnement du composant et de tenue au flux. Ce miroir à conjugaison de phase ne peut pas corriger des faisceaux trop distordus car toutes les fréquences spatiales ne rentrent pas dans la fibre.

## 5. L'EFFET PHOTOREFRACTIF

### 5.1 Rappels de l'effet photoréfractif

Parmi les matériaux solides envisageables, les cristaux photoréfractifs sont d'autres candidats intéressants. Un matériau photoréfractif associe deux propriétés : il est photoconducteur et il présente un effet électro-optique. La photoconduction, suite à une illumination non uniforme, permet l'établissement dans le matériau d'un champ électrique, dit champ de charge d'espace, qui reproduit la figure en intensité mais qui est décalé d'une quantité  $\phi$ . Ce champ de charge d'espace est dû à la redistribution des charges photo-induites dans le matériau. Les porteurs de charges, par exemple des électrons, sont issus de centres donneurs ou "pièges photoréfractifs". Ces pièges sont dus à des défauts du cristal et leurs

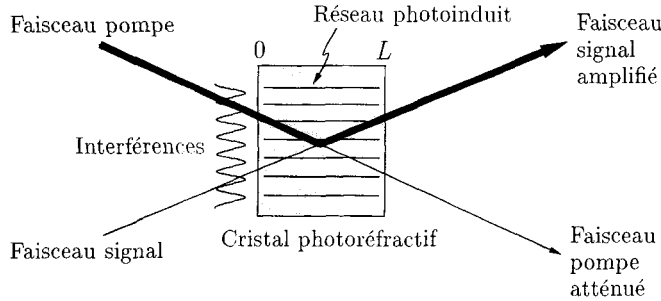


Figure 12: Principe du mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif.

niveaux d'énergie se trouvent dans la bande interdite. Ils sont excités dans les régions illuminées et passent dans la bande de conduction. Là, ils migrent par diffusion. Puis ils se combinent sur un centre accepteur, ou piège ionisé, dans les régions non illuminées. C'est donc cette séparation spatiale des charges qui induit le champ de charge d'espace. Ce dernier module par effet électro-optique la biréfringence du matériau. Ce changement local de l'indice du matériau reproduit donc la figure d'intensité à un décalage spatial  $\phi$  près.

L'interaction de deux faisceaux cohérents dans un cristal photoréfractif permet un transfert d'énergie d'un faisceau vers l'autre. Ce phénomène appelé mélange à deux ondes est représenté sur la figure 12. Lorsque les deux ondes, d'amplitudes complexes  $A_p$  et  $A_s$ , interfèrent dans le milieu non-linéaire, l'intensité totale peut s'écrire :

$$I = |A_p|^2 + |A_s|^2 + [A_p^* A_s \exp(-iKr) + c.c.] \quad (31)$$

où  $K = 4\pi \sin \theta / \lambda$ , où  $\theta$  est le demi-angle entre les deux faisceaux à l'intérieur du cristal. La variation spatiale d'éclairement induit une variation de l'indice de réfraction qui s'écrit :

$$n = n_0 + \left( \frac{\Delta n}{2} \frac{A_s^* A_p}{|A_p|^2 + |A_s|^2} \exp(-iKr) \exp(i\phi) + c.c. \right) \quad (32)$$

où  $\Delta n$  est le changement d'indice. En posant  $A_p = (I_p)^{1/2} \exp(-i\psi_p)$  et  $A_s = (I_s)^{1/2} \exp(-i\psi_s)$ , la résolution de l'équation de propagation permet d'aboutir aux systèmes d'équations couplées suivants :

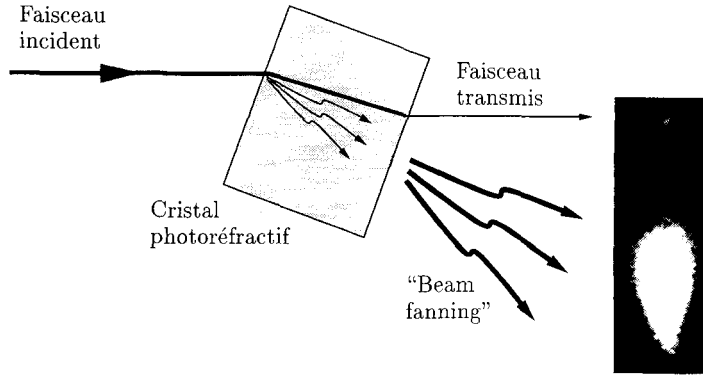
$$\frac{dI_s}{dz} = \Gamma \sin \phi \frac{I_s I_p}{I_s + I_p} - \alpha I_s \quad (33a)$$

$$\frac{dI_p}{dz} = -\Gamma \sin \phi \frac{I_s I_p}{I_s + I_p} - \alpha I_p \quad (33b)$$

et

$$\frac{d\phi_s}{dz} = \Gamma \cos \phi \frac{I_p}{I_s + I_p} \quad (34a)$$

$$\frac{d\phi_p}{dz} = \Gamma \cos \phi \frac{I_s}{I_s + I_p} \quad (34b)$$



**Figure 13:** L'amplification du bruit dans un cristal photoréfractif ou "beam fanning".

où  $\alpha$  est le coefficient d'absorption et  $\Gamma$  le coefficient de gain photoréfractif donné par

$$\Gamma = \frac{2\pi\Delta n}{\lambda \cos \theta} . \quad (35)$$

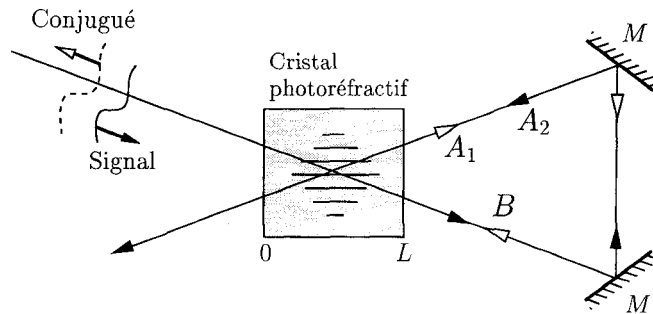
Lorsque le matériau photoréfractif fonctionne en régime de diffusion (c'est à dire sans champ électrique appliqué),  $\phi = \pi/2$ . Dans ce cas, on voit à travers les Eqs. (33) et (34) que le faisceau  $A_p$  transfère son énergie au faisceau  $A_s$  sans transfert de sa phase. Dans ces conditions, le gain deux ondes,  $G = I_s(L)/I_s(0)$ , peut se calculer d'après l'équation (33)

$$G = \frac{1 + \beta(0)}{\beta(0) + \exp(\Gamma L)} \exp(\Gamma L - \alpha L) , \quad (36)$$

où  $\beta(0) = I_p(0)/I_s(0)$ . Dans les matériaux photoréfractifs à fort gain tel que le Titanate de Barium ( $\text{BaTiO}_3$ ), ce transfert énergétique peut être extrêmement efficace. En considérant un cristal de 0,5 cm d'épaisseur, un coefficient de gain  $\Gamma = 30 \text{ cm}^{-1}$  et une absorption  $\alpha = 1 \text{ cm}^{-1}$ , on obtient un gain deux ondes  $G = 2 \times 10^6$ . Cette forte valeur de  $G$  n'est généralement pas obtenue expérimentalement car l'interaction à deux ondes dans le  $\text{BaTiO}_3$  est perturbée par la présence d'un troisième faisceau appelé en anglais "beam fanning". Ce faisceau est issu de l'amplification de la diffusion de la pompe aux interfaces ou dans l'épaisseur du cristal via un couplage à deux ondes avec le faisceau pompe ( $A_p$ ) lui-même (voir figure 13). Cet effet indésirable dans une expérience de mélange à deux ondes, va jouer un rôle primordial dans la génération d'un faisceau conjugué en phase dans une géométrie auto-pompée.

## 5.2 Conjugaison de phase auto-pompée dans un cristal photoréfractif

De la conjugaison de phase par mélange à quatre ondes peut être réalisée dans un cristal photoréfractif. Dans cette interaction un faisceau signal et deux faisceaux pompes contra-propagatifs interfèrent dans le cristal et engendrent un quatrième faisceau, le faisceau conjugué en phase. Pour l'application qui nous intéresse, cette interaction est difficilement utilisable. En revanche, les miroirs à conjugaison de phase auto-pompés présentent l'avantage de n'utiliser qu'un seul faisceau incident jouant le rôle de signal. Parmi les



**Figure 14:** Conjugaison de phase auto-pompée en boucle externe dans un cristal photoréfractif. M: miroirs.

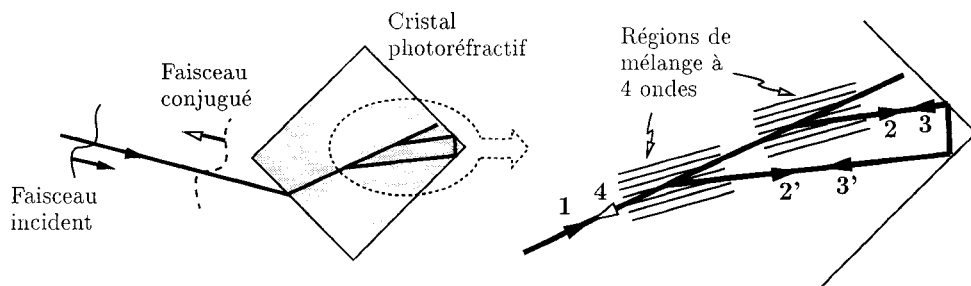
différentes géométries de conjugaison de phase auto-pompées, deux sont particulièrement intéressantes pour corriger les distorsions de phase d'un milieu laser.

La première géométrie est présentée sur la figure 14. Le signal traverse le cristal photoréfractif et y est renvoyé par l'intermédiaire d'une boucle optique réalisée au moyen de miroirs plans classiques. Le faisceau ainsi renvoyé est noté  $A_2$ . Un autre faisceau (noté  $A_1$ ) est spontanément engendré dans le cristal grâce au phénomène de fanning. Après un aller dans la boucle,  $A_1$  donne le faisceau  $B$  qui va être à son tour amplifié par mélange à deux ondes entre  $A_2$  et  $B$ . On se retrouve alors dans une configuration de mélange à quatre ondes où  $A_1$  et  $A_2$  jouent le rôle de faisceaux pompes avant et arrière, respectivement et où  $B$  le conjugué en phase au faisceau incident. Le réseau photoréfractif utilisé pour la génération de la conjugaison de phase est le réseau en transmission inscrit simultanément par les couples de faisceaux (signal -  $A_1$ ) et ( $B$  -  $A_2$ ). Le gain photoréfractif requis pour atteindre le seuil de fonctionnement du miroir à conjugaison de phase dépend de l'absorption du cristal et des pertes dues aux composants optiques de la boucle. Dans un modèle en ondes planes avec  $\alpha = 0$  et  $\phi = \pi/2$ , le gain photoréfractif seuil est donné par [34]:

$$\Gamma L = 2 \frac{T+1}{T-1} \ln \left( \frac{T+1}{2T} \right) \quad (37)$$

où  $T$  est la transmission de la boucle.  $\Gamma L$  est égal à 2 pour une boucle sans pertes. Il faut noter que la réflectivité du miroir non-linéaire augmente rapidement avec le produit  $\Gamma L$ .

Lors de la réalisation de ce type de miroir à conjugaison de phase, deux problèmes peuvent se rencontrer: d'une part la stabilité de la réflectivité et d'autre part la fidélité de la conjugaison de phase. Nous présentons ici brièvement les techniques qui permettent d'obtenir un fonctionnement optimal du miroir non-linéaire. Pour assurer un fonctionnement stable de ce miroir à conjugaison de phase, on doit principalement éviter la formation des réseaux parasites en réflexion (réseaux formés entre les faisceaux  $A_2$ -signal,  $B$ - $A_1$ ,  $A_2$ - $A_1$ ,  $B$ -signal) [35]. Si le laser utilisé possède une longueur de cohérence supérieure à la longueur de la boucle externe, il suffit de monter un des miroirs de la boucle sur une cale piezoélectrique pour rompre la cohérence du faisceau. Dans le plan de la boucle (plan de la figure 14), les conditions d'accord de phase imposent au faisceau conjugué en phase engendré à partir du bruit d'être une réplique fidèle du faisceau incident. En revanche, ces conditions d'accord de phase sont beaucoup moins strictes dans le plan vertical. Ceci a pour conséquence d'altérer la qualité du faisceau conjugué [36]. Pour pallier ce problème, une technique consiste à introduire dans la boucle un système qui réalise une rotation de



**Figure 15:** Conjugaison de phase auto-pompée par réflexion interne totale dans un cristal photoréfractif.

	Boucle externe	Boucle interne
Gain nécessaire	$\Gamma L > 2$	$\Gamma L > 5$
Dimension du miroir	$\sim 10$ cm	$< 1$ cm
Valeur de la réflectivité	ne dépend pas du cristal	peut dépendre de la géométrie du cristal
Mise en place du miroir	alignement précis des composants optiques pour assurer un bon recouvrement entre les faisceaux	auto-alignement du faisceau
Caractéristiques des distorsions	ne corrige pas des aberrations trop importantes	peut corriger de fortes aberrations

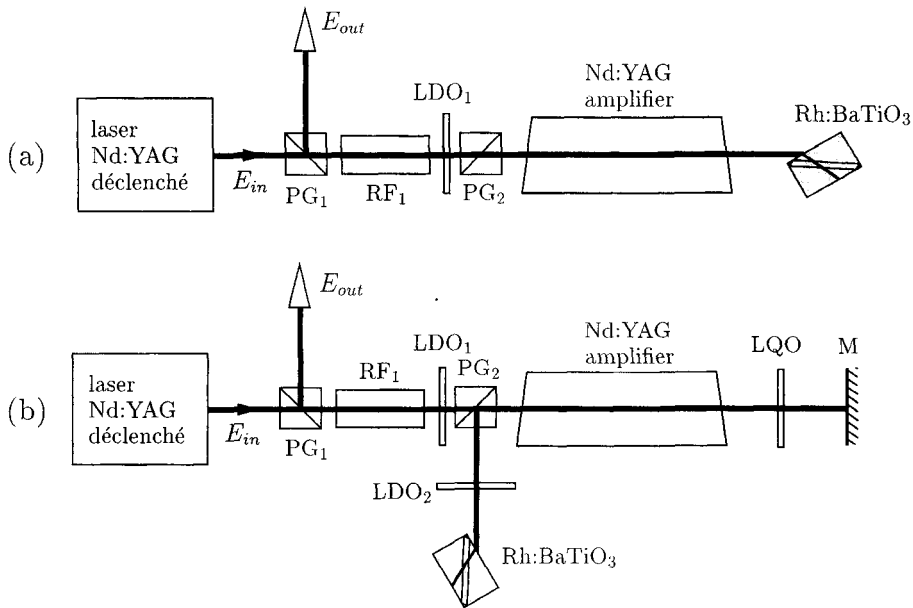
**Tableau 3:** Comparaison des miroirs à conjugaison de phase auto-pompés photoréfractifs en boucles externe et interne.

la section des faisceaux de  $90^\circ$  [37]. On peut également utiliser un télescope afocal dans la boucle.

La deuxième géométrie de conjugaison de phase auto-pompée utilise la formation d'une boucle à l'intérieur du cristal lui-même. Cette configuration ne nécessite aucun élément optique supplémentaire et présente donc l'avantage d'une grande compacité [38]. Comme dans le cas précédent, l'interaction démarre sur l'apparition du "beam fanning" dans le cristal. Pour certaines incidences du faisceau incident, la diffusion amplifiée se réfléchit sur les faces du cristal pour former une boucle interne au niveau d'un des coins du cristal comme le montre la figure 15. Le mécanisme de formation du faisceau conjugué en phase le plus couramment admis est celui des deux zones d'interaction [39]. Les faisceaux 2 et 2' engendrés à partir du beam fanning donnent respectivement les faisceaux 3' et 3 après réflexion sur les faces du cristal. Deux zones de mélange à quatre ondes apparaissent alors. Le signal (faisceau incident 1) et le faisceau conjugué en phase, 4, sont communs à ces deux zones. Ce miroir non-linéaire nécessite une valeur de gain plus importante (environ  $\Gamma L > 5$ ) que celle requise pour la configuration en boucle externe. Le tableau 3 compare les deux types de miroirs auto-pompés.

### 5.3 Lasers avec miroir à conjugaison de phase photoréfractif

Pour réaliser une source laser à haute qualité de faisceau intégrant un miroir à conjugaison de phase photoréfractif, plusieurs paramètres sont à prendre en compte. Le choix du matériau photoréfractif est bien entendu crucial. Les impuretés ou le dopant éventuel du cristal photoréfractif doivent absorber à la longueur d'onde d'utilisation. En revanche, l'absorption ne doit pas être trop importante ( $\alpha < 1 \text{ cm}^{-1}$ ) pour éviter une limitation de la réflectivité ou tout échauffement du cristal. Les lasers en configuration MOPA fonctionnent par ailleurs en régime impulsif (impulsions de durée  $\sim 10 \text{ ns}$  à une cadence de répétition  $> 10 \text{ Hz}$ ). Les temps de réponse et la sensibilité des matériaux photoréfractifs ne permettant pas une réponse à une impulsion unique du miroir à conjugaison de phase, le faisceau conjugué s'établit après l'intégration de plusieurs impulsions. Les matériaux photoréfractifs fonctionnant en régime de diffusion (pour lesquels,  $\phi = \pi/2$ ) sont donc les seuls candidats possibles.



**Figure 16:** Architecture Oscillateur-Amplificateur (MOPA) avec miroir à conjugaison de phase photoréfractif. Géométries (a) 2 passages et (b) 4 passages. PG : polariseur de Glan; RF : rotateur de Faraday; LDO : lame demi-onde; LQO : lame quart d'onde; M : miroir plan.

Pour les lasers dopés au néodyme (Nd:YAG, par exemple) fonctionnant dans le proche infrarouge, le BatiO<sub>3</sub> dopé au Rhodium (Rh:BaTiO<sub>3</sub>) est un bon candidat [40]. Des réflectivités de conjugaison de phase de 55 % en boucle interne et de 70 % en boucle externe ont ainsi pu être démontrées avec des cristaux de Rh:BaTiO<sub>3</sub> à la longueur d'onde des lasers Nd:YAG (1,06  $\mu\text{m}$ ), ce qui est tout à fait suffisant pour envisager leur intégration dans un laser [41, 42]. Le temps de réponse du cristal est de quelques minutes ce qui peut constituer une limitation lorsque les distorsions de phase du milieu laser évoluent rapi-

	Photoréfractif	Brillouin
Milieu	+ cristal	- en général : liquide ou gaz
Dimension	+ < 1 cm	- 20-50 cm
Caractéristiques spectrales de la source	+ pas de contrainte	- monomode longitudinal
Temps de réponse	- 1-3 min	+ qq. nanosecondes
Caractéristiques spatiales du faisceau	- ne corrige pas des distorsions évoluant rapidement	+ corrige des distorsions pouvant changer d'une impulsion à une autre
	+ pour des distorsions évoluant lentement corrige de très fortes aberrations	- ne corrige pas de fortes aberrations

**Tableau 4:** Comparaison des miroirs à conjugaison photoréfractif et Brillouin. + : avantages; - : limitation.

dement. La tenue au flux du cristal ( $\sim 15 \text{ MW/cm}^2$ ) est une autre contrainte à prendre en compte. En revanche, dans des régimes d'utilisation où le temps de réponse du cristal et la tenue au flux ne constituent pas un problème, l'utilisation d'un cristal photoréfractif comme miroir non-linéaire présente de nombreux avantages par rapport aux cellules Brillouin en terme de compacité, fidélité de conjugaison de phase, facilité d'utilisation et de manipulation.

Le schéma d'une source Nd:YAG avec miroir à conjugaison de phase photoréfractif est présenté sur la figure 16(a). Dans cette architecture, un oscillateur Nd:YAG déclenché délivre des impulsions de faible énergie,  $E_{osc}$ , avec un profil spatial de bonne qualité. Un isolateur de Faraday, constitué de deux polariseurs de Glan ( $GP_1$  et  $GP_2$ ), d'un rotateur de Faraday ( $FR_1$ ) et d'une lame demi-onde ( $WP_1$ ) permet de découpler l'oscillateur avec le faisceau de retour fortement amplifié. Le faisceau issu de l'oscillateur est donc amplifié une première fois dans l'amplificateur à fort gain. Le faisceau est alors réfléchi par le miroir non-linéaire pour subir un deuxième passage dans l'amplificateur. Le faisceau est ensuite extrait par réflexion sur le polariseur  $GP_1$ . Ce faisceau amplifié possède toutes les qualités spatiales du faisceau issu de l'oscillateur. Comme on limite l'énergie incidente sur le cristal photoréfractif, toute l'énergie stockée dans l'amplificateur n'est pas extraite. Un moyen d'extraire une plus grande partie de cette énergie consiste à utiliser l'architecture de la figure 16(b) dans laquelle le faisceau subit 4 passages dans le milieu amplificateur [43]. Dans cette architecture, une lame quart d'onde (LQO) est utilisée en deux passages pour tourner de  $90^\circ$  la polarisation de l'onde qui a subi une première traversée du milieu amplificateur. Après une deuxième amplification, l'onde est réfléchi par le polariseur  $GP_2$  et envoyé sur le miroir à conjugaison de phase. Une lame demi-onde ( $WP_2$ ) renverse la polarisation pour optimiser l'interaction non-linéaire. L'onde conjuguée en phase ainsi renvoyée par le cristal photoréfractif subit deux passages supplémentaires dans l'amplificateur pour être finalement extraite du système au moyen du polariseur  $GP_1$ . Une fois de plus, le faisceau de sortie est corrigé des distorsions de phase du milieu actif.

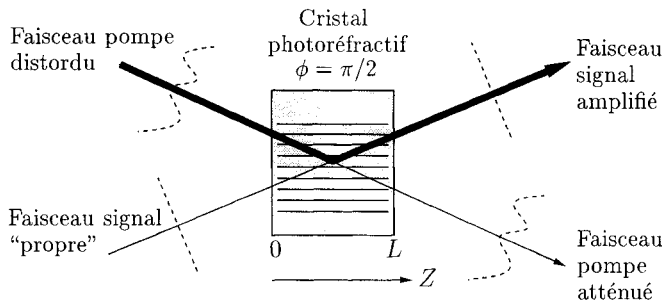
L'utilisation d'un cristal photoréfractif comme miroir non-linéaire permet donc la réalisation de sources lasers Nd:YAG à haute qualité de faisceau entièrement à l'état solide. Ce type d'architecture a récemment été validé avec un pompage par lampes flash basse

cadence et par diodes laser de puissance haute cadence [43, 44]. Dans ce dernier cas, des impulsions de 20 mJ à 200 Hz ont été obtenues (puissance moyenne 4 W). Dans les mêmes conditions expérimentales, les performances de cette source en terme d'énergie extraite et de qualité de faisceau sont tout à fait comparables à celles obtenues avec un miroir à conjugaison de phase du type Brillouin. En revanche, pour atteindre des puissances plus élevées (10-200 W), les miroirs Brillouin restent encore les mieux adaptés. Une optimisation des matériaux photoréfractifs (dopage, taille des cristaux, temps de réponse) pourra certainement étendre leur domaine d'application. Le tableau 4 présente une comparaison des miroirs Brillouin et photoréfractif.

#### 5.4 Le “nettoyage de faisceau” par mélange à deux ondes

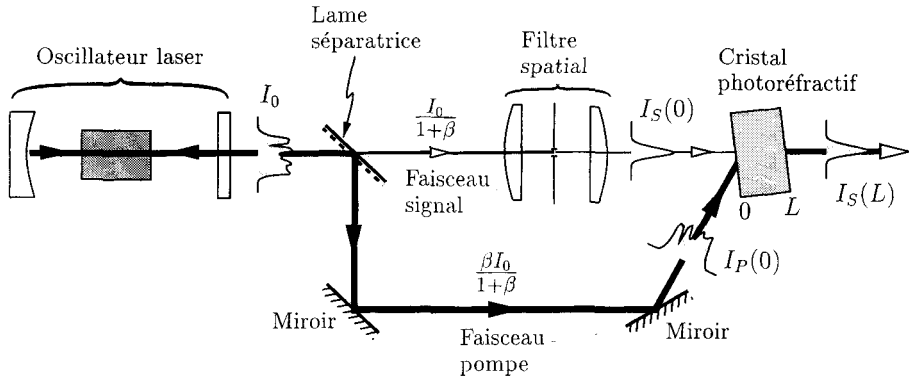
Dans certains régimes temporels, il peut être difficile de réaliser des amplificateurs lasers possédant un gain suffisamment élevé pour être utilisable dans une architecture MOPA. C'est notamment le cas en régime continu ou en régime de très haute cadence ( $> 10$  kHz). La montée en puissance se fait alors dans l'oscillateur lui-même. La qualité spatiale du faisceau émis par de telles sources peut se trouver extrêmement dégradée par les distorsions thermiques qui interviennent dans le milieu actif intra-cavité. Une solution peut consister à remplacer un des miroirs de la cavité laser par un miroir à conjugaison de phase. En revanche, la réflectivité du miroir non-linéaire doit être proche de 100 % pour diminuer les pertes de la cavité, ce qui constitue une limitation à l'emploi de cette technique. Une solution alternative consiste à utiliser le “nettoyage de faisceau” par mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif. Le principe du nettoyage de faisceau est représenté sur la figure 17. Comme on l'a déjà souligné au paragraphe 5.1, le mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif entre un faisceau intense, ou faisceau pompe, et un faisceau de faible intensité, ou faisceau signal, donne lieu à un transfert de l'énergie de la pompe sur le signal sans transfert de phase lorsque le décalage entre les réseaux d'interférence et d'indice vaut  $\phi = \pi/2$ . En d'autres termes, si le signal est un faisceau d'excellente qualité spatiale mais peu intense et que le faisceau pompe intense est fortement distordu, cette interaction non-linéaire va permettre de transférer toute l'énergie du faisceau pompe sur le signal, ce dernier conservant toutes ses qualités spatiales [45].

L'architecture complète du laser incluant le module de nettoyage du faisceau est présentée sur la figure 18. L'oscillateur laser est schématisé par un milieu actif dans une cavité plan-convexe formée de deux miroirs. Le faisceau distordu, d'intensité  $I_0$ , issu du laser est



**Figure 17:** Principe du “nettoyage” de faisceau par mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif.





**Figure 18:** Amélioration de la luminance d'un oscillateur laser par mélange à deux ondes dans un cristal photoréfractif.

séparé en deux faisceaux au moyen d'une lame de verre séparatrice. Le premier faisceau, jouant le rôle de signal, est filtré au moyen d'un filtre spatial composé d'une plaque percée placée dans le plan focal de deux lentilles. Le diamètre du trou est choisi pour obtenir un faisceau limité par diffraction. Le signal, d'intensité  $I_S(0)$  est alors mélangé dans le cristal photoréfractif avec le deuxième faisceau jouant le rôle de pompe, d'intensité  $I_P(0)$ . L'amplification du signal permet d'obtenir en sortie du cristal un faisceau limité par diffraction d'intensité  $I_S(L)$ . L'efficacité,  $\mathcal{E}$ , de cette technique peut être quantifiée par l'expression suivante :

$$\mathcal{E} = \frac{I_S(L)}{I_0} . \quad (38)$$

En notant  $\beta$  le rapport en intensité entre les faisceaux pompe et signal au niveau de la lame séparatrice, ce rapport juste avant le cristal devient

$$\beta(0) = \frac{\beta}{T} , \quad (39)$$

où  $T$  est la transmission du filtre spatial qui dépend directement de l'importance des distorsions du faisceau. En utilisant cette valeur de  $\beta(0)$  dans l'expression du gain deux ondes,  $G$ , donnée par l'équation (36), on peut calculer l'efficacité du système au moyen de la relation suivante :

$$\mathcal{E} = \frac{TG}{1 + \beta} . \quad (40)$$

Pour des valeurs de gain photoréfractif,  $\Gamma L$ , suffisamment importantes et une faible absorption,  $\mathcal{E}$  peut tendre théoriquement vers 100 %, à condition d'optimiser la valeur de  $\beta$ . On peut noter que sans cette technique, un filtre spatial directement placé sur le faisceau issu de l'oscillateur limiterait la valeur de l'efficacité à  $\mathcal{E} = T$ . Cette technique a déjà été validée avec des lasers Nd:YAG continus et des cristaux photoréfractifs de Rh:BaTiO<sub>3</sub> sensible dans le proche infrarouge [46]. Notons que contrairement à la conjugaison de phase, l'efficacité de l'interaction à deux ondes est fortement tributaire de la stabilité et du contraste des franges d'interférences entre les faisceaux pompe et signal. Cette technique n'est donc utilisable que pour corriger les distorsions d'un laser possédant une cohérence spatiale suffisamment importante.

## 6. MELANGE D'ONDES DANS LE MILIEU LASER

Une autre solution très attractive consiste à utiliser le milieu laser lui-même comme miroir non-linéaire. Il est en effet possible d'inscrire dans un amplificateur laser des réseaux ou des hologrammes dynamiques par saturation du gain. Cette technique proposée par R. L. Abrams et R. C. Lind en 1978 [47] et démontrée expérimentalement par R. A. Fisher et B. J. Feldman ainsi que A. Tomita en 1979 [48, 49] a fait l'objet récemment d'études plus approfondies [50, 51]. Cette technique présente en effet de nombreux avantages. Le phénomène de saturation du gain laser est inhérent à tous les milieux lasers, par conséquent tous les matériaux lasers solides (Nd:YAG, Nd:YVO<sub>4</sub>, Ti:Saphir, ...) peuvent être utilisés. Le milieu laser étant lui-même le milieu non-linéaire, la longueur d'onde d'utilisation est automatiquement optimisée. Ce mécanisme ne possède aucun seuil en intensité et son temps de réponse, extrêmement court, est celui de l'émission stimulée. Enfin, comme toutes les ondes mises en jeu dans l'interaction non-linéaire sont amplifiées par le gain laser, on peut s'attendre à de très grandes réflectivités du miroir à conjugaison de phase ainsi formé.

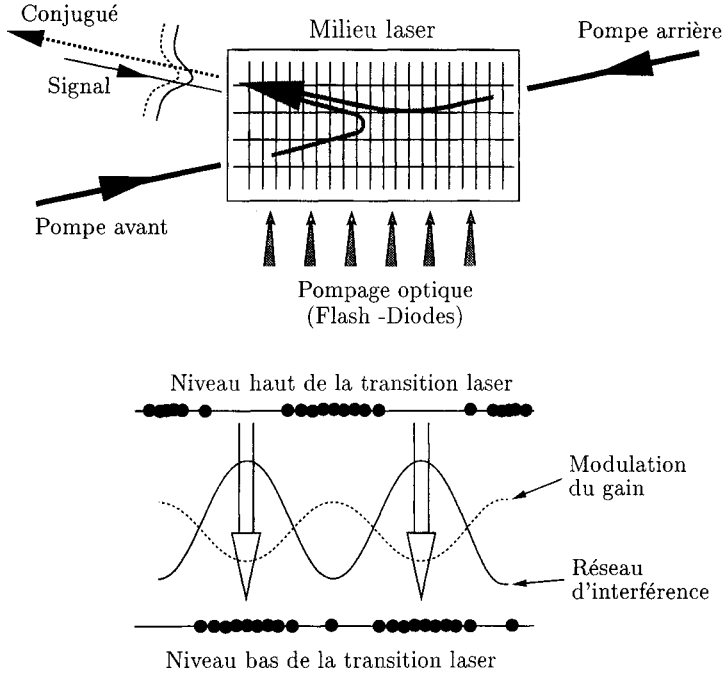
Le principe de conjugaison de phase par mélange à quatre ondes dans un amplificateur laser est présenté schématiquement sur la Figure 19. Ce milieu laser doit être préalablement placé en inversion de population par pompage optique au moyen, par exemple, de lampes ou de diodes lasers de puissance. Au cours de cette interaction, deux faisceaux pompes contra-propagatifs et un faisceau signal se propagent dans le milieu non-linéaire. Ces trois faisceaux proviennent d'un même oscillateur laser et sont cohérents entre eux. Leur longueur d'onde est ajustée pour être à la résonance de la transition laser de l'amplificateur. Cette condition est automatiquement vérifiée lorsque le matériau laser de l'amplificateur est le même que celui utilisé pour l'oscillateur. La distribution non-uniforme de l'intensité lumineuse dans l'amplificateur, due aux interférences des trois ondes, inscrit un hologramme de gain dans le volume du matériau. En effet, dans les zones intenses, l'inversion de population décroît alors qu'elle reste élevée dans les zones sombres. La diffraction simultanée des faisceaux pompes sur cet hologramme de gain engendre une quatrième onde, conjuguée en phase du signal. Outre le gain de l'amplificateur, l'efficacité de cette interaction non-linéaire dépend aussi étroitement du taux de modulation de l'hologramme inscrit. Ce dernier peut être optimisé en ajustant correctement la densité d'énergie des ondes mises en jeu par rapport à la densité d'énergie de saturation ( $U_{sat} \simeq 500 \text{ mJ/cm}^2$  pour le Nd:YAG) du milieu laser utilisé.

### 6.1 Rappels sur les lasers

Pour décrire et modéliser les interactions de mélanges d'ondes dans le milieu laser, nous considérons le modèle du laser à quatre niveaux de la figure 20. Ce modèle s'applique aux lasers à néodyme fonctionnant vers  $1,06 \mu\text{m}$ . Le pompage optique par lampes flash ou diodes lasers, permet d'exciter des atomes du niveau 0 fondamental vers le niveau 3 de pompage. Les atomes se relaxent ensuite de manière non-radiative vers le niveau haut de la transition laser (niveau 2). Le pompage permet de maintenir le niveau haut de la transition plus peuplé que le niveau bas créant ainsi une inversion de population. En traversant un tel milieu, une onde optique de fréquence  $\nu$ , d'amplitude initiale  $A(0)$  subit une amplification laser de la forme :

$$A(z) = A(0) \exp \left\{ \frac{1}{2} [g(\nu)] z \right\} \times \exp \{ -i [k + \phi(\nu)] z \} , \quad (41)$$

où  $A(z)$  est l'amplitude de l'onde à la distance  $z$  dans le milieu.  $k = 2\pi/\lambda = 2\pi n/\lambda_0$



**Figure 19:** Principe du mélange à quatre ondes par saturation de gain dans un milieu laser préalablement placé en inversion de population.

est l'amplitude du vecteur d'onde dans le milieu,  $n$  l'indice de réfraction. Le gain  $g(\nu)$  et la phase  $\phi(\nu)$  sont connectés à la susceptibilité atomique,  $\chi$ , des ions ou des molécules présents dans la matrice laser de la façon suivante [52]:

$$g(\nu) = k \chi''(\nu) \quad \text{et} \quad \phi(\nu) = \frac{k}{2} \chi'(\nu) , \quad (42)$$

où  $\chi''$  et  $\chi'$  sont respectivement la partie imaginaire et la partie réelle de la susceptibilité atomique ( $\chi = \chi' + i\chi''$ ). Pour des milieux qui présentent une raie laser à élargissement homogène, on a

$$\chi'' = \frac{g(\nu_0)}{k} \times \frac{1}{1 + \delta^2} , \quad (43a)$$

$$\chi' = \delta \chi'' , \quad (43b)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence de résonance du laser et

$$\delta = \frac{2(\nu - \nu_0)}{\Delta\nu} , \quad (44)$$

avec  $\Delta\nu$  la largeur totale à mi-hauteur de la raie laser. Dans l'équation (43), la valeur du coefficient de gain à la résonance,  $g(\nu_0)$ , est directement proportionnelle à l'inversion de population de la façon suivante

$$g(\nu_0) = \sigma_e(\nu_0) (N_2 - N_1) , \quad (45)$$

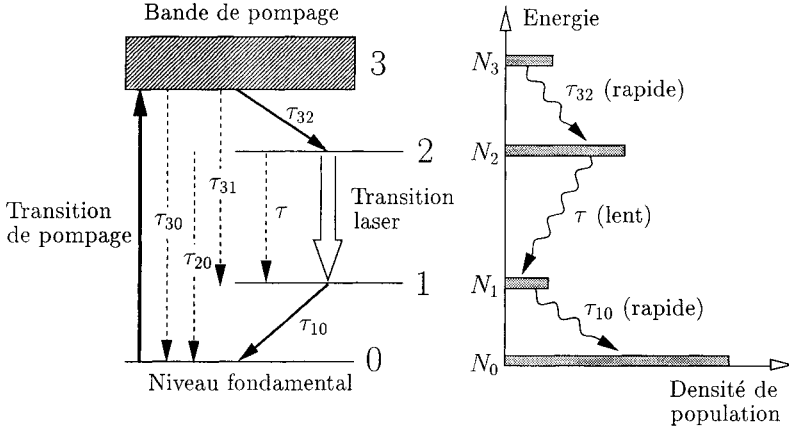


Figure 20: Représentation schématique du fonctionnement d'un laser à quatre niveaux.

où  $\sigma_e$  est la section efficace d'émission et  $N_j$  représente la densité de population du niveau  $j$ . Dans ce type de lasers, le niveau fondamental (niveau 0 de la Figure 20) est distinct du niveau bas de la transition laser (niveau 1). Ainsi, même avec un pompage modeste, l'inversion de population entre les niveaux haut et bas de la transition laser est facile à réaliser indépendamment du peuplement du niveau fondamental. Comme le niveau 3 de pompage se relaxe rapidement vers le niveau haut de la transition laser, on a  $N_3 \simeq 0$ . Les équations de population des niveaux de la transition laser s'écrivent alors [2, 52]

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = -\frac{\sigma_e(\nu)I}{h\nu} \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) - \frac{N_2}{\tau_{eff}} - \frac{N_2}{\tau_{20}} + \eta_P W_P N_0, \quad (46a)$$

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = \frac{\sigma_e(\nu)I}{h\nu} \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) - \frac{N_1}{\tau_{10}} + \frac{N_2}{\tau}, \quad (46b)$$

où  $I = |\vec{E}|^2$  est l'intensité de l'onde (ou des ondes) optique(s), à la fréquence  $\nu$ , se propageant dans le milieu laser et  $\vec{E}$ , le champ électrique total.  $W_P$  est le taux de pompage.  $\tau = \tau_{21}$  est le temps de relaxation de la transition laser où temps de fluorescence.  $g_j$  indique le nombre d'états que peut prendre l'atome dans le niveau  $j$ .  $g_j$  est appelé la dégénérescence du niveau  $j$ . Si les niveaux sont non-dégénérés,  $g_1 = g_2 = 1$ . Le temps de relaxation spontanée  $\tau_{eff}$  est donné par

$$\tau_{eff} = \frac{\tau}{1 + \tau/\tau_{20}}. \quad (47)$$

Bien souvent, la relaxation spontanée du niveau 2 vers le niveau 0 est négligeable. Dans ce cas,  $\tau_{20} \sim \infty$  et  $\tau_{eff} \sim \tau$ .

D'après l'équation (46b), la population du niveau haut de la transition laser augmente grâce au pompage optique et diminue sous l'effet des émissions stimulée et spontanée. Quant à la population du niveau bas de la transition, elle augmente par émissions stimulée et spontanée et diminue par relaxation non-radiative vers le niveau fondamental. Cette relaxation est caractérisée par la constante de temps  $\tau_{10}$ . Dans un laser à quatre niveaux idéal, cette relaxation se fait très rapidement de telle sorte que  $\tau_{10} \simeq 0$ . Ainsi, la densité

de population  $N_1$  est nulle. Dans ce cas,  $N_{tot} \simeq N_0$  et l'inversion de population ( $\Delta N = N_2 - N_1$ ) devient  $\Delta N \simeq N_2$ . Avec ces approximations, on trouve finalement:

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial t} \simeq \frac{\partial N_2}{\partial t} = -\frac{\sigma_e(\nu)I}{h\nu} \Delta N - \frac{\Delta N}{\tau} + \eta_P W_P N_{tot} . \quad (48)$$

Dans la partie droite de l'équation (48),  $-\sigma_e I \Delta N / h\nu$ , décrit le phénomène d'émission stimulée, le deuxième terme,  $-\Delta N / \tau$  est l'émission spontanée et le troisième terme,  $R_P N_{tot}$ , décrit le pompage optique, où  $R_P = \eta_P W_P$  est le taux de pompage effectif.

Comme l'émission stimulée dépend de l'intensité  $I$  de l'onde incidente et qu'il n'y a qu'un nombre fini d'atomes dans l'état excité, le gain du milieu diminue avec  $I$ . Ce phénomène est appelé la saturation du gain. On peut distinguer différents régimes de saturation suivant le comportement temporel de l'onde incidente. Ainsi en *régime stationnaire*, l'onde incidente est continue. On parlera également de régime stationnaire lorsque l'onde est une impulsion de durée  $t_p$  très grande par rapport à la durée de vie de l'état excité  $\tau$  ( $\simeq 230 \mu\text{s}$  dans le cas du Nd:YAG). On parlera de *régime impulsif* ou *régime transitoire*, pour des impulsions de durée  $t_p$  très petites par rapport à  $\tau$ . Dans la suite, on insistera plus particulièrement sur ce régime car dans la plupart des applications, des lasers Nd:YAG déclenchés délivrant des impulsions de quelques nanosecondes sont utilisés. Dans ce régime, comme  $t_p \ll \tau$ , on peut en bonne approximation, négliger l'émission spontanée et tout repompage optique éventuel. Dans ces conditions, l'équation (48) peut se réécrire de la manière suivante

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial t} \simeq \frac{\partial N_2}{\partial t} = -\frac{\sigma_e(\nu)I}{h\nu} \Delta N . \quad (49)$$

Pour une impulsion incidente dans le milieu à l'instant  $t = 0$ , l'équation (49) aboutit à

$$\Delta N(t) = \Delta N_{init} \exp \left[ -\frac{\int_0^t I(t') dt'}{U_{sat}} \right] . \quad (50)$$

$\Delta N_{init}$  correspond à l'inversion de population initiale, juste avant que l'impulsion n'arrive. Dans l'équation (50), nous avons également introduit la densité d'énergie de saturation ou fluence de saturation défini par

$$U_{sat}(\nu) = \frac{h\nu}{\sigma_e(\nu)} . \quad (51)$$

L'expression de la susceptibilité atomique en régime transitoire à la résonance ( $\nu = \nu_0$ ,  $\delta = 0$ ) est finalement donné par [d'après les équations (43), (45) et (50)]:

$$\chi = \frac{i\alpha_0}{k} \exp \left[ -\frac{\int_0^t I(t') dt'}{U_{sat}} \right] . \quad (52)$$

Dans cette équation,  $\alpha_0(\nu) = \sigma_e(\nu) \Delta N_{init}$  est le coefficient de gain faible signal obtenu pour  $U_0 \ll U_{sat}$ , où  $U_0 = \int_0^{t_p} I dt$  est la densité d'énergie de l'impulsion incidente.

## 6.2 Mélange à quatre ondes dans le milieu laser

Dans le cas du mélange à quatre ondes, le champ électrique total s'écrit:

$$\vec{E}(z, t) = \sum_{j=1}^{j=4} A_j(z) \vec{e}_j \exp(-ik_j \cdot \vec{r}_j + i\omega t) , \quad (53)$$

où  $\vec{k}_j$ ,  $\vec{e}_j$  et  $\vec{r}_j$  sont respectivement le vecteur d'onde, le vecteur unitaire de polarisation et le vecteur direction unitaire de l'onde  $A_j$ . Comme le montre la figure 21,  $A_1$  et  $A_2$  représentent les faisceaux pompes avant et arrière,  $A_3$  le faisceau signal et  $A_4$  le faisceau conjugué en phase. En injectant cette expression dans l'équation de propagation dérivée des équations de Maxwell :

$$\Delta \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{at}}{\partial t^2} , \quad (54)$$

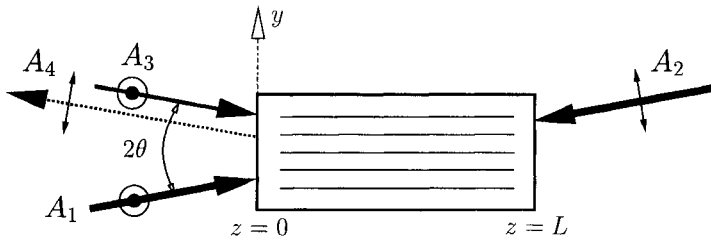
on aboutit à un système de quatre équations couplées dans lesquelles chaque onde est couplée avec les autres par l'intermédiaire de coefficients non-linéaires dépendant eux-mêmes de l'intensité des ondes. Dans l'équation (54),  $\vec{P}^{at} = \epsilon_0 n^2 \chi \vec{E}$  est la polarisation atomique. Dans le cas où tous les faisceaux sont polarisés de la même manière (mélange à quatre ondes avec faisceaux copolarisés), l'expression des coefficients non-linéaires est complexe. Nous ne traiterons ici que le cas où les deux faisceaux pompes sont polarisés orthogonalement. Si le signal est polarisé comme le faisceau pompe avant, un réseau de gain en transmission est inscrit dans le milieu laser, le faisceau pompe arrière en se diffractant sur ce réseau crée le faisceau conjugué comme indiqué sur la figure 21. Le faisceau conjugué est alors polarisé orthogonalement au signal et au faisceau pompe avant. Dans ce cas, l'équation (52) devient :

$$\chi(\mathbf{r}, t) = \frac{i\alpha_0}{k} \times \exp[-U_S(z, t) - U_M(z, t) \cos(Ky)] , \quad (55)$$

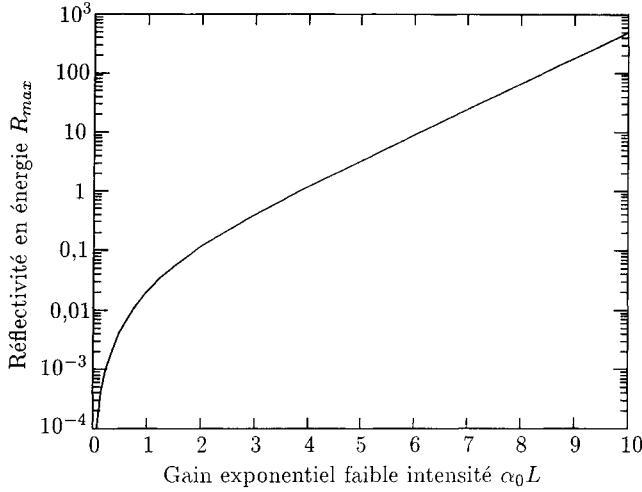
où  $K = 2k \sin \theta$  est le module du vecteur réseau,  $U_S$  et  $U_M$  sont donnés par [51] :

$$U_S(z) = \sum_{j=1}^{j=4} \int_0^t \frac{|A_j(z)|^2}{U_{sat}} dt , \quad (56a)$$

$$U_M(z) = 2 \int_0^t \frac{A_1(z)A_3(z) + A_2(z)A_4(z)}{U_{sat}} dt . \quad (56b)$$



**Figure 21:** Mélange à quatre ondes dans un amplificateur laser avec faisceaux pompes polarisés orthogonalement.



**Figure 22:** Réflectivité du miroir non-linéaire par mélange à quatre ondes dans un milieu laser en fonction du gain laser.

$\chi$  peut être développée en série de Fourier de la façon suivante:

$$\chi = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} (-1)^{|n|} \gamma_{|n|} \exp(-inKy) , \quad (57)$$

où les coefficients non-linéaires  $\gamma_n$  sont donnés par [51]

$$\gamma_n(z, t) = \exp(-U_S) \mathcal{I}_n(U_M) , \quad (58)$$

$\mathcal{I}_n$  étant la fonction de Bessel hyperbolique à l'ordre  $n$ . En injectant la susceptibilité atomique dans l'équation de propagation (54), on obtient les équations différentielles couplées entre les ondes  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  et  $A_4$  dans l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable :

$$\frac{dA_1(z)}{dz} = \gamma_0 A_1 - \gamma_1 A_3 , \quad (59a)$$

$$-\frac{dA_2(z)}{dz} = \gamma_0 A_2 - \gamma_1 A_4 , \quad (59b)$$

$$\frac{dA_3(z)}{dz} = \gamma_0 A_3 - \gamma_1 A_1 , \quad (59c)$$

$$-\frac{dA_4(z)}{dz} = \gamma_0 A_4 - \gamma_1 A_2 . \quad (59d)$$

La résolution numérique de ces équations permet de calculer la forme temporelle de l'impulsion conjuguée, son énergie et la réflectivité du miroir à conjugaison de phase définie comme le rapport en énergie des faisceaux conjugué et signal en  $z = 0$ .

Comme le montre la figure 22, la réflectivité du miroir non-linéaire croît rapidement avec le gain laser. Des réflectivités supérieures à 100 % sont obtenues pour un produit  $\alpha_0 L$

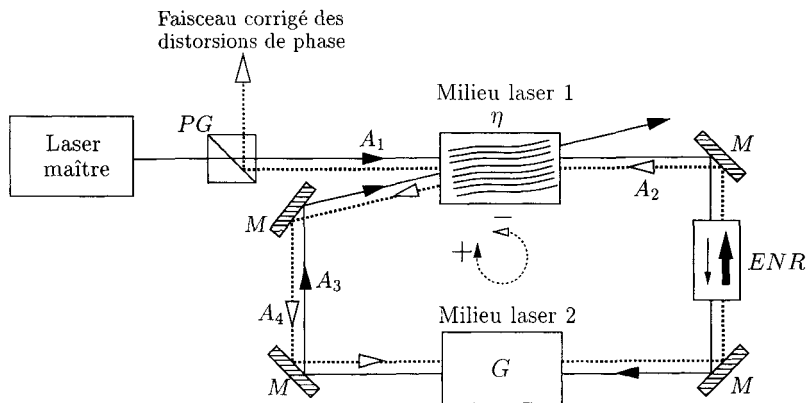
de l'amplificateur supérieur à  $\sim 4$ . On voit donc tout l'intérêt de cette interaction non-linéaire qui permet d'obtenir de fortes réflectivités dues à l'amplification laser de toutes les ondes mises en jeu. Le mélange à quatre ondes a été validé expérimentalement avec des impulsions nanosecondes dans des amplificateurs Nd:YAG pompés par des lampes flashes, des amplificateurs Nd:YVO<sub>4</sub> compacts pompés par diodes lasers et des amplificateurs Ti:Saphir [50, 51, 53, 54]. Dans tous ces matériaux, des réflectivités de conjugaison de phase supérieures à 100 % ont été démontrées.

### 6.3 Sources lasers auto-compensées de leurs distorsions

L'apport des deux faisceaux pompes constitue une limitation à l'utilisation du mélange à quatre ondes pour réaliser un miroir à conjugaison de phase. La conjugaison de phase auto-pompée permet quant à elle de réaliser le mélange à quatre ondes en injectant dans le milieu non-linéaire un faisceau unique. Ce faisceau traverse une première fois le milieu non-linéaire, puis y est réinjecté à l'aide d'une boucle de rétro-réaction. Cette boucle est réalisée au moyen de miroirs plans. Le faisceau ainsi renvoyé et le faisceau initial inscrivent un hologramme dans le milieu non-linéaire. Les autres faisceaux nécessaires au mélange à quatre ondes sont engendrés à partir du bruit, c'est à dire de l'émission laser spontanée. Ce type de miroir non-linéaire fonctionne si la condition

$$\eta G p > 1 \quad (60)$$

est vérifiée, où  $\eta$  est l'efficacité de diffraction de l'hologramme inscrit,  $G$  le gain présent dans la boucle et  $p$ , les pertes. Le gain  $G$  peut provenir d'un amplificateur laser introduit dans la boucle [55, 56].

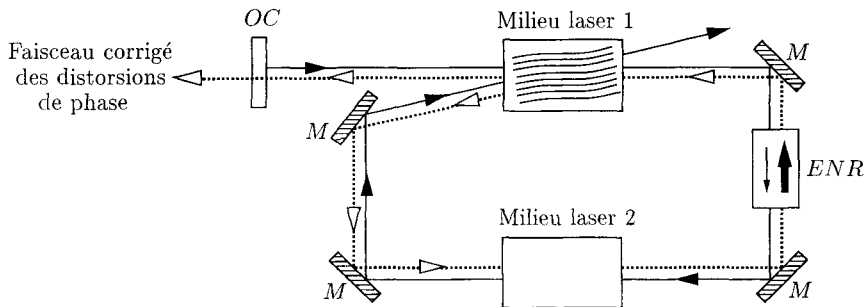


**Figure 23:** Schéma d'architecture laser utilisant la conjugaison de phase auto-pompée dans le milieu laser en configuration injectée. *PG*: polariseur de Glan; *M*: miroir plan; *ENR*: élément optique non-réciproque (utilisant, par exemple, un rotateur de Faraday).

Cette technique a été utilisée avec succès dans le milieu laser lui-même pour réaliser des architectures lasers auto-correctées de leurs distorsions. Ces expériences ont été faites dans des lasers à gaz [57, 58] et dans des lasers Nd:YAG [59-63]. Le principe de ces expériences est présenté sur la Figure 23. Dans la configuration injectée, l'impulsion pompe

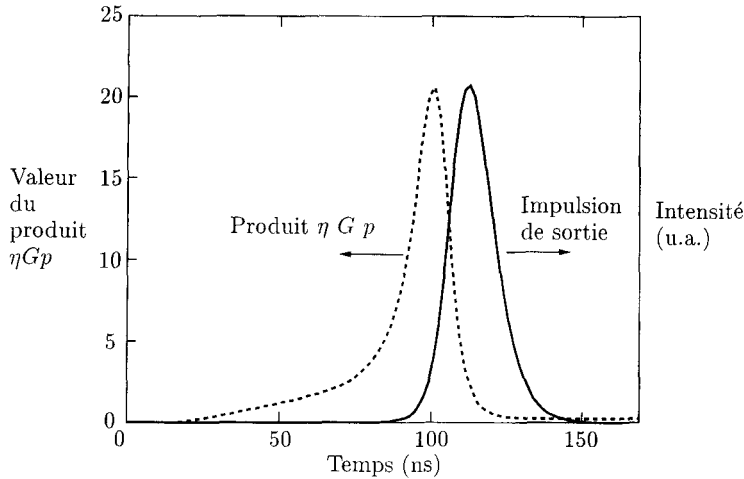


$A_1$  est délivrée par un laser maître de grande qualité de faisceau. Le faisceau  $A_1$  traverse une première fois le milieu laser 1, puis y est réinjecté à l'aide de la boucle de rétro-réaction formée de quatre miroirs plans. Le faisceau ainsi renvoyé dans le milieu laser 1, constitue le faisceau signal  $A_3$ .  $A_1$  et  $A_3$  inscrivent alors un hologramme dynamique de gain dans le milieu laser 1. Le faisceau pompe  $A_2$  est engendré à partir de l'émission laser spontanée. On est donc de nouveau dans les conditions de la conjugaison de phase par mélange à quatre ondes. L'onde conjuguée  $A_4$  est alors obtenue, par diffraction de  $A_2$  sur l'hologramme. Après un passage dans la boucle,  $A_4$  redevient le faisceau  $A_2$ . On voit immédiatement que la condition d'oscillation est conditionnée par le renforcement du faisceau  $A_2$  à chaque tour. Si  $n$  est le nombre de tours dans la cavité, la condition d'oscillation s'écrit :  $A_2(n+1) > A_2(n)$ . Comme  $A_2(n+1) = G \times p \times A_4(n)$  et que  $A_4(n) = \eta A_2(n)$ , on retrouve la condition  $\eta G p > 1$ . Le gain  $G$  est fourni par le milieu laser 2. Notons toutefois qu'il est en théorie possible de s'affranchir du milieu laser 2, si le milieu laser 1 possède un gain suffisant pour vérifier  $\eta > 1$ . Pour optimiser l'efficacité de diffraction,  $\eta$ , de l'hologramme de gain, le rapport en énergie entre les faisceaux  $A_1$  et  $A_3$  doit être optimisé [64]. Pour cela, il est nécessaire d'introduire dans la boucle un élément non-réciproque qui introduit des pertes  $p_+$  sur les faisceaux tournant dans le sens "+" et si possible aucune perte dans le sens "-" ( $p_- = 0$ ). Cet élément non-réciproque peut être formé d'un rotateur de Faraday et d'une lame demi-onde entourés par deux polariseurs [65]. Cet élément non-réciproque va également forcer l'oscillation dans le sens de l'onde conjuguée en phase (sens "-") et éviter une trop forte saturation du milieu laser 2 lors du processus d'écriture de l'hologramme de gain. Comme l'hologramme inscrit dans le milieu laser 1 rend compte de toutes les distorsions de phase introduites dans la boucle, y compris celles introduites par le milieu laser servant au mélange d'ondes, l'onde conjuguée extraite possède toutes les qualités spatiales de l'onde incidente.



**Figure 24:** Schéma d'architecture laser utilisant la conjugaison de phase auto-pompée dans le milieu laser en configuration auto-oscillante. *PG*: polariseur de Glan; *M*: miroir plan; *ENR*: élément optique non-réciproque; *OC*: optique de couplage.

L'onde extraite d'une telle cavité étant entre 10 et 100 fois plus énergétique que l'onde incidente, on réalise une version auto-oscillante de cette architecture en remplaçant le laser maître par un simple miroir de couplage, *OC*, de faible coefficient de réflexion (typiquement  $\sim 10\%$ ) comme le montre la figure 24 [62, 66]. Cette fois-ci toutes les ondes nécessaires au processus de mélange à quatre ondes proviennent de l'émission spontanée des amplificateurs lasers. L'onde conjuguée en phase extraite d'un tel laser possède une excellente qualité de faisceau malgré les fortes aberrations introduites par les milieux lasers. Outre la correction des distorsions de phase des amplificateurs, un tel oscillateur



**Figure 25:** Dynamique de formation de l'onde conjuguée en phase dans une cavité laser à conjugaison de phase.

présente d'autres propriétés originales. Pour que l'onde puisse inscrire un hologramme, les contraintes spectrales sont telles que l'onde émise est monofréquence (monomode longitudinale). Par ailleurs, la dynamique d'écriture et d'effacement de l'hologramme par saturation du gain réalise un auto-déclenchement de la cavité. Ces propriétés sont particulièrement intéressantes puisque ce laser permet de s'affranchir d'un laser d'injection et des moyens de déclenchement usuels tels que les cellules de Pockels ou les cellules acousto-optiques. L'utilisation des équations couplées en régime transitoire permet de modéliser la dynamique d'un tel laser comme le montre la figure 25 [66]. Lorsque les deux milieux amplificateurs ont un gain suffisamment important, l'émission spontanée va commencer à inscrire un hologramme de gain dans le milieu laser 1. Le produit  $\eta G p$  va alors croître jusqu'à être supérieur à l'unité. Le processus spontané devient alors stimulé. L'onde intracavité étant de plus en plus intense, l'efficacité de l'hologramme de gain va rapidement augmenter. En revanche, lorsque l'onde qui oscille devient trop intense, elle va saturer le gain du milieu laser 2 et effacer l'hologramme inscrit dans le milieu laser 1. L'onde va alors être extraite sous la forme d'une impulsion d'une dizaine de nanoseconde.

De telles architectures ont été validées expérimentalement avec des amplificateurs Nd:YAG pompés par lampes flash ou par diodes lasers ainsi qu'avec des amplificateurs Ti:Saphir [62, 66-68].

## 7. CONCLUSION

Les effets thermiques dans les milieux lasers conduisent à des distorsions pouvant être très importantes. Ceci a pour effet de dégrader la qualité de l'onde émise ou amplifiée, d'augmenter sa divergence et donc de diminuer sa luminance. Les sources lasers qui fonctionnent à fortes énergies doivent donc inclure des éléments optiques pour corriger ces distorsions. Cette présentation donne un aperçu de quelques mécanismes non-linéaires permettant de corriger de façon adaptative et dynamique les distorsions de phase induites

par effet thermique dans les milieux lasers.

Parmi les mécanismes non-linéaires envisageables, la diffusion Brillouin stimulée constitue une technique qui a maintenant parfaitement fait ses preuves dans des systèmes lasers à forte puissance moyenne et à haute qualité de faisceau. L'avantage de cette technique réside dans sa simplicité d'utilisation puisqu'il suffit de focaliser l'onde distordue dans une cuve contenant le milieu non-linéaire pour obtenir un faisceau conjugué en phase qui après un double passage dans le milieu aberrateur, redonne un faisceau corrigé de ses aberrations. En revanche, ces milieux sont souvent des gaz à haute pression ou des liquides toxiques, ce qui peut être une limitation à leur utilisation dans des lasers industriels.

Outre la possibilité d'obtenir un effet Brillouin dans des milieux solides, ce qui constitue une voie de recherche prometteuse encore peu étudiée, l'effet photoréfractif dans des nouveaux cristaux adaptés au proche infrarouge est une solution intéressante. Dans des régimes d'utilisation où le temps de réponse du cristal et la tenue au flux ne constituent pas un problème, l'utilisation d'un cristal photoréfractif comme miroir non-linéaire présente des avantages en terme de compacité, fidélité de conjugaison de phase, facilité d'utilisation et de manipulation.

Une solution alternative très prometteuse consiste à utiliser le milieu laser lui-même comme milieu non-linéaire pour réaliser de la conjugaison de phase. Outre la possibilité d'utiliser des matériaux lasers solides, cette technique est très efficace compte tenu de l'amplification laser subie par toutes les ondes mises en jeu. De tels miroirs non-linéaires peuvent être intégrés dans de nouvelles architectures de source laser auto-corrigées de leurs distortions de phase. Ce nouveau type de laser "tout à l'état solide" s'affranchit également des techniques usuelles de déclenchement et d'affinement spectral ce qui représente une économie de dispositifs et une souplesse d'utilisation non négligeables. Les performances déjà obtenues permettent de viser des énergies et des cadences de répétition élevées tout en maintenant une excellente qualité de faisceau quel que soit le point de fonctionnement de la source. Les prochaines recherches sur ce sujet viseront à étendre ce mécanisme non-linéaire à d'autres milieux lasers et d'autres longueurs d'onde. Ces techniques apparaissent bien adaptées au pompage par diodes pour la réalisation de sources hautes cadences et compactes, délivrant un faisceau proche de la limite de diffraction. En revanche, cette technique nécessite la réalisation d'amplificateurs lasers à fort gain.

Pour conclure, chaque type d'interaction non-linéaire présente des avantages et des limites. Il paraît donc difficile d'écarter une solution au profit d'une autre. Le choix d'une technique doit donc se faire en fonction du domaine d'application et des performances visées. Pour des systèmes lasers optroniques ou industriels à haute puissance moyenne ou à forte énergie par impulsion, il est même probable que l'utilisation simultanée de plusieurs techniques non-linéaires pourra contribuer à une amélioration importante de la qualité spatiale et spectrale de ces sources.

## Références

- [1] Eichler H. J., Günter P. and Pohl D. W., *Laser-induced dynamic gratings* (Springer-Verlag, Berlin, 1986).
- [2] Koechner W., *Solid-state laser engineering* (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- [3] F. W. Quelle F. W., *Appl. Opt.*, **5** (1966) 633-637.
- [4] Foster J. D. and Osterink L. M., *J. Appl. Phys.*, **41** (1966) 3656-3663.
- [5] Eichler H. J., Haase A., Menzel R. and Siemoneit A., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **26** (1993) 1884-1891.
- [6] Kaminskii A. A. and Antipenko B. M., *Multilevel Operating Schemes of Crystalline Lasers* (Nauka, Moscou, 1989).

- [7] Bordé Ch. J. , “Propagation of laser beams and of atomic systems,” Systèmes Fondamentaux en Optique Quantique, Les Houches, Session LIII, 1990, J. Dalibard, J. M. Raimond and J. Zinn-Justin, Eds., (Elsevier Science Publisher, 1992) p. 288–380.
- [8] Gabor D., *Nature*, **161** (1948) 777–778.
- [9] Gabor D., *Proc. R. Soc. (London) A*, **197** (1949) 454–487.
- [10] Zel’dovich B. Y. , Popovichev V. I. , Ragul’skii V. I. and Faizullov F. S., *Sov. Phys. JETP*, **15** (1972) 109–113.
- [11] Nosach O. Y. , Popovichev V. I., Ragul’skii V. I., and Faizullov F. S., *Sov. Phys. JETP*, **16** (1972) 435–435.
- [12] Yariv A., *Appl. Phys. Lett.*, **28** (1976) 88.
- [13] Hellwarth R. W. , *J. Opt. Soc. Am.*, **67** (1977) 1–3.
- [14] Bloom D. M. and Bjorklund, *Appl. Phys. Lett.*, **31** (1977) 592–594.
- [15] Yariv A. and Pepper D. M., *Opt. Lett.*, **1** (1977) 16–18.
- [16] Wang V. and Giuliano C. R., *Opt. Lett.*, **2** (1978) 4–6.
- [17] Yariv A., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-14** (1978) 650–660.
- [18] Fisher A., *Optical Phase Conjugation* (Academic press, New York, 1983).
- [19] Zel’dovich B. Ya., Pilipetsky N. F. and Shkunov V. V., *Principles of phase conjugation* (Springer-Verlag, Berlin, 1985).
- [20] Pepper D., *Pour la Science*, (Mars 1986) 44–54.
- [21] Bordé Ch. J., “Phase conjugate optics and applications to interferometry and to laser gyros”, *Quantum optics, experimental gravity, and measurement theory*, P. Meystre and M. O. Scully, Eds. (Plenum Publishing Corporation, 1983), p. 269–291.
- [22] Rockwell D. A., *IEEE J. Quant. Electron.*, **24** (1988) 1124–1140.
- [23] Rockwell D. A., “Application of Phase Conjugation to High-Power Lasers”, *Optical Phase Conjugation*, M. Gower and D. Proch, Eds. (Springer-Verlag, Berlin, 1994), p. 288–313.
- [24] Scott W. C. and de Wit M., *Appl. Phys. Lett.*, **18** (1971) 3–4.
- [25] Eichler H. J., Menzel R., Sander R., Schulzke M. and Schwartz J., *Opt. Commun.*, **121** (1995) 49–54.
- [26] Kaiser W. and Maier M., “Stimulated Rayleigh, Brillouin and Raman spectroscopy”, *Laser handbook*, volume 2, F. T. Arecchi and E. O. Schulz-Dubois, Eds. (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1972), p. 1077–1150.
- [27] Dizier F., Ayrat J.-L., Montel J. and Huignard J.-P., *Int. J. Nonlin. Opt. Phys.*, **2** (1993) 229–245.
- [28] Andreev N. F., Khazanov E. and Pasmanik G. A., *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 330–341.
- [29] Cook G. and Ridley K. D., *Opt. Commun.*, **130** (1996) 192–204.
- [30] St. Pierre J. R., Injeyan H., Hilyard R. C., Weber M. E., Berg J. G., Wickham M. G., Hoefler C. S. and Machan J. P., “One Joule per pulse, 100 Watt, diode-pumped, near diffraction limited, phase conjugated, Nd:YAG master oscillator power amplifier”, *OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers*, volume 15, A. A. Pinto and T. Y. Fan, Eds. (Optical Society of America, Washington DC, 1993) p. 2–8.
- [31] Dehn A., Eichler H. J., Haase A., Liu B. and Mehl O., *SPIE*, **2986** (1997) 74–83.
- [32] Ayrat J.-L., Montel J., Verny T. and Huignard J.-P., *Opt. Lett.*, **16** (1991) 1225–1227.
- [33] Eichler H. J., Haase A., Kunde J., Liu B. and Mehl O., *SPIE*, **2986** (1997) 46–54.
- [34] Cronin-Golomb M., Fisher B., White J. O. and Yariv A., *Appl. Phys. Lett.*, **42** (1983) 919–921.
- [35] Cronin-Golomb M., Palaski J. and Yariv A., *Appl. Phys. Lett.*, **47** (1985) 1131–1133.
- [36] Korol’kov S. A., Kuzminov Y. S., Mamaev A. V., Shkunov V. V. and Zozulya A. A., *J. Opt. Soc. Am. B*, **9** (1992) 664–671.
- [37] Mager L., Laquarroy C., Pauliat G., Garrett M. H., Rytz D. and Roosen G., *Opt. Lett.*, **19** (1994) 1508–1510.

- [38] Feinberg J., *Opt. Lett.* **7** (1982) 486–588.
- [39] MacDonald K. R. and Feinberg J., *J. Opt. Soc. Am.*, **73** (1983) 548–553.
- [40] Wechsler B. A., Klein M. B., Nelson C. C. and Schwartz R. N., *Opt. Lett.*, **19** (1994) 536–538.
- [41] Brignon A., Geffroy D., Huignard J.-P., Garrett M. H. and Mnushkina I., *Opt. Commun.* **137** (1997) 311–316.
- [42] Huot N., Jonathan J. M. C., Rytz D. and Roosen G., *Opt. Commun.*, **140** (1997) 296–298.
- [43] Brignon A., Huignard J.-P., Garrett M. H. and Mnushkina I., *Opt. Lett.*, **22** (1997) 442–444.
- [44] Brignon A., Sénac S., Ayral J.-L. and Huignard J.-P., *Appl. Opt.*, **37** (1998) 3990–3995.
- [45] Chiou A. E. and Yeh P., *Opt. Lett.*, **10** (1985) 621–623.
- [46] Brignon A., Huignard J.-P., Garrett M. H. and Mnushkina I., *Appl. Opt.*, **22** (1997) 442–444.
- [47] Abrams R. L. and Lind R. C., *Opt. Lett.*, **2** (1978) 94–96, **3** (1978) 205.
- [48] Fisher R. A. and Feldman B. J., *Opt. Lett.*, **4** (1979) 140–142.
- [49] Tomita A., *Appl. Phys. Lett.*, **34** (1979) 463–464.
- [50] Crofts G. J., Green R. P. M. and Damzen M. J., *Opt. Lett.*, **17** (1992) 920–922.
- [51] Brignon A. and Huignard J.-P., *IEEE J. Quant. Electron.*, **30** (1994) 2203–2210.
- [52] Siegman A.E., *Lasers* (University Science Books, Mill Valley, California, 1986).
- [53] Brignon A., Feugnet G., Huignard J.-P. and Pocholle J.-P., *Opt. Lett.*, **20** (1995) 548–550.
- [54] Crofts G. J., Banti X. and Damzen M. J., *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1634–1636.
- [55] Betin A. A. and Mitropol'skiĭ O. V., *Sov. J. Quantum Electron.*, **17** (1987) 636–640.
- [56] Odoulov S., Soskin M. and Khizniak A., *Optical oscillators with degenerate four-wave mixing (dynamic grating lasers)* (Harwood academic publishers, Chur, Switzerland, 1991).
- [57] Bel'dyugin I. M., Zolotarev M. V., Kireev S. E. and Odintsov A. I., *Sov. J. Quant. Electron.*, **16** (1986) 535–537.
- [58] Ouhayoun M. and Guern Y., *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-22** (1986) 2150–2153.
- [59] Bel'dyugin I. M., Berenberg V. A., Vasil'ev A. E., Mochalov I. V., Petnikova V. M., Petrovskii G. T., Kharchenko M. A. and Shuvalov V. V., *Sov. J. Quantum Electron.*, **19** (1989) 740–742.
- [60] Green R. P. M., Crofts G. J. and Damzen M. J., *Opt. Lett.*, **19** (1994) 393–395.
- [61] Antipov O. L., Belyaev S. I. and Kuzhelev A. S., *JETP Lett.*, **60** (1994) 165–170.
- [62] Damzen M. J., Green R. P. M. and Syed K. S., *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1704–1706.
- [63] Sillard P., Brignon A. and Huignard J.-P., *J. Opt. Soc. Am. B.*, **14** (1997) 2049–2058.
- [64] Brignon A. and Huignard J.-P., *Journal of Imaging Science and Technology*, **41** (1997) 474–481.
- [65] Damzen M. J., Green R. P. M. and Crofts G. J., *Opt. Lett.*, **19** (1994) 34–36.
- [66] Sillard P., Brignon A. and Huignard J.-P., *IEEE J. Quant. Electron.*, **34** (1998) 465–472.
- [67] Sillard P., Brignon A., Huignard J.-P. and Pocholle J. P., *Opt. Lett.*, **23** (1998) 1093–1095.
- [68] Minassian A., Crofts G. J. and Damzen M. J., *Opt. Lett.*, **22** (1997) 697–699.



# **EXPOSÉS DE STAGIAIRES**





## **Couches minces fabriquées par sol-gel pour des applications en optique non linéaire**

J. Fick, A. Martucci\* et M. Guglielmi\*

*Laboratoire d'Électromagnétisme Micro-ondes et Optoélectronique, UMR 5530, INPG-UJF-CNRS, 23 rue des Martyrs, BP. 257, 38016 Grenoble, France*

*\* Dipartimento di Ingegneria Meccanica, Settore Materiali, Università di Padova, via Marzolo 9, 35131 Padova, Italy*

**Résumé :** Des couches minces de  $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$  dopées avec des nanocristallites de PbS ont été fabriquées par sol-gel. La présence des nanocristallites a été mise en évidence par des spectres d'absorption et des clichés de MEB. L'indice de réfraction non linéaire a été mesuré par la technique des lignes noires non linéaires et le mélange à quatre ondes. Des valeurs de  $n_2$  entre  $-10^{-7}$  et  $-10^{-10}$   $\text{cm}^2/\text{kW}$  ont été obtenues en fonction du taux de dopage et de la durée des impulsions laser utilisées. Des effets de saturation de la non-linéarité ont été observés. Le temps de réponse de la non-linéarité mesuré est inférieur à 30 ps.

### **1. INTRODUCTION**

Un grand effort de recherche est actuellement fait sur les nanostructures de semi-conducteur ou de métal. Elles présentent un très grand intérêt pour les applications en optique intégrée, par exemple pour la commutation tout optique [1] ou la propagation des solitons optiques [2]. Beaucoup de travaux ont été faits sur des verres dopés avec des nanocristallites de CdS et CdSeS [3], principalement à cause de leur disponibilité comme filtres optiques commerciaux. Une des limitations principales de ces matériaux est le photonoircissement, c'est-à-dire le changement permanent des propriétés optiques sous irradiation laser. Il a été démontré que ce problème peut être résolu en utilisant la technique sol-gel pour la fabrication des verres [4].

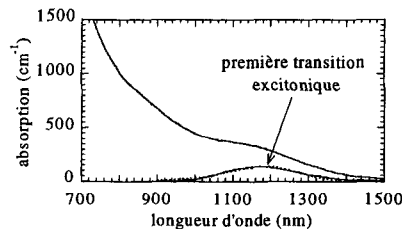
Un autre dopant très prometteur est le PbS. Sa bande d'absorption sous forme massive est située aux alentours de 3  $\mu\text{m}$ . Elle peut être décalée vers le visible par confinement quantique. Dans le cas d'un faible élargissement inhomogène de la transition excitonique, de fortes non-linéarités sont prévues [5]. Des nanocristallites de PbS ont été fabriqués dans les verres [6], les polymères [7], en solution [8] ou par sol-gel [9]. La plupart des auteurs ont observé le décalage vers le bleu de la bande d'absorption, mais, à notre connaissance, il n'y a pas de valeurs publiées de l'indice de réfraction non linéaire.

### **2. FABRICATION DES ÉCHANTILLONS**

Des couches minces de  $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$  contenant des nanocristallites de PbS sont fabriquées en utilisant la technique de sol-gel. Le dopage est réalisé par la préparation séparée du sol de la matrice et du sol du dopant [10]. Cette méthode permet d'obtenir une très faible dispersion de

taille des cristallites. Les nanocristallites sont obtenus par la réaction de l'acétate de plomb avec du thioacétamide dans une solution de méthanol qui contient un agent de passivation de surface. La taille des cristallites est contrôlée par la concentration de cet agent. Le sol de la silice est obtenu par mélange de tétraéthoxysilane (TEOS) et de méthyltriéthoxysilane (MTES) dans de l'éthanol avec de l'eau et du HCl. Les deux solutions sont mélangées et le sol du  $\text{TiO}_2$  est ensuite ajouté. Des couches minces sont obtenues par "dip coating" sur un substrat en silice fondue. Un traitement thermique à  $300^\circ\text{C}$  pendant une heure sous atmosphère d'azote assure l'évacuation des solvants et la densification de la couche. Pour obtenir des couches minces d'une épaisseur d'environ  $1\ \mu\text{m}$ , le dépôt successif de 4 à 6 couches est nécessaire. Des couches minces de 70 mol%  $\text{SiO}_2$  et 30 mol%  $\text{TiO}_2$  dopées avec 5 à 25 mol% PbS ont été fabriquées pour la caractérisation linéaire et non linéaire. Toutes les couches supportent au moins un mode guidé à la longueur d'onde de mesure ( $1.064\ \mu\text{m}$ ).

Les spectres d'absorption linéaire des couches minces dopées avec du PbS montrent une bande d'absorption aux alentours de  $1.4\ \mu\text{m}$  (figure 1). La raie d'absorption de la première transition excitonique est visible à  $1.2\ \mu\text{m}$ . Cette raie peut être modélisée par un calcul qui prend en compte l'élargissement inhomogène de la raie dû à la distribution de taille des cristallites. Pour calculer la bande d'absorption en fonction de la taille de cristallites, nous utilisons le modèle des bandes hyperboliques [7]. L'accord entre les courbes expérimentale et théorique est bon (figure 1). Pour l'échantillon dopé avec 10% de PbS, nous obtenons une taille moyenne de  $5.3\ \text{nm}$  avec une dispersion de taille de 13%. Ces valeurs sont en bon accord avec les observations faites au microscope électronique à balayage (MEB). Cette faible distribution de taille est obtenue grâce à la préparation séparée des cristallites et de la matrice.



**Figure 1** : Spectre d'absorption optique d'un échantillon avec 10% de PbS. Les deux courbes de la transition excitonique correspondent à la mesure et au calcul théorique respectivement.

### 3. CARACTÉRISATION NON LINÉAIRE

Les propriétés non linéaires ont été mesurées par deux méthodes différentes qui sont bien adaptées aux mesures de couches minces : les lignes noires non linéaires (LN) et le mélange à quatre ondes (DFWM). Les deux techniques permettent de mesurer la valeur absolue de l'indice de réfraction non linéaire  $n_2$ . Le signe de  $n_2$  peut être déterminé par les lignes noires et le temps de réponse par le DFWM. Nous utilisons différents lasers Nd:YAG à  $1.064\ \mu\text{m}$  en régime nanoseconde (LN: 10 ns/ 10 Hz) et picoseconde mono-coup (LN: 60 ps/ 10 Hz, DFWM: 35 ps/ 5 Hz).

Pour les mesures de lignes noires non linéaires, un prisme à haut indice (SF58) est utilisé pour coupler le faisceau laser dans les couches minces. Dans l'expérience, l'intensité réfléchie est enregistrée en fonction de l'angle d'incidence [11]. Pour les angles de résonance, une partie de l'énergie incidente est couplée dans le guide d'onde et nous observons une ligne noire en

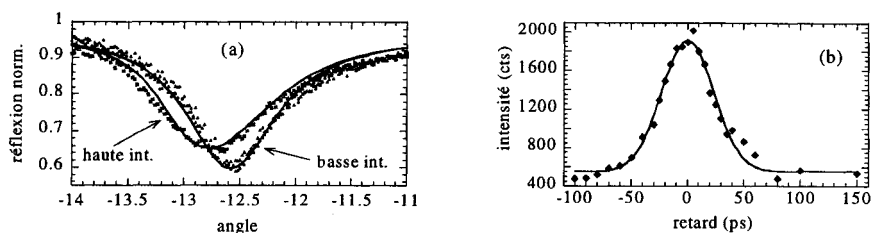
réflexion. Les lignes noires enregistrées sur un échantillon contenant 20% de PbS sont représentées sur la figure 2a. Les deux courbes sont enregistrées respectivement à basse et à haute intensité du faisceau incident. Le décalage vers les plus petits angles de la courbe enregistrée à haute puissance par rapport à celle enregistrée à basse puissance indique un effet non linéaire négatif. L'utilisation d'un faisceau de largeur limitée mène à une distribution inhomogène de l'intensité guidée et par conséquent à des conditions de couplages inhomogènes, ce qui explique la diminution du contraste observée sur la figure 2a. À partir d'un modèle théorique du coupleur distribué [12], nous déduisons l'indice de réfraction non linéaire de ces mesures. La réversibilité de l'effet non linéaire est vérifiée en enregistrant une deuxième courbe à basse intensité, après la mesure à haute intensité. Pour les échantillons fabriqués par sol-gel, nous n'avons pas observé d'effets irréversibles. Les effets du photonoircissement dans un verre dopé classique (Schott OG 530) ont été, néanmoins bien visibles.

**Tableau 1:** Résumé des résultats non linéaires en  $[\text{cm}^2/\text{kW}]$ .

Taux de dopage		5%	10%	15%	20%	25%
lignes noires	10 ns	$-2 \cdot 10^{-8}$	$-3 \cdot 10^{-8}$	$-1 \cdot 10^{-7}$	$-8 \cdot 10^{-8}$	$-1 \cdot 10^{-7}$
	60 ps	-	$-1 \cdot 10^{-10}$	$-2 \cdot 10^{-10}$	$-4 \cdot 10^{-10}$	$-2 \cdot 10^{-9}$
DFWM	35 ps	-	-	-	$8 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-9}$

Les résultats des mesures de  $n_2$  sont résumés dans le tableau 1. En régime nanoseconde nous avons mesuré de fortes non-linéarités négatives de  $10^{-8}$  à  $10^{-7} \text{ cm}^2/\text{kW}$ . Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que pour d'autres nanocristallites de semi-conducteurs [13,14]. En régime picoseconde, les valeurs sont typiquement 100 fois plus petites. Ceci peut être expliqué par la saturation de la non-linéarité. La non-linéarité dans des nanocristallites peut en effet être décrite par la saturation de l'absorption d'un système à deux niveaux. Ce modèle prévoit la saturation de la non-linéarité pour de très fortes intensités. Or l'intensité crête de l'impulsion laser en régime nanoseconde est typiquement  $10\text{-}40 \text{ MW}/\text{cm}^2$ , soit cent fois plus petite qu'en régime picoseconde ( $1000\text{-}4000 \text{ MW}/\text{cm}^2$ ). En régime nanoseconde, nous avons observé une non-linéarité non saturée. Mais en régime picoseconde les effets de saturation sont bien visibles.

Dans le cas du mélange à quatre ondes, deux faisceaux de pompe interfèrent sur l'échantillon et créent un réseau de diffraction par l'intermédiaire de l'effet non linéaire [11]. L'efficacité de diffraction de ce réseau est mesurée par un faisceau sonde. L'indice de réfraction non linéaire peut ensuite être calculé par le modèle du réseau mince. Le signal n'a été assez fort pour déterminer  $n_2$  que pour les deux échantillons les plus fortement dopés (tab. 1). Les valeurs sont en bon accord avec les résultats obtenus par les lignes noires. Sur la figure 2b nous montrons l'intensité diffractée de la sonde en fonction de son retard par rapport aux faisceaux de pompe pour un échantillon dopé avec 20% de PbS. La forme symétrique du pic indique un temps de réponse de la non-linéarité plus court que la durée de l'impulsion laser (30 ps). Comme dans ce cas d'excitation résonante l'effet non linéaire est lié à des transitions réelles, nous en déduisons que le temps de recombinaison des porteurs libres est inférieur à 30 ps. Dans les semi-conducteurs massifs, ce temps est typiquement de l'ordre de la dizaine de nanosecondes. La recombinaison est donc beaucoup plus rapide dans les nanocristallites. Ce fait a été déjà observé par d'autres équipes dans les verres dopés de CdSSe [15]. L'influence du photonoircissement [16] et de l'effet Auger [17] a été démontrée dans ces matériaux.



**Figure 2 :** Résultats non linéaires. (a) Lignes noires d'un échantillon contenant 15% de PbS, enregistrées à basse et haute intensité. Les points correspondent aux mesures et les traits continus au calcul théorique. (b) Intensité diffractée dans l'expérience du mélange à quatre ondes pour un échantillon avec 20% de PbS.

#### 4. CONCLUSION

La technique de sol-gel permet la fabrication de couches minces vitreuses et dopées avec des nanocristallites de semi-conducteur. Le dopage avec PbS engendre des effets non linéaires très intéressants avec un grand potentiel pour des études futures.

#### Références

- [1] Ironside C. N., *Contemp. Phys.* **34** (1993) 1-18.
- [2] F. Kajzar et R. Reinisch, *Beam Shaping and Control with Nonlinear Optics* (Plenum Press, New York, 1998) p. 183-290.
- [3] par ex. Banfi G. P., Degiorgio V. et Tan H. M., *J. Opt. Soc. Am. B* **12** (1995) 621-628.
- [4] Kang K., Kepner A. D., Hu Y. Z., Koch S. W., Peyghambarian N., Li C.-Y., Takada T., Kao Y. et Mackenzie J. D., *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994) 1487-1489.
- [5] Banyai L., Hu Y. Z., Lindberg M. et Koch S. W., *Phys. Rev. B* **38** (1988) 8142-8153.
- [6] Borelli N. F. et Smith D. W., *J. Non-Cryst. Solids* **180** (1994) 25-31.
- [7] Wang Y., Suna A., Mahler W. et Kasowski R., *J. Chem. Phys.* **87** (1987) 7315-7322.
- [8] Nenadic N. T., Comor M. I., Vasic V. et Macic O. I., *J. Phys. Chem.* **94** (1990) 6390-6396.
- [9] Nogami M., Nagasaka K. et Kotani K., *J. Non-Cryst. Solids* **126** (1990) 87-92.
- [10] Guglielmi M., Martucci A., Menegazzo E., Righini G. C., Pelli S., Fick J. et Vitrant G., *J. Sol Gel Science and Techn.* **8** (1997) 1017-1021.
- [11] Fick J., Schell J., Lévy R., Martucci A. et Guglielmi M., *Pure Appl. Opt.* **6** (1997) 527-535.
- [12] Vitrant G., Reinisch R., Kajzar F. *Opt. Eng.* **34** (1995) 3418-3427.
- [13] Fick J., Vitrant G., Martucci A., Guglielmi M., Pelli S. et Righini G. C., *Nonlin. Opt.* **12** (1995) 203-209.
- [14] Yumoto J., Fukushima S. et Kubodera K., *Opt. Lett.* **12** (1987) 832-833.
- [15] par ex. Cotter D. Ironside C. N., Ainslie B. J. et Girdlestone H. P., *Opt. Lett.* **14** (1989) p. 317-319.
- [16] Roussignol P., Ricard D., Lukasik J. et Flytzanis C. *J. Opt. Soc. Am B* **4** (1987) 5-13.
- [17] Ghanassi M., Schanne-Klein M. C., Hache F., Ekimov A. I., Ricard D., Flytzanis C., *Appl. Phys. Lett.* **62** (1993) 78-80.

## **Influence de la saturation des niveaux d'impuretés sur la dynamique de la luminescence de couches épitaxiées de nitrure de gallium**

H. Haag, B. Hönerlage, P. Gilliot et R. Lévy

*Groupe d'Optique Non Linéaire et d'Optoélectronique, Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, UMR 7504 du CNRS, ULP, 23 rue du Loess, BP. 20 CR, 67037 Strasbourg cedex, France*

**Résumé :** Nous avons étudié la dynamique de la luminescence de couches épitaxiées de nitrure de gallium sur substrat de saphir. Sous fortes intensités d'excitation, nous observons une augmentation du temps de recombinaison de la luminescence jaune. Ces résultats s'interprètent à l'aide de niveaux d'impuretés situés 1 eV au-dessus de la bande de valence, jouant un rôle de réservoir saturable.

### **1. INTRODUCTION**

Le nitrure de gallium est un semi-conducteur dont le gap est de 3,5 eV à température ambiante [1]. Il suscite actuellement un vif intérêt pour diverses raisons. Tout d'abord, ce matériau permet la fabrication de diodes et de lasers émettant dans le bleu [2]. L'utilisation de lasers bleus présente plusieurs avantages, dont le plus important concerne le stockage de l'information. En effet, plus la longueur d'onde du faisceau est faible et plus sa tache de focalisation sera petite. Avec une diode laser bleue émettant à 350 nm, il serait ainsi possible de stocker quatre fois plus d'informations, à surface égale, qu'avec les diodes laser rouges actuelles émettant à 635 nm. D'autres applications sont également possibles [3], notamment dans le domaine de l'éclairage domestique puisque, à l'aide de diodes électroluminescentes à base de nitrure, il est désormais possible de recréer l'intégralité du spectre visible. En effet, les alliages GaInN et GaAlN permettent de couvrir la région de 1,95 à 6,20 eV de manière continue suivant la concentration d'indium ou d'aluminium. L'enjeu commercial est considérable lorsque l'on sait que les diodes électroluminescentes consomment deux fois moins d'énergie que les ampoules à incandescence classiques et que leur durée de vie pourrait être de plusieurs années. Actuellement, la durée de vie des lasers bleus est relativement limitée [4] (environ 1000 h), ce qui est probablement dû à la mauvaise qualité cristalline des couches.

Historiquement, le développement des lasers à base de GaAs et de ZnSe a montré que la compréhension de la dynamique de recombinaison des porteurs a été le facteur clé pour la réalisation de lasers à semi-conducteurs. Nous pouvons supposer qu'il en sera de même pour les nitrures de la famille III-V. C'est dans ce cadre que se situent nos travaux.

Notre étude porte sur un échantillon de GaN de 2  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, obtenu par MOCVD sur substrat de saphir. Il existe un important désaccord de maille entre la couche de GaN et

son substrat (13 %), ce qui induit un nombre important de défauts structuraux. Ils donnent lieu à des états pièges situés environ 2,3 eV au-dessus de la bande de valence. Ces niveaux sont responsables d'une large bande d'émission dans le jaune. La figure 1 présente le spectre de luminescence d'un échantillon de GaN où nous pouvons observer, outre la luminescence jaune, une forte raie d'émission dans le proche UV (3,42 eV) correspondant à la recombinaison radiative des porteurs de la bande de conduction avec les trous de la bande de valence. Notre but est de déterminer la dynamique de la luminescence jaune et de la luminescence bleue et de les comparer.

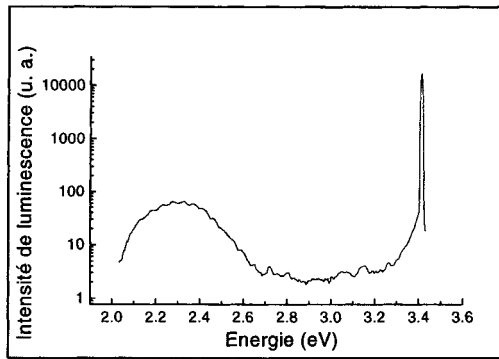


Figure 1 : Luminescence intégrée en temps d'un échantillon de GaN.

## 2. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Nous excitons l'échantillon à une énergie de photon de 4,66 eV avec la quatrième harmonique d'un laser Nd:YAG pulsé, émettant des impulsions de 25 ps à 5 Hz. Le signal de luminescence est mesuré par une caméra à balayage de fente (Streak camera) avec une résolution temporelle de 5 ps. Nous séparons la luminescence bleue de la luminescence jaune à l'aide de filtres interférentiels et étudions, à température ambiante, la dynamique des luminescences bleues et jaunes pour différentes intensités d'excitation.

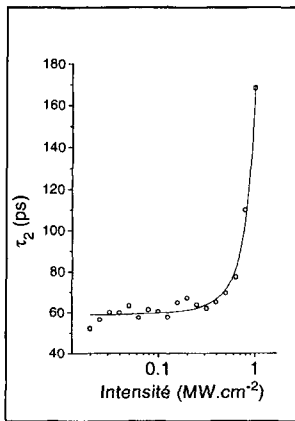
Nous observons deux régimes d'excitation. Pour des faibles intensités ( $I < 500 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) nous ajustons le comportement temporel de la luminescence bleue par une bi-exponentielle, dont les temps caractéristiques sont  $\tau_1 = 25 \text{ ps}$  et  $\tau_2 = 60 \text{ ps}$ . Le temps de déclin de la luminescence jaune est inférieur à notre résolution expérimentale, limitée par la durée des impulsions laser. Pour de plus fortes intensités d'excitation ( $I > 500 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ ), nous observons un comportement de seuil. Il apparaît en effet une brusque augmentation de  $\tau_2$  qui atteint 170 ps pour une intensité de  $1 \text{ MW} \cdot \text{cm}^{-2}$  (cf. figure 2). Pour ces mêmes intensités, la luminescence jaune présente un temps de déclin de 430 ps (cf. figure 3). Ce comportement est manifestement dû à une saturation de niveaux.

Pour rendre compte du comportement observé nous devons considérer, outre les états de bandes et les niveaux des états pièges responsables de la luminescence jaune, des niveaux d'impuretés dont plusieurs travaux ont montré l'existence [5]. Ces niveaux correspondraient à des centres profonds, situés 1 eV au-dessus de la bande de valence et seraient dus à des impuretés (oxygène ou carbone) ou à des défauts structuraux [6] (centres d'inversions). À faible intensité, ils joueraient le rôle d'un canal de recombinaison non radiatif des porteurs

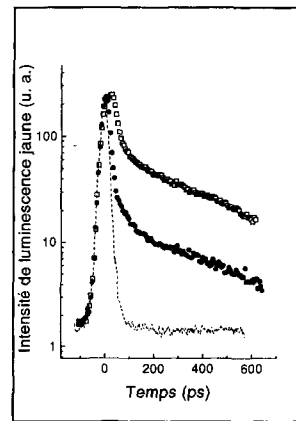
concurrent du canal responsable de la luminescence jaune. Par conséquent, nous modélisons, notre expérience par le système d'équations couplées suivant (cf. figure 4):

$$\begin{cases} \frac{dn_C}{dt} = G(t) - \frac{1}{\tau_{CV}} n_C - \frac{1}{\tau_{CP}} n_C - \frac{1}{\tau_{CI}} n_C \left(1 - \frac{n_I}{n_I^0}\right) \\ \frac{dn_P}{dt} = \frac{1}{\tau_{CP}} n_C - \frac{1}{\tau_{PV}} n_P - \frac{1}{\tau_{PI}} n_P \left(1 - \frac{n_I}{n_I^0}\right) \\ \frac{dn_I}{dt} = \frac{1}{\tau_{CI}} n_C \left(1 - \frac{n_I}{n_I^0}\right) + \frac{1}{\tau_{PI}} n_P \left(1 - \frac{n_I}{n_I^0}\right) - \frac{1}{\tau_{IV}} n_I \end{cases} \quad (1)$$

où  $n_C$ ,  $n_P$  et  $n_I$  représentent respectivement la densité de porteurs de la bande de conduction, des états pièges (2,4 eV) et des états d'impuretés (1,0 eV).  $\tau_{CP}$  représente le temps de relaxation de la bande de conduction vers les états pièges,  $\tau_{CI}$  celui de la bande de conduction vers les états d'impuretés,  $\tau_{CV}$  celui de la bande de conduction vers la bande de valence,  $\tau_{PV}$  celui des états pièges vers la bande de valence,  $\tau_{PI}$  celui des états pièges vers les états d'impuretés et  $\tau_{IV}$  celui des états d'impuretés vers la bande de valence.  $G(t)$  décrit la génération des porteurs par l'excitation lumineuse et  $n_I^0$  représente la densité d'impuretés.



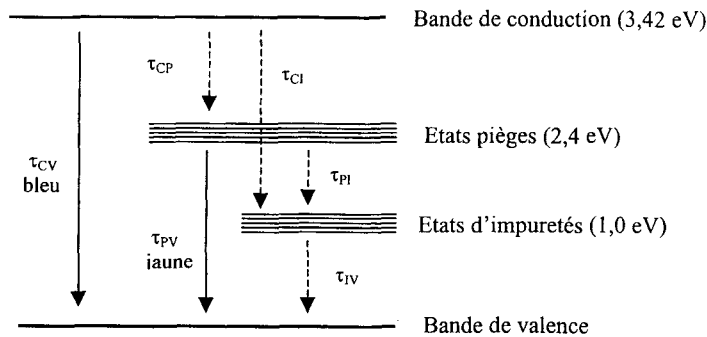
**Figure 2 :** Second temps de recombinaison de la luminescence bleue en fonction de l'intensité d'excitation.



**Figure 3 :** Variation temporelle de la luminescence jaune pour différentes intensités (carrés: 650 kW.cm<sup>-2</sup>, ronds: 550 kW.cm<sup>-2</sup>, pointillés: 400 kW.cm<sup>-2</sup>).

À faible intensité, la solution du système (1) pour la densité de porteurs de la bande de conduction  $n_C$  est une double exponentielle, ce qui est en accord avec l'expérience. Le temps de recombinaison des porteurs de la bande de conduction ayant été déterminé précédemment par des mesures de mélange d'ondes [7], nous attribuons le temps de 25 ps au temps de relaxation des porteurs de la bande de conduction vers les différents états localisés ( $\tau^{-1} = \tau_{CP}^{-1} + \tau_{CI}^{-1}$ ). La courte durée de ce processus laisse supposer une forte influence des processus non radiatifs (des temps de l'ordre de dix nanosecondes sont prédits théoriquement pour des échantillons de très bonne qualité). Au vu du temps de recombinaison de la luminescence jaune, nous pouvons supposer qu'il en est de même pour les porteurs piégés, qui se recombinent principalement de manière non radiative.

Pour de fortes intensités, la saturation des niveaux profonds supprime largement le canal non radiatif ( $n_1 = n_1^0$ ), ce qui rend accessibles les temps  $\tau_{CP}$  et  $\tau_{PV}$ . Nous obtenons  $\tau_{CV} \geq 170$  ps et  $\tau_{PV} = 430$  ps.



**Figure 4 :** Schéma de niveaux dans le nitrure de gallium. Traits pleins : recombinaison radiative. Tirets : recombinaison non radiative.

### 3. CONCLUSION

Nous avons étudié la dynamique de la luminescence du nitrure de gallium en régime picoseconde. Pour de faibles intensités d'excitation, la luminescence bleue décroît de manière bi-exponentielle avec des temps de relaxation de 25 et de 60 ps. Le temps de déclin de la luminescence jaune est très rapide, ce qui laisse supposer un rôle important des processus non radiatifs. Ce canal serait, entre autres, dû à des centres profonds, situés 1 eV au-dessus de la bande de valence. À forte intensité d'excitation, nous avons mis en évidence la saturation de ces niveaux.

### Remerciements.

Ce travail a été effectué sur des échantillons élaborés au groupe d'étude des semiconducteurs de Montpellier, par Messieurs O. Briot et R.L. Aulombard. Nous tenons à les remercier pour leur collaboration.

### Références

- [1] Monemar B., *Phys. Rev. B*, **10** (1974) 676.
- [2] Rigby P., *Nature*, **384** (1996) 610.
- [3] Nakamura S et Fasol G. "The blue laser diode – GaN based light emitters and lasers", Springer-Verlag Berlin Heidelberg (1997).
- [4] Nakamura S., Mukai T et Senoh M., *Appl.Phys. Lett.* **64** (1994) 1687.
- [5] Kim D., Libon I. H., Voelkmann C., Shen Y. R. et Petrova-Koch V., *Phys. Rev. B* **55** (1997) 4907.
- [6] Calleja E., Sánchez F.J., Basak D., Sánchez-García M.A., Muñoz E., Izpura I., Calle F., Tijero J. M. G., Beamont B., Lorenzini P. et Gibart P., *Phys. Rev. B* **55** (1997) 4689.
- [7] Haag H., Petit S., Gilliot P., Lévy R., Briot O., et Aulombard R.L., *Mat. Sci. and Eng. B* **50**, 197 (1997).



## Index auteurs

Brignon (A.) - Correction dynamique des distorsions de faisceaux laser par interactions non linéaires.....	351
De Micheli (M.P.) - Quasi-accord de phase et interactions non linéaires en optique intégrée.....	203
Fick (J.), Martucci (A.), Guglielmi (M.) - Couches minces fabriquées par sol-gel pour des applications en optique non linéaire.....	393
Giacobino (É.) - Effets non linéaires et fluctuations quantiques.....	185
Gilliot (P.) - voir Haag (H.).....	397
Guglielmi (M.) - voir Fick (J.).....	393
Haag (H.), Hönerlage (B.), Gilliot (P.), Lévy (R.) - Influence de la saturation des niveaux d'impuretés sur la dynamique de la luminescence de couches épitaxiées de niture de gallium .....	397
Hönerlage (B.) - Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire .....	89
Hönerlage (B.) - voir Haag (H.).....	397
Le Gouët (J.L.) - Holographie spectro-temporelle.....	333
Lévy (R.) - voir Haag (H.).....	397
Martucci (A.) - voir Fick (J.).....	393
Pauliat (G.), Roosen (G.) - L'effet photoréfractif .....	235
Panel (R.) - Propriétés optiques des semi-conducteurs et de leurs hétérostructures .....	3
Roosen (R.) - voir Pauliat (G.).....	235
Vitrant (G.) - Effets non linéaires en optique guidée .....	157



## LISTE DES PARTICIPANTS

ALSHIKH KHALIL Mohammad

LEMO-ENSERG, 23 rue des Martyrs, BP. 257, 38016 Grenoble cedex 1, France

ARON Astrid

Laboratoire Chimie Appliquée de l'État Solide, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris cedex 05, France

BALDA Rolindes

ETSII y TELECOM, Departamento Fisica Aplicada 1, Alameda Urquijo S/N, 48013 Bilbao, Espagne

BIGOT Jean-Yves

IPCMS-GONLO, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg cedex, France

BOUCHER Vincent

POMA, Université d'Angers, 2 boulevard Lavoisier, 49045 Angers cedex, France

BOUZINAC Jean-Pierre

ONERA CERT, Dota LOE, 2 avenue Edouard Belin, 31055 Toulouse cedex 4, France

BRETAGNON Thierry

GES, Université Montpellier 2, Place E. Bataillon, C.C. 074, 34095 Montpellier cedex 05, France

BRIDOU Françoise

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

BRIGNON Arnaud

Thomson CSF LCR, Domaine de Corbeville, 91404 Orsay cedex, France

CHAVEL Pierre

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

DEBRUS Solange

Laboratoire d'Optique des Solides, Université Pierre et Marie Curie, T. 13, C.C. 80, 75252 Paris cedex 05, France

DE MICHELI Marc

Laboratoire de Physique de la Matière Condensée, Université de Nice, Parc Valrose, 06108 Nice cedex 2, France

FERNANDEZ Joaquin

ETSII y TELECOM, Departamento Fisica Aplicada, Alda Urquijo S/N, 48013 Bilbao, Espagne

FICK Jochen

LEMO-ENSERG, 23 rue des Martyrs, BP. 257, 38016 Grenoble cedex, France

GATTO Alexandre

LOSCM ENSPM, Domaine Universitaire de Saint-Jérôme, 13397 Marseille cedex 20, France

GIACOBINO Élisabeth

Laboratoire Kastler-Brossel, Université Paris 6, Tour 12, 4 place Jussieu, BP. 74, 75252 Paris cedex 05, France

HAAG Hervé

IPCMS-GONLO, 23 rue du Loess, BP. 20 CR, 67037 Strasbourg cedex, France

HAIDOUX Abel

LPMC, Université Montpellier 2, Place E. Bataillon, C.C. 003, 34095 Montpellier cedex 5, France

HÖNERLAGE Bernd

IPMC-GONLO, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg cedex, France

JEAN Frédérique

ISEB, 20 rue Cuirassé Bretagne, 29604 Brest cedex, France

JONATHAN Jean-Michel

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

LEDOUX Isabelle

LPQM, École Normale Supérieure de Cachan, 61 avenue du Président Wilson, 94235 Cachan cedex, France

LE FLOCH Sébastien

ISEB, 20 rue Cuirassé Bretagne, ZAC de Keredern, 29604 Brest cedex, France

LEFEBVRE Pierre

GES, Université Montpellier 2, Place E. Bataillon, C.C. 074, 34095 Montpellier cedex 5, France

LE GOUËT Jean-Louis

Laboratoire Aimé Cotton, Centre Scientifique d'Orsay, bâtiment 505, 91405 Orsay cedex, France

LÉVY Roland

IPCMS-GONLO, 23 rue du Loess, BP. 20 C.R., 67037 Strasbourg cedex, France

MONTAGNE Jean-Eucher

CILAS, Route de Nozay, BP. 27, 91460 Marcoussis, France

PAULIAT Gilles

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

PLANEL Richard  
Laboratoire de Microstructures et de Microélectronique, 196 avenue H. Ravera, BP. 107,  
92225 Bagneux cedex, France

POULAT Michel  
CILAS, Route de Nozay, BP. 27, 91460 Marcoussis, France

PROT Dominique  
IUFM, 10 rue Molitor, 75016 Paris, France

QUÉLIN Xavier  
LMOV, Université de Versailles, bâtiment Fermat, 45 avenue des États-Unis,  
78035 Versailles, France

RABIBISOA Ulianova  
Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique , BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

RAGER Sophie  
ESPEO, 12 rue de Blois, BP. 6744, 45067 Orléans cedex 2, France

RESTOIN Christine  
IRCOM, C2M, 123 avenue A. Thomas, 87060 Limoges cedex, France

RICARD Daniel  
Laboratoire d'Optique Quantique, École Polytechnique, 91128 Palaiseau cedex, France, et  
*nouvelle adresse* : Laboratoire Aimé Cotton, Centre Scientifique d'Orsay, bâtiment 505,  
91405 Orsay cedex, France

RIGNEAULT Hervé  
LOSCM, ENSPM, Domaine Universitaire Saint-Jérôme, 13397 Marseille cedex 20, France

ROCH Jean-François  
LPQM, École Normale Supérieure de Cachan, 61 avenue du Président Wilson, 94235 Cachan  
cedex, France

SAGET Jean-Claude  
Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique , BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

SANTRAN Stéphane  
CPMOH, 351 cours de la Libération, 33405 Talence, France

SANZ MONASTERIO Mikel  
ETSII y TELECOM, Departamento Fisica Aplicada 1, Alameda Urquijo S/N, 48013 Bilbao,  
Espagne

SEGAUD Jean-Pierre  
DOTA/ONERA, Fort de Palaiseau, 91761 Palaiseau cedex, France

SMEKTALA Frédéric

Laboratoire Verres et Céramiques, Université Rennes 1, Campus de Beaulieu, 35042 Rennes cedex, France

SOTO ORTIZ Horacio

CICESE - Fisica Aplicada, Km 107 Carr. Tijuana-Ensenada, 22860 Ensenada B.C., México

VITRANT Guy

LEMO-ENSERG, 23 rue des Martyrs, BP. 257, 38016 Grenoble cedex, France

VOLLE Ronald

POMA, Université d'Angers, 2 boulevard Lavoisier, 49045 Angers cedex, France

ZAQUINE Isabelle

ENST, Département TSI, 46 rue Barrault, 75634 Paris cedex 13, France

## Liste des cours et des exposés de stagiaires

### Cours

- J.F. ROCH – Principe fondamentaux de l'optique non linéaire (7 h 30).  
(Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire, ENS, Cachan)
- B. HÖNERLAGE – Méthodes expérimentales de l'optique non linéaire (4 h 30).  
(IPCMS-GONLO, Strasbourg)
- J.Y. BIGOT – Relaxations rapides.  
(IPCMS-GONLO, Strasbourg)
- G. VITRANT – Effets non linéaires en optique guidée (3 h).  
(LEMO-ENSERG, Grenoble)
- É. GIACOBINO – Effets non linéaires et fluctuations quantiques (3 h).  
(Laboratoire Kastler Brossel, Paris)
- M. DE MICHELI – Quasi-accord de phase et interactions non linéaires en optique intégrée (3 h). – (Laboratoire de physique de la matière condensée, Nice)
- R. PLANEL – Propriétés optiques des semi-conducteurs et de leurs hétérostructures (7 h 30).  
(L2M-CNRS, Bagnex)
- I. LEDOUX – Matériaux organiques pour l'optique non linéaire et le traitement du signal (7 h 30). – (Laboratoire de Photonique Quantique et Moléculaire, ENS, Cachan)
- G. PAULIAT – L'effet photoréfractif (7 h 30).  
(Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique)
- D. RICARD – Les nano cristaux semi-conducteurs ou boîtes quantiques (1 h 30).  
(Laboratoire d'Optique Quantique, École Polytechnique, Palaiseau)
- J.L. LE GOUËT – Holographie spectro-temporelle (1 h 30).  
(Laboratoire Aimé Cotton, Orsay)
- A. BRIGNON – Correction dynamique des distorsions de faisceaux laser par interactions non linéaires (2 h 30). – (Thomson-CSF-LCR)

### Exposés de stagiaires

- J. FERNANDEZ – Anti-Stokes Cooling of a Solid:  $Y^{3+}$ .  
(Spectroscopy Laser, ETSII y TELECOM, Bilbao)
- J. FICK – Couches minces fabriquées par sol-gel pour des applications en optique non linéaire. – (LEMO, Grenoble)
- H. HAAG – Étude des non-linéarités optiques du nitrure de gallium.  
(IPCMS-GONLO, Strasbourg)
- U. RABIBISOA – Élaboration et caractérisation de couches minces de  $(Pb, La)TiO_3$  pour l'optique non linéaire. – (Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique)
- F. SMEKTALA – Matériaux vitreux pour l'optique non linéaire du 3<sup>e</sup> ordre.  
(Laboratoire des Verres et Céramiques, Rennes)
- H. SOTO ORTIZ – Études de non-linéarités dans un amplificateur optique à semi-conducteur.  
(CICESE-Física Aplicada, Ensenada, Mexique)
- I. ZAQUINE – Génération de réseaux d'indices efficaces et de grande durée de vie dans CdMnTe. – (ENST/TSI, Paris)

