

Matériaux photoréfractifs.

Philippe Delaye et Gérald Roosen

*Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (UMR CNRS 8501)
Bât. 503, Centre scientifique d'Orsay, B.P. 147,
F-91403 ORSAY CEDEX, FRANCE*

Philippe.delaye@iota.u-psud.fr
Site web : <http://www.iota.u-psud.fr>

Résumé. Les matériaux photoréfractifs sont les matériaux parmi les plus utilisés dans les dispositifs basés sur l'holographie dynamique. De nombreuses applications utilisant ces matériaux sont développées et certaines ont maintenant débouché sur des dispositifs disponibles commercialement. Par ailleurs la recherche sur l'optimisation et l'augmentation des performances des matériaux photoréfractifs reste très active. Le but de cet article est de présenter les phénomènes et les équations à la base de l'effet photoréfractif. Les paramètres régissant l'effet photoréfractif et leurs liens avec les caractéristiques physiques du matériau sont décrits. Dans un second temps, les montages de bases qui permettent d'utiliser l'effet photoréfractif (diffraction et mélange à deux ondes) sont présentés en insistant sur leur utilisation pour la caractérisation des matériaux.

Mots-clés. Effet photoréfractif, mélange d'ondes, holographie, transport de charges, optique non linéaire.

Découvert à la fin des années soixante comme un effet indésirable dans les modulateurs électro-optiques en LiNbO_3 [ASH66], le « dommage optique » est très vite devenu « l'effet photoréfractif » quand on a montré qu'il était possible de l'utiliser pour l'enregistrement d'hologrammes dynamiques [CHE68]. Les principales caractéristiques de l'effet photoréfractif sont alors rapidement identifiées. La création de la variation d'indice est sensible à l'énergie optique reçue et non pas à la puissance de l'onde optique comme dans les autres effets non linéaires. L'effet est non résonant puisqu'un même échantillon est sensible sur une large bande spectrale (souvent plusieurs centaines de nanomètres). La variation d'indice peut être conservée dans le noir (effet mémoire), et effacée (réversibilité) en éclairant le cristal par une illumination uniforme, ou en le chauffant. Enfin l'amplitude de la variation d'indice peut être contrôlée en appliquant un champ électrique au cristal. L'effet photoréfractif permet donc d'écrire dans ces matériaux des hologrammes dynamiques, c'est-à-dire des hologrammes qui sont auto-développants, effaçables et réinscriptibles.

Il a ensuite fallu une dizaine d'années pour modéliser l'effet photoréfractif [KUK79] et identifier les principales familles de matériaux dans lesquelles cet effet existe : les ferroélectriques (BaTiO_3 , $\text{Ba}_{0,77}\text{Ca}_{0,23}\text{TiO}_3$, $\text{Sr}_{0,61}\text{Ba}_{0,39}\text{Nb}_2\text{O}_6$, KNbO_3 , LiNbO_3), les sillénites ($\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$, $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$) et les composés semi-conducteurs III-V (GaAs, InP, GaP) et II-VI (CdTe, ZnTe). Tous ces matériaux ont en commun deux propriétés. Ils sont isolants ou semi-isolants dans le noir et deviennent conducteurs lorsqu'on les éclaire avec des photons d'énergie inférieure à leur énergie de bande interdite. Ils sont électro-optiques et présentent de l'effet Pockels (matériaux non centrosymétriques). La première propriété est responsable de la création dans le matériau d'un champ de charge d'espace qui reproduit la structure d'illumination, tandis que la seconde transforme ce champ de charge d'espace en variation d'indice. Depuis la découverte de l'effet photoréfractif, les études ont cherché à obtenir une meilleure compréhension des mécanismes mis en jeu dans les différentes classes de matériaux, dans le but d'améliorer leur performances et d'étendre leur gamme de sensibilité spectrale. Grâce à ces travaux, nous avons à ce jour une bonne connaissance des propriétés des différents matériaux photoréfractifs. Nous sommes à même de choisir, pour des applications ciblées, le cristal photoréfractif qui sera le mieux adapté. Nous pouvons prédire les performances qu'il aura lorsqu'il sera inséré dans le composant ou le système et indiquer les directions vers lesquelles se diriger pour améliorer ces performances.

Le but de cet article est de présenter brièvement l'état actuel des connaissances sur la photoréfractivité. Une présentation plus détaillée des propriétés de l'effet photoréfractif peut être trouvée dans les références [PAU00] et [SOL96].

1. EXPRESSION DU GAIN PHOTORÉFRACTIF

L'effet photoréfractif est présent dans les matériaux photoconducteurs et électro-optiques. La photoconduction permet de redistribuer optiquement des charges dans un défaut profond présent dans le matériau et crée un champ de charge d'espace, qui est transformé en une variation d'indice par l'effet électro-optique. D'un côté la photoconductivité dépend de paramètres « extrinsèques » du matériau, principalement liés au dopage, qui sont différents d'un cristal à l'autre, même pour un même type de cristal. De l'autre côté, l'effet électro-optique est un paramètre « intrinsèque » du matériau, identique dans tous les cristaux d'un même type. L'effet photoréfractif est généralement caractérisé par un gain photoréfractif γ , qui détermine l'amplitude de la modulation d'indice inscrite.

1.1. Champ de charge d'espace

1.1.1. Équations du transport de charges

La photoconduction des matériaux photoréfractifs se produit pour des énergies de photons plus petites que l'énergie de bande interdite de ces matériaux. On travaille donc ici dans ce que l'on appelle la bande de transparence des cristaux, même si cette transparence peut être toute relative du fait de la présence de bandes d'absorption. Ce sont ces bandes d'absorption qui sont responsables de la photoexcitation de porteurs libres et donc de la photoconduction. Elles sont liées à la présence, dans la bande interdite, de niveaux d'énergie dus à des défauts profonds (défauts natifs ou liés au dopage) partiellement remplis.

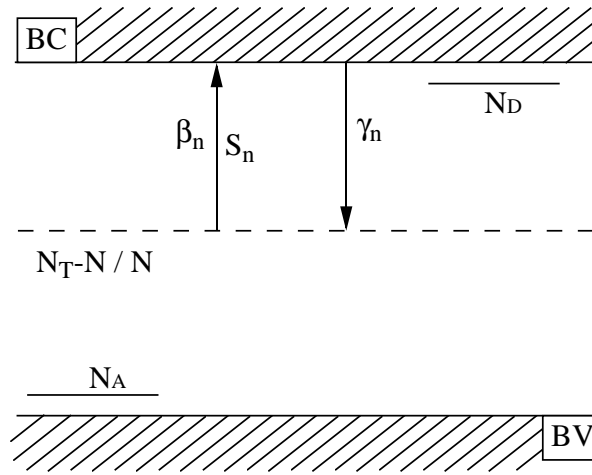


FIG. 1. Diagramme énergétique typique des matériaux semi-isolants en fonction d'une coordonnée d'espace (voir le texte pour la définition des symboles).

La structure de bande des matériaux photoréfractifs peut être plus ou moins complexe, mais, la plupart du temps, elle peut être décrite par un modèle simple (Fig.1) avec un niveau profond en concentration N_T à partir duquel des électrons (ou des trous) peuvent être excités thermiquement ou optiquement, et sur lequel ces mêmes charges peuvent se recombiner. La génération thermique des électrons est donnée par un coefficient d'émission thermique β_n , tandis que la photo-excitation est caractérisée par une section efficace de photo-ionisation S_n et la recombinaison par un coefficient de recombinaison γ_n . Ces paramètres sont caractéristiques du défaut profond sur lequel on travaille. Dans un type de matériau donné, plusieurs dopants sont possibles (par exemple dopage par du fer, du cobalt, du rhodium ou du cérium dans le BaTiO₃), ce qui donne plusieurs jeux de paramètres possibles. En plus du défaut profond, il y a dans le cristal des défauts superficiels donneurs et accepteurs en concentrations N_D et N_A respectivement. Ces défauts superficiels sont supposés optiquement inactifs et ne sont présents que pour assurer la neutralité électrique du matériau. Les charges créées par l'excès de donneurs ou d'accepteurs sont piégées totalement dans le piège profond (ce qui suppose que l'on a $N_T > |N_D - N_A|$). Cela donne un matériau compensé semi-isolant (ou isolant), dans lequel le niveau de Fermi est situé au voisinage du niveau d'énergie du défaut profond. Le défaut profond étant alors partiellement rempli, il est présent dans le matériau sous deux états de charge.

Ce modèle dit d'un seul piège avec un type de porteurs est le plus simple des modèles permettant de décrire l'effet photoréfractif. Lorsque l'on éclaire le matériau avec une structure d'illumination non uniforme, on observe une redistribution des charges dans le piège profond avec création de porteurs libres. Si on suppose maintenant, que la partie neutre des défauts est en concentration $N_T - N$ et que la partie ionisée est en concentration N , cette redistribution des charges se traduit par un changement local des concentrations dans le piège profond et de la population n de porteurs libres. Ces variations sont régies par les équations suivantes :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = (\beta_n + S_n I)(N_T - N) - \gamma_n n N \quad (1)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \text{div } \vec{j}_n / e + (\beta_n + S_n I)(N_T - N) - \gamma_n n N \quad (2)$$

Le premier terme du membre de droite de l'équation (1) représente la création de la partie ionisée du défaut profond par excitation d'électrons à partir de la partie neutre et le second terme la disparition de cette partie ionisée par recombinaison des électrons. L'équation de continuité (2) donne quant à elle la variation de concentration de porteurs libres en tenant compte du courant de charges libres \vec{j}_n , qui est donné par l'équation :

$$\vec{j}_n = en\mu_n \vec{E} + \mu_n k_B T \overline{\text{grad } n} \quad (3)$$

Dans cette équation, μ_n est le module de la mobilité des électrons dans la bande conduction, avec e le module de leur charge, tandis que k_B est la constante de Boltzmann et T la température. Le champ électrique \vec{E} est donné par l'équation de Poisson (avec ϵ la permittivité diélectrique du matériau) :

$$\text{div} \epsilon \vec{E} = -e(N_A - N_D + n - N) \quad (4)$$

L'ensemble de ces équations permet de décrire tous les phénomènes de photoconduction et de transport de charges qui peuvent se produire dans le volume du matériau au cours du temps. La résolution de ces équations aux dérivées partielles vectorielles n'est toutefois pas possible dans le cas général. Il nous faudra faire des hypothèses simplificatrices pour obtenir des expressions analytiques des quantités qui interviennent dans les équations.

1.1.2. Évolution temporelle du champ de charge d'espace

Dans le cas de l'effet photoréfractif, la principale hypothèse est que le cristal est éclairé par une structure d'illumination sinusoïdale de modulation m faible, d'intensité moyenne I_0 et de pas Λ (ou de manière équivalente de vecteur d'onde \vec{k} de module $k = 2\pi/\Lambda$). On a donc :

$$I(\vec{r}) = I_0 \left(1 + \text{Re}(m e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}) \right) \quad (5)$$

Pour résoudre les équations [KUK79], nous allons supposer que les différentes quantités qui interviennent dans les équations (N , n , \vec{j}_n et \vec{E}) s'écrivent sous la même forme $X(t, \vec{r}) = X_0(t) + \text{Re}(X_1(t) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}})$ avec une composante non modulée spatialement X_0 et une composante modulée spatialement d'amplitude X_1 . De plus, on considère que l'illumination incidente est suffisamment faible pour que la quantité de porteurs libres créée reste petite devant les concentrations des différents états de charge du piège profond.

En présence de cette illumination non uniforme, nous assistons donc à une redistribution des charges dans le piège profond. Cela crée un champ de charge d'espace modulé spatialement avec le même pas que la figure d'illumination, et avec une amplitude E_1 dont la cinétique d'établissement est gouvernée par une équation différentielle du premier ordre :

$$\frac{\partial E_1}{\partial t} + \frac{E_1}{\tau} = m \frac{E_{sc}}{\tau} \quad (6)$$

où $m E_{sc}$ est l'amplitude complexe du champ de charge d'espace E_1 à l'état stationnaire (E_{sc} peut être considéré comme un champ de charge d'espace à l'état stationnaire normalisé à une modulation de 1) et τ est le temps de réponse, tous deux donnés par les relations suivantes :

$$E_{sc} = -i \frac{k_B T}{e} \frac{k_o^2}{A_n} \left(\frac{k - iV}{k(k - iV) + k_o^2} \right) \quad (7)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{I_0 e^2}{\epsilon_{eff} \epsilon_0 k_B T k_o^2} \frac{A_n \alpha_n}{k_o^2} \left(\frac{k(k - iV) + k_o^2}{k(k - iV) + \kappa_n^2} \right) \quad (8)$$

où ϵ_0 est la constante diélectrique du vide et ϵ_{eff} la constante diélectrique relative effective du matériau, qui dépend a priori de l'orientation du vecteur réseau par rapport aux axes cristallographiques (nous reviendrons dans le paragraphe suivant sur le calcul de ce terme). Dans ces expressions, $V = (eE_0/k_B T)$, avec le champ électrique externe appliqué au cristal E_0 . On remarque qu'aussi bien τ que E_{sc} sont en général complexes, ce qui traduit pour τ la présence d'un terme d'oscillation et pour E_{sc} un déphasage (décalage spatial) entre la structure d'illumination et le réseau

de champ de charge d'espace. Si le cristal est utilisé sans champ appliqué ($E_0 = 0$), les expressions se simplifient :

$$E_{sc} = -i \frac{k_B T}{e} \frac{1}{A_n} \frac{k}{1 + \frac{k^2}{k_o^2}} \quad (9)$$

$$\frac{1}{\tau} = \frac{I_0 e^2}{\varepsilon_{eff} \varepsilon_0 k_B T} \left(\frac{k^2}{k_o^2} + 1 \right) \left[\frac{A_n \alpha_n}{k^2 + \kappa_n^2} \right] \quad (10)$$

Ainsi, sans champ appliqué au cristal, E_{sc} est imaginaire pur et τ réel. Cela donne un réseau de champ déphasé de $\pi/2$ par rapport au réseau d'illumination et qui s'établit avec une cinétique exponentielle, ce qui est la caractéristique principale de l'effet photoréfractif.

Le modèle de transport de charge permet aussi de calculer, en se limitant aux termes non modulés spatialement, la conductivité du matériau σ_n :

$$\sigma_n = \frac{e^2}{k_B T} \left(\frac{A_n \alpha_n I_0}{\kappa_n^2} \right) \quad (11)$$

Dans les équations précédentes, $A_n = (\beta_n + S_n I_0) / S_n I_0$ rend compte de l'influence de l'émission thermique des porteurs de charge. L'émission thermique responsable d'une génération de charge non modulée spatialement produit un effet identique à une réduction de la modulation des franges d'interférence. Pour un fonctionnement optimal il faut donc une puissance optique minimale afin que la photoconductivité l'emporte sur la conductivité dans le noir. Au delà de cette puissance minimale (A_n tend alors vers 1), E_{sc} sera indépendant de la puissance incidente et τ sera inversement proportionnel à cette puissance incidente. En deçà de cette puissance minimale, le champ de charge d'espace dépendra de la puissance d'illumination et l'évolution de la constante de temps avec l'illumination sera compliquée. La condition de forte illumination est très facilement vérifiée dans les matériaux à grande bande interdite (ferroélectriques et sillénites). Par contre, elle peut devenir une limitation pour certains semi-conducteurs, tels l'InP, qui nécessite une densité de puissance incidente importante ($> 10 \text{ mW.cm}^{-2}$) pour fonctionner de façon optimale.

$\alpha_n = S_n (N_T - N_0)$ correspond à la part de l'absorption qui crée les électrons, tandis que $\kappa_n^2 = (e/k_B T) \gamma_n N_0 / \mu_n$ est le carré de l'inverse de la longueur de diffusion des électrons. Ces paramètres n'interviennent que pour la valeur de la constante de temps, mais pas pour l'amplitude du champ de charge d'espace. Le matériau sera d'autant plus rapide que l'absorption sera forte et la longueur de diffusion des porteurs libres sera longue (*i.e.* κ_n^2 sera petit). Ces deux conditions se combinent pour indiquer que les matériaux seront d'autant plus rapides que leur conductivité sera importante. Ainsi les matériaux ferroélectriques très faiblement conducteurs seront beaucoup plus lents que les sillénites ou les semi-conducteurs.

$k_0^2 = (e^2 / \varepsilon_{eff} \varepsilon_0 k_B T) N_{eff}$ est le carré de l'inverse de la longueur d'écran de Debye, $N_{eff} = (N_T - N_0) N_0 / N_T$ étant la densité effective de piège. Cette densité effective de piège va mesurer la quantité maximale de charge que l'on peut redistribuer dans le piège profond. C'est le seul paramètre du matériau qui influe sur la valeur du champ de charge d'espace. Son influence se fait surtout sentir pour de grandes valeurs de k (*i.e.* pour de petits pas de réseau) ; il donne, lorsque $E_0 = 0$, le nombre d'onde du réseau pour lequel le champ de charge d'espace est maximal. Une valeur de N_{eff} supérieure à 10^{15} cm^{-3} est en général souhaitable. Ce paramètre est variable d'un cristal à l'autre, même pour un type de défaut donné. Il dépendra, bien entendu, de la quantité de dopant introduit lors de la croissance mais aussi d'éventuels traitements post-croissance comme des traitements d'oxydo-réduction qui joueront sur les quantités de donneurs et d'accepteurs superficiels, modulant ainsi le taux d'occupation du défaut profond.

Le modèle décrit est le plus simple qui soit et celui qui permet de décrire le plus facilement le fonctionnement des matériaux photoréfractifs. Toutefois, pour certains matériaux et pour certains types de dopants, des modèles de transports de charges plus complexes doivent être pris en compte, faisant par exemple intervenir les deux types de porteurs simultanément, émis à partir d'un seul [STR86] ou de plusieurs centres [TAY91, BAS94, DEL97B], des états excités des défauts profonds [DEL90] ou différents états de charge d'un même piège [HUO97]. Hormis dans le cas du modèle à deux types de porteurs émis à partir d'un seul piège, ces modèles deviennent rapidement complexes avec de nombreux paramètres inconnus. La résolution des équations de transport de charges est, sauf cas particulier, souvent numérique et les résultats difficilement transposables, même s'ils permettent d'expliquer parfaitement un certain nombre de spécificités de l'effet photoréfractif dans les matériaux étudiés.

La présence simultanée des deux types de porteurs est en général gênante car elle est responsable d'une réduction du champ de charge d'espace par un phénomène de compétition électron-trou (régé en première approximation par un coefficient de compétition électron-trou ξ_0 , coefficient multiplicatif de module inférieur à 1 apparaissant dans l'expression de E_{sc}). Le signe du champ de charge d'espace dépend du type de porteurs majoritairement excités. La réduction peut même aller jusqu'à une annulation complète du gain photoréfractif dans certains cristaux à certaines longueurs d'onde, avec changement du signe du gain photoréfractif avec la longueur d'onde [DEL94]. La compétition électron-trou est surtout sensible dans les matériaux semi-conducteurs dans lesquels le niveau profond est proche du milieu de bande interdite. Elle dépend des concentrations des deux états de charge du défaut profond fixées par la position précise du niveau de Fermi par rapport au niveau profond.

1.1.3. Détermination des paramètres photoréfractifs

Les différents paramètres qui interviennent dans les expressions précédentes (k_0^2 , κ_n^2 , ...), peuvent être déterminés au moyen d'une simple mesure des caractéristiques photoréfractives d'un cristal (champ de charge d'espace et temps de réponse). Par exemple, une mesure de la position du maximum du champ de charge d'espace en fonction du nombre d'onde du réseau (Fig. 2) donne directement une mesure de k_0^2 et donc de la densité effective de piège.

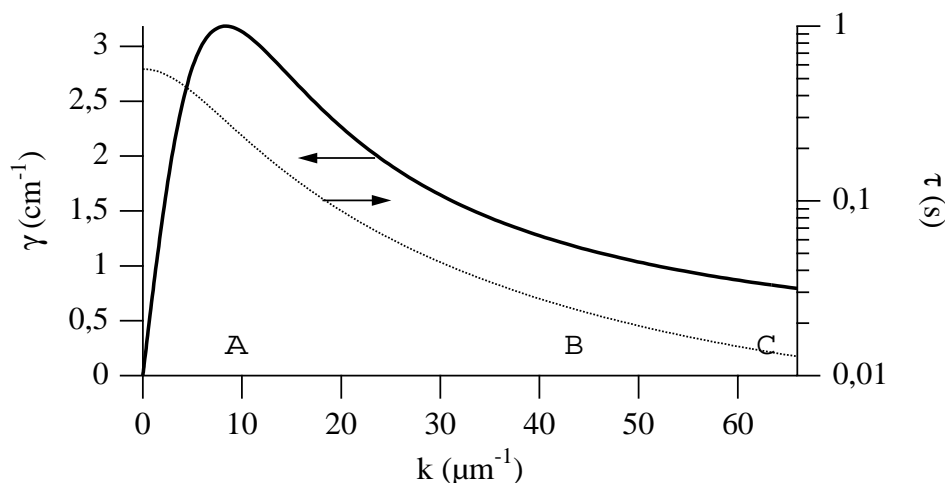


FIG. 2. Courbe d'évolution théorique du gain photoréfractif γ et de la constante de temps τ en fonction du nombre d'onde du réseau pour des valeurs typiques des matériaux ferroélectriques. Les zones grisées indiquent les valeurs de k accessibles expérimentalement avec des faisceaux copropageants (A), incidents sur des faces à 90° (B), et contrepropageants (C).

Toutefois la liaison de ces paramètres « apparents » de l'effet photoréfractif avec les paramètres « microscopiques » du défaut profond (section efficace de photoionisation, concentration, ...) devra être effectuée avec précaution. Les paramètres photoréfractifs « apparents » sont déterminés indépendamment de la connaissance de la nature exacte du piège profond. En effet, des modèles de transport de charges plus complexes (modèles à trois états de charge, modèles à deux pièges, ...) peuvent donner des lois d'évolution en fonction des paramètres externes (nombre d'onde du réseau, champ appliqué, ...) similaires à celles du modèle simple décrit précédemment. Ainsi, la loi usuelle de dépendance du champ de charge d'espace avec k (loi en $\xi_0 k / (1 + k^2/k_0^2)$, [Fig. 2](#)) peut rester valable en présence de pièges multiples. Ce sont simplement les expressions exactes des paramètres k_0 et ξ_0 en fonction des paramètres microscopiques qui changent [[DEL97B](#)]. Les mesures photoréfractives peuvent ne pas être suffisantes pour déterminer de manière indubitable le modèle de transport de charge adapté à un cristal donné. L'identification du (ou des) piège(s) profond(s) ne pourra être effectuée qu'avec l'aide de techniques usuelles de spectroscopie des défauts profonds (spectres d'absorption et de photoconductivité, résonance paramagnétique électronique (EPR), dichroïsme circulaire magnétique (MCD), spectroscopie des transitoires des défauts profonds (DLTS, DLOS), ...) [[DEL94](#), [DEM96](#), [HUO97](#)].

1.2. Tenseur électro-optique effectif

Pour révéler le réseau de champ de charge d'espace, on le transforme en réseau d'indice de même fréquence spatiale à l'aide de l'effet Pockels. L'effet électro-optique Pockels décrit la variation d'indice induite dans un matériau par l'application d'un champ électrique statique (à l'échelle de temps de la période de l'onde optique). Le tenseur électro-optique $[r]$ permet alors de relier la variation du tenseur d'imperméabilité $[\eta]$ du matériau au champ électrique appliqué \vec{E} . Le tenseur d'imperméabilité lie le champ électrique \vec{E}_ω de l'onde optique au déplacement électrique \vec{D}_ω de cette même onde suivant la relation $\epsilon_0 \vec{E}_\omega = [\eta] \vec{D}_\omega$. $[\eta]$ est le tenseur inverse du tenseur de permittivité diélectrique relative $[\epsilon_\omega^r]$. En présence du champ électrique, $[\eta]$ subit une variation $[\Delta\eta(\vec{E})]$, qui vaut, en notation tensorielle [[NYE61](#)]:

$$\Delta\eta_{ij}(\vec{E}) = r_{ijk} E_k \quad (12)$$

L'expression tensorielle équivalente décrivant la variation du tenseur de permittivité diélectrique relative est :

$$[\Delta\epsilon_\omega^r(\vec{E})] = -[\epsilon_\omega^r]([r]\vec{E})[\epsilon_\omega^r] \quad (13)$$

Suivant la classe de symétrie du matériau utilisé, un certain nombre des coefficients r_{ijk} sont nuls ou égaux entre eux, ce qui réduit fortement le nombre de coefficients.

Lors des mesures conduites sur les modulateurs électro-optiques, il est très vite apparu qu'à l'effet Pockels d'origine purement électronique il fallait ajouter un effet électro-optique indirect. Cet effet électro-optique indirect est lié à la création de déformations dans le matériau par effet piézo-électrique. Ces déformations se transforment elle-mêmes en variation d'indice, par l'action de l'effet élasto-optique [[NYE61](#)]. Cet effet mécanique n'existant que si la fréquence du champ appliqué est suffisamment faible pour que le matériau puisse se déformer, deux types de coefficients électro-optiques ont été définis. Les coefficients électro-optiques r_{ij}^T dits « à contrainte nulle » (correspondant aux coefficients dits « unclamped », ou encore « stress-free ») notés avec un exposant T correspondent à des coefficients mesurés à basse fréquence du champ électrique, *i.e.* bien en deçà des fréquences de résonances piézo-électriques. Dans cette zone de fréquence, le cristal a le temps de suivre les déformations imposées par l'effet piézo-électrique ; il se déforme continûment et ne subit donc pas de contraintes. Pour les mesures à hautes fréquences, *i.e.* bien au-delà des fréquences de résonances piézo-électriques, le cristal n'a pas le temps de suivre les déformations imposées par l'effet piézo-électrique ; il ne se déforme plus, mais subit des contraintes internes. Les coefficients électro-optiques

notés r_{ij}^S sont alors dits « à déformation nulle » (correspondant aux coefficients dits « clamped », ou encore « strain-free ») notés avec un exposant S . Le tenseur électro-optique « à déformation nulle » $[r^S]$ est relié au tenseur électro-optique « à contrainte nulle » $[r^T]$, par la relation : $r_{ijk}^T = r_{ijk}^S + p_{ijmn}^E d_{kmn}$ avec $[d]$ le tenseur piézo-électrique direct, et $[p^E]$ le tenseur élasto-optique à champ électrique constant.

La question qui s'est longtemps posée concernant l'effet photoréfractif était de savoir lequel de ces deux types de coefficients intervenait dans la variation d'indice induite par le champ de charge d'espace. Les études [PAU91, GUN91] ont montré que la prise en compte de l'effet électro-optique indirect était nécessaire mais que dans le cas général ni le coefficient électro-optique « à contrainte nulle » ni le coefficient « à déformation nulle » ne devaient être utilisés. La présence du réseau de champ de charge d'espace impose de nouvelles conditions aux limites. Pour établir l'influence des déformations mécaniques du matériau, il faut tenir compte du fait que le champ de charge d'espace est périodique avec une amplitude E_1 et une direction donnée par le vecteur réseau \vec{k} de vecteur unitaire de composantes (a_i) dans le système d'axes cristallographiques. Les études théoriques amènent à définir un tenseur électro-optique effectif $[r^{eff}]$ reliant la variation d'imperméabilité induite au champ de charge d'espace (en notation tensorielle) :

$$\Delta\eta_{ij}(E_1) = r_{ij}^{eff} E_1 \quad (14)$$

avec :

$$r_{ij}^{eff} = r_{ijk}^S a_k + p_{ijk}^E A_{kn}^{-1} B_n a_m \quad (15)$$

Cette expression dépend du tenseur électro-optique « à déformation nulle » $[r^S]$ avec les tenseurs $A_{ik} = C_{ijk}^E a_j a_m$, et $B_j = e_{ijk} a_i a_k$ qui dépendent respectivement du tenseur des constantes élastiques à champ électrique constant $[C^E]$ et du tenseur piézo-électrique de contrainte $[e]$ (relié au tenseur $[d]$ par la relation $e_{ijk} = d_{imn} C_{jkmn}^E$).

Les modèles théoriques ont aussi montré que pour les matériaux utilisés la constante diélectrique relative statique (à fréquence basse devant la fréquence de l'onde optique) qui intervient dans le calcul du champ de charge d'espace (à travers k_0^2) et dans la constante de temps, n'est ni la constante diélectrique « à déformation nulle » ε^S , ni la constante diélectrique « à contrainte nulle » ε^T , mais une constante diélectrique relative effective ε_{eff} qui dépend de l'orientation du réseau et qui est donnée par l'expression suivante :

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_{ij}^S a_i a_j + \varepsilon_0^{-1} e_{ijk} e_{mnp} a_i a_j a_m a_n A_{kp}^{-1} \quad (16)$$

avec $[\varepsilon^S]$ le tenseur diélectrique relatif « déformation nulle » qui est relié au tenseur diélectrique relatif « contrainte nulle » $[\varepsilon^T]$, par la relation : $\varepsilon_{ij}^T = \varepsilon_{ij}^S + e_{jmn} d_{imn} / \varepsilon_0$.

Ces relations (15) et (16) permettent de calculer de manière analytique le tenseur électro-optique effectif et la constante diélectrique effective pour n'importe quel type de matériau et quelle que soit l'orientation du vecteur réseau (avec toutefois une expression générale souvent très complexe et volumineuse). L'influence de l'effet électro-optique indirect doit et peut être prise en compte pour tous les matériaux, dès que l'on voudra caractériser leurs performances (correction pouvant atteindre un facteur 2 pour des matériaux comme le BaTiO₃). Malgré tout, cette influence reste une perturbation et la réponse générale des différents matériaux reste dominée par l'effet électro-optique direct et, en première approximation, l'effet électro-optique indirect peut souvent être omis pour simplifier les calculs. Quoi qu'il en soit, des expressions simples et utilisables peuvent être obtenues pour des orientations simples et des matériaux dont les tenseurs possèdent peu de coefficients non nuls. Du point de vue numérique, à de rares exceptions près, les valeurs des coefficients qui interviennent dans ces expressions sont connues. Nous sommes donc capables de déterminer, pour tous les matériaux, la

valeur numérique des coefficients du tenseur électro-optique effectif quelle que soit l'orientation du cristal.

1.3. Gain photoréfractif γ

Dans les paragraphes 1.1. et 1.2., nous avons calculé la « perturbation » que subit le matériau photoréfractif lorsqu'il est éclairé par une structure d'illumination sinusoïdale. Cette perturbation, principalement une modulation d'indice de réfraction, n'est visible et mesurable que si les faisceaux qui viennent la lire ont la bonne polarisation. C'est ce que traduit le gain photoréfractif en amplitude γ que nous allons maintenant définir et déterminer.

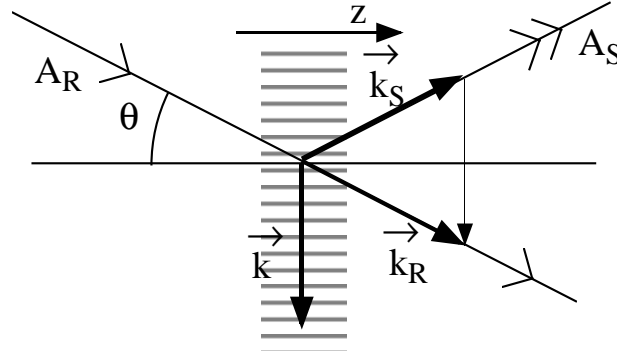


FIG. 3. Schéma de diffraction sur un réseau de vecteur \vec{k} . L'angle d'incidence θ est pris à l'intérieur du cristal.

Le réseau de permittivité que l'on inscrit dans le matériau photoréfractif est lu dans un processus de diffraction (Fig. 3) dans lequel une onde de lecture de vecteur champ électrique \vec{E}_R (d'amplitude complexe A_R et d'intensité $I_R = A_R A_R^*$) diffracte sur le réseau pour donner une onde diffractée de vecteur champ électrique \vec{E}_S (d'amplitude complexe A_S et d'intensité $I_S = A_S A_S^*$). Ces deux ondes sont des ondes propres du matériau (avec des polarisations éventuellement orthogonales). L'onde de lecture relie le réseau, qui est supposé d'ouverture infinie, à l'incidence de Bragg. La diffraction de l'onde \vec{E}_R sur le réseau est alors régie par le système d'équation suivant [PAU00] (en supposant que les faisceaux arrivent avec des angles d'incidence θ faibles, la biréfringence du matériau étant supposée faible, de même que l'absorption) :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{-i\pi n_0^3}{2\lambda \cos \theta} r_{eff} E_1 A_R \\ \frac{\partial A_R}{\partial z} = \frac{-i\pi n_0^3}{2\lambda \cos \theta} r_{eff}^* E_1^* A_S \end{cases} \quad (17)$$

Dans ces équations, n_0 est l'indice moyen vu par les ondes \vec{E}_R et \vec{E}_S , λ est la longueur d'onde de la lumière dans le vide. Le coefficient électro-optique effectif r_{eff} est donné par :

$$r_{eff} = \frac{\vec{e}_S^{*t} [\epsilon_\omega^r] ([r_{eff}^r]) [\epsilon_\omega^r] \vec{e}_R}{n_0^4} \quad (18)$$

avec $[r_{eff}^r]$ le tenseur électro-optique effectif défini par (15), $[\epsilon_\omega^r]$ le tenseur de permittivité diélectrique relative à fréquence optique et $\vec{e}_{R(S)}$ les vecteurs unitaires des directions des champs électriques des ondes de lecture et diffractée, en se rappelant que nous ne traitons que le cas d'ondes propres du matériau (en l'absence de la perturbation qu'est le réseau de permittivité).

Un cas important en pratique se produit lorsque les ondes de lecture et diffractée sont les ondes qui ont écrit le réseau. L'amplitude du champ de charge d'espace, régie par l'équation (6), vaut alors en régime stationnaire $E_1 = mE_{sc}$, avec, pour un milieu ne présentant pas de dichroïsme [MON00], la modulation :

$$m = 2(\vec{e}_R^{*t} \cdot \vec{e}_S) \frac{A_S A_R^*}{I_S + I_R} \quad (19)$$

avec $(\vec{e}_R^{*t} \cdot \vec{e}_S)$ le produit scalaire des polarisations des deux ondes.

Les équations de diffraction (17) se réécrivent alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_S}{\partial z} = \gamma \frac{I_R}{I_S + I_R} A_S \\ \frac{\partial A_R}{\partial z} = -\gamma^* \frac{I_S}{I_S + I_R} A_R \end{cases} \quad (20)$$

en définissant un gain photoréfractif en amplitude :

$$\gamma = \frac{-i \pi n_0^3}{\lambda \cos \theta} r_{eff}^{(3)} (\vec{e}_R^{*t} \cdot \vec{e}_S) E_{sc} \quad (21)$$

Cette équation couplée avec la relation (7) donnant E_{sc} et les relations (15) et (18), permet de calculer le gain photoréfractif dans la grande majorité des cas. Sans champ appliqué E_{sc} est imaginaire pur, ce qui fait que γ est réel. En présence d'un champ électrique appliqué le gain photoréfractif en amplitude est une grandeur complexe et s'écrit $\gamma = \gamma' + i\gamma''$. La partie imaginaire γ'' du gain photoréfractif se rapporte à la composante du réseau d'indice qui est en phase avec la figure d'illumination, tandis que la partie réelle γ' de ce même gain photoréfractif se rapporte à la composante déphasée de $\pi/2$ du réseau d'indice photoréfractif.

Le gain photoréfractif γ est le paramètre qui va caractériser les performances des matériaux photoréfractifs (avec bien sûr la constante de temps τ). Il interviendra, directement ou sous une forme dérivée, dans toutes les expériences d'holographie qui utilisent l'effet photoréfractif. Un intérêt de ce paramètre est qu'il peut être aussi défini pour d'autres mécanismes de création de réseau d'indice (réseau de réorientation moléculaire dans des polymères, effet d'écrantage de champ dans des structures à puits quantiques,...). On définit alors le gain en amplitude comme $\gamma = (2\pi/\lambda \cos \theta)(\Delta n/m)$ où Δn est la variation d'indice créée. Nous allons voir maintenant comment on utilise ces expressions dans des expériences de diffraction et de mélange d'ondes.

2. CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX PHOTORÉFRACTIFS

Le gain photoréfractif γ , défini au paragraphe précédent, dépend des conditions d'utilisation du cristal (orientation cristalline et orientation des polarisations), de paramètres expérimentaux (pas du réseau, champ externe appliqué ou, éventuellement, densité de puissance des faisceaux d'illumination), mais aussi de paramètres internes du matériau (nature et concentration du piège utilisé). Il convient maintenant de mesurer ce gain pour le comparer d'une part aux valeurs théoriques attendues, et d'autre part afin de comparer différents échantillons et de déterminer le matériau le plus adapté à l'utilisation que l'on veut en faire. Deux techniques de mesure utilisées classiquement seront décrites : la mesure du transfert d'énergie par mélange à deux ondes (et les techniques dérivées), la mesure de l'efficacité de diffraction dans un montage de mélange à quatre ondes.

2.1. Mélange à deux ondes

2.1.1. Transfert d'énergie par mélange à deux ondes

L'expérience de transfert d'énergie par mélange à deux ondes a été pendant longtemps le test caractéristique permettant de prouver qu'un nouveau type de matériau présentait de l'effet photoréfractif. Ce transfert d'énergie ne peut être observé en régime stationnaire que dans les matériaux présentant un réseau d'indice « non local », c'est-à-dire dans lesquels le réseau d'indice est décalé par rapport à la structure d'illumination qui l'a créé. De manière simple, deux faisceaux cohérents sont envoyés sur un cristal photoréfractif (Fig. 4). Ils interfèrent, créent une structure d'illumination sinusoïdale, qui par effet photoréfractif induit un réseau d'indice sur lequel ils vont diffracter. Dans la direction de chacun des faisceaux transmis par le cristal, on crée un faisceau diffracté. Ces faisceaux diffractés sont déphasés de $\pi/2$ par rapport aux faisceaux incidents car ils proviennent de la diffraction sur un réseau d'indice. À ce déphasage, il faut ajouter un déphasage supplémentaire dû au fait que le réseau d'indice est décalé de $\pi/2$ par rapport au réseau d'illumination (Fig. 4). Ce déphasage est de $+\pi/2$ sur un des faisceaux et de $-\pi/2$ sur l'autre, selon que le maximum du réseau d'indice est vu par le faisceau avant ou après le maximum de réseau d'illumination. De tout cela, on tire que, dans une direction, le déphasage respectif du faisceau transmis et du faisceau diffracté est de $\pi/2 + \pi/2 = \pi$ et dans l'autre direction ce déphasage est de $\pi/2 - \pi/2 = 0$. Dans la première direction, les deux faisceaux transmis et diffracté interfèrent destructivement, l'énergie transmise décroît en présence du réseau. Dans l'autre direction, les interférences sont constructives et l'énergie transmise croît en présence du réseau. Tout ce passe donc comme si l'on avait transféré d'énergie d'un des faisceaux vers l'autre. Le sens du transfert d'énergie ne dépend que du signe du réseau d'indice créé, qui lui-même ne dépend que de l'orientation du cristal (à travers le signe du coefficient électro-optique utilisé) et du signe des porteurs qui participent majoritairement au transport de charge. Par contre, il ne dépend pas de l'intensité respective des deux faisceaux. On peut aussi bien transférer l'énergie d'un faisceau faible vers un faisceau fort que l'inverse, et changer le sens de ce transfert en retournant simplement le cristal photoréfractif.

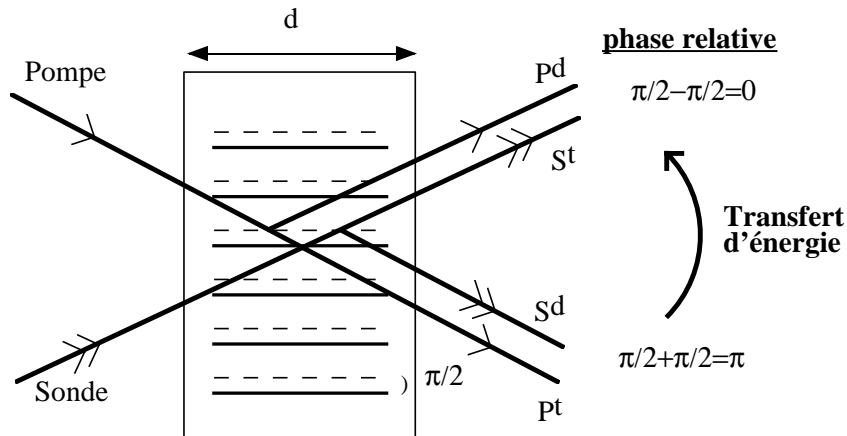


FIG. 4. Principe du transfert d'énergie par mélange à deux ondes.

Dans ces expériences, l'onde d'intensité I_R est en général appelée faisceau pompe tandis que l'onde d'intensité I_S est le faisceau sonde ou signal. Les équations régissant le transfert d'énergie sont données par le système d'équation (20), réécrit pour l'intensité des faisceaux, ce qui donne, en définissant le gain photoréfractif en intensité $\Gamma = 2 \operatorname{Re}(\gamma) = 2\gamma'$:

$$\begin{cases} \frac{\partial I_R}{\partial z} = -\Gamma \frac{I_S I_R}{I_R + I_S} \\ \frac{\partial I_S}{\partial z} = \Gamma \frac{I_S I_R}{I_R + I_S} \end{cases} \quad (22)$$

Ces équations ne font intervenir que la partie réelle du gain photoréfractif en amplitude, c'est-à-dire que seule la partie non locale du réseau d'indice inscrit (*i.e.* déphasée de $\pi/2$) participe à ce transfert d'énergie. Ce système se résout aisément pour donner [KUK79] :

$$\begin{cases} I_R(z) = I_R(0) \frac{[I_R(0) + I_S(0)] e^{-\Gamma z}}{I_R(0) e^{-\Gamma z} + I_S(0)} \\ I_S(z) = I_S(0) \frac{[I_R(0) + I_S(0)] e^{\Gamma z}}{I_S(0) e^{\Gamma z} + I_R(0)} \end{cases} \quad (23)$$

Cette expression est valable quelle que soit la puissance des faisceaux incidents, elle rend compte de la saturation du gain observée lorsque les deux faisceaux deviennent de puissances équivalentes. La puissance du faisceau amplifié ne peut devenir supérieure à la puissance totale incidente, il s'agit bien d'un transfert d'énergie d'un faisceau vers l'autre sans apport d'énergie externe (Fig. 5).

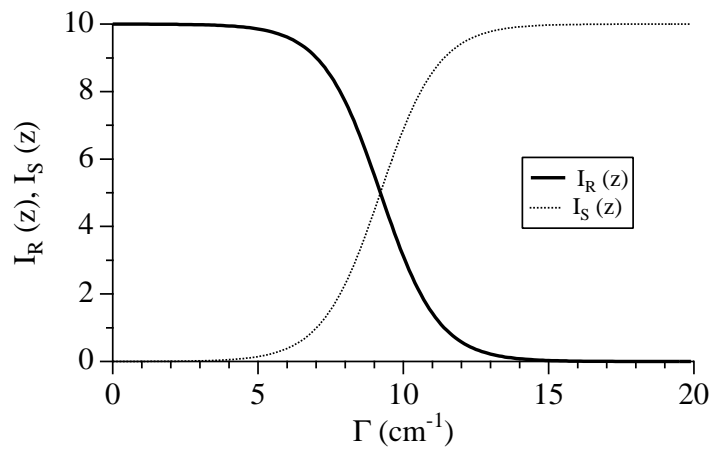


FIG. 5. Évolution de l'intensité des deux faisceaux à la sortie du cristal (données par les équations (23)) en fonction du gain photoréfractif Γ (pour une épaisseur $z = 1\text{cm}$ et des intensités incidentes $I_R(0) = 10$ et $I_S(0) = 0,001$). Lorsque le gain devient trop fort l'amplification sature car le faisceau pompe disparaît et n'a plus d'énergie à transférer.

Lorsque les deux faisceaux sont d'égale intensité, la variation d'intensité transmise est égale et de signe opposé pour chacun des deux faisceaux, ce qui est habituellement considéré comme une signature de l'effet photoréfractif. Lorsque l'un des faisceaux est plus faible que l'autre sur toute l'épaisseur du cristal (ce qui correspond à la condition de faible modulation des franges), *i.e.* $I_S(0) \ll I_R(0)$ et $I_S(0)e^{\Gamma z} \ll I_R(0)$, le système donne :

$$\begin{cases} I_R(z) = I_R(0) \\ I_S(z) = I_S(0) e^{\Gamma z} \end{cases} \quad (24)$$

De ces expressions, on voit que le faisceau signal est amplifié ou atténué de manière exponentielle. De son côté, le faisceau pompe ne change pas d'intensité lors du processus d'amplification. Ces conditions expérimentales sont souvent appelées conditions de non atténuation de la pompe. Cette expression montre aussi que, dans ces conditions, le taux d'amplification est indépendant du rapport des intensités des faisceaux pompe et sonde (Fig. 6). mais que pour des gains trop forts ce régime de fonctionnement peut être difficile à atteindre.

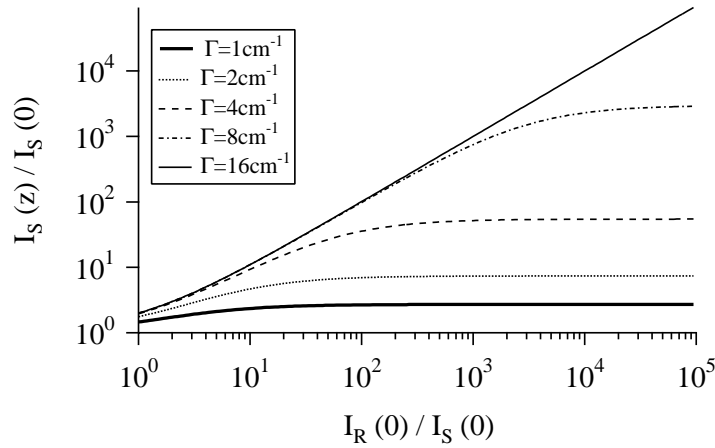


FIG. 6. Évolution du transfert d'énergie en fonction du rapport des intensités des deux faisceaux, pour différentes valeurs du gain photoréfractif Γ (pour une épaisseur $z = 1\text{cm}$). La condition de non atténuation de la pompe correspond au plateau. Ce plateau devient difficile, voire impossible, à atteindre pour des rapports des intensités raisonnables, dès que le gain devient trop fort ($\Gamma = 8\text{cm}^{-1}$).

2.1.2. Détermination expérimentale du gain photoréfractif en intensité

L'expérience la plus simple pour mesurer le gain photoréfractif Γ consiste à mesurer l'intensité $I_{S+R}(z)$ du faisceau signal en sortie du cristal en présence du faisceau pompe, puis à faire la même mesure en coupant le faisceau pompe $I_S(z)$ (*i.e.* sans réseau) et de faire le rapport des deux signaux ce qui donne le facteur d'amplification γ_0 , qui permet de remonter au gain photoréfractif :

$$\gamma_0 = \frac{I_{S+R}(z)}{I_S(z)} = e^{\Gamma z} \quad (25)$$

En général, les phénomènes qui se produisent dans les matériaux photoréfractifs ne sont pas aussi simples. En effet le cristal photoréfractif possède une absorption α , qui dépend éventuellement de l'intensité incidente par un phénomène d'absorption ou de blanchiment induit $\Delta\alpha$. On peut aussi prendre en compte la présence d'un éventuel réseau d'absorption α_1 . Lorsque l'un des faisceaux est plus faible que l'autre, en présence de tous ces phénomènes, les équations (24) se réécrivent alors :

$$\begin{cases} I_R(z) = I_R(0)e^{-(\alpha+\Delta\alpha)z} \\ I_S(z) = I_S(0)e^{(\Gamma-\alpha_1-\alpha-\Delta\alpha)z} \end{cases} \quad (26)$$

Le facteur d'amplification vaut alors :

$$\gamma_0 = \frac{I_{S+R}(z)}{I_S(z)} = e^{(\Gamma-\alpha_1-\Delta\alpha)z} \quad (27)$$

Au transfert d'énergie photoréfractif se superpose donc un certain nombre de phénomènes parasites. Toutefois en utilisant les propriétés de l'effet photoréfractif on peut différencier les différents termes causant l'amplification ou l'atténuation du faisceau signal. Si l'on change l'orientation du cristal (ou des polarisations suivant le cas) on peut changer le signe du coefficient électro-optique effectif et donc le signe du gain photoréfractif, alors que les phénomènes d'absorption resteront identiques. Une mesure dans laquelle on passe de l'amplification à une atténuation doit donner un gain photoréfractif symétrique. Une dissymétrie indique la présence d'un réseau d'absorption ou d'une absorption induite, qui sera ainsi discriminée et mesurée. De la même façon en croisant la polarisation des deux faisceaux ou en utilisant des faisceaux incohérents, on sépare la contribution de l'absorption induite, qui reste seule, des contributions dues aux réseaux photoréfractif et d'absorption.

Il est donc possible, en prenant un minimum de précautions, de remonter aisément à la valeur du gain photoréfractif Γ , et de mesurer son évolution en fonction d'un certain nombre de paramètres tels que le pas du réseau, la densité de puissance incidente, l'amplitude du champ électrique appliqué ou l'orientation du cristal et des polarisations.

2.1.3. Mesure du gain photoréfractif en amplitude

La mesure du transfert d'énergie est particulièrement adaptée à la caractérisation de matériaux photoréfractifs fonctionnant en régime de diffusion, c'est-à-dire sans champ appliqué, dans lesquels le gain photoréfractif en amplitude est purement réel. Dès que l'on voudra étudier des matériaux photoréfractifs avec un champ électrique appliqué, ou d'une manière générale des matériaux dans lesquels le réseau d'indice inscrit a une composante locale, le transfert d'énergie ne donne qu'une partie de l'information sur le gain photoréfractif. Il faut alors utiliser une autre technique de mesure permettant de remonter à la partie imaginaire du gain photoréfractif γ .

Différentes techniques ont été proposées [CUD92, SUG95, FRE99]. Toutes reposent sur le déplacement de la figure d'illumination par rapport au réseau inscrit. Du point de vue théorique, le plus simple est d'imprimer une modulation de phase sinusoïdale rapide (comparée au temps de réponse du matériau) sur un des faisceaux, par exemple le faisceau signal, et d'observer sa transformation en modulation d'intensité par le processus de mélange à deux ondes (Fig. 7). Les deux faisceaux interfèrent dans le cristal photoréfractif et forment une figure d'interférence qui se déplace rapidement en suivant la modulation de phase sinusoïdale. Comme cette modulation de phase est très rapide, le cristal enregistre un réseau d'indice stationnaire qui reproduit la position moyenne des franges d'interférence (à cause de l'effet intégrateur de l'effet photoréfractif). Lors de la relecture le faisceau signal modulé en phase est transmis par le cristal sans perturbation, tandis que le faisceau pompe stationnaire diffracte sur le réseau lui aussi stationnaire, pour donner un faisceau diffracté qui sera donc stationnaire, c'est-à-dire qui ne porte pas d'information sur la modulation de phase. Ce faisceau diffracté stationnaire va servir d'oscillateur local pour le faisceau modulé en phase et transformer la modulation de phase en modulation d'intensité comme dans un montage de détection homodyne.

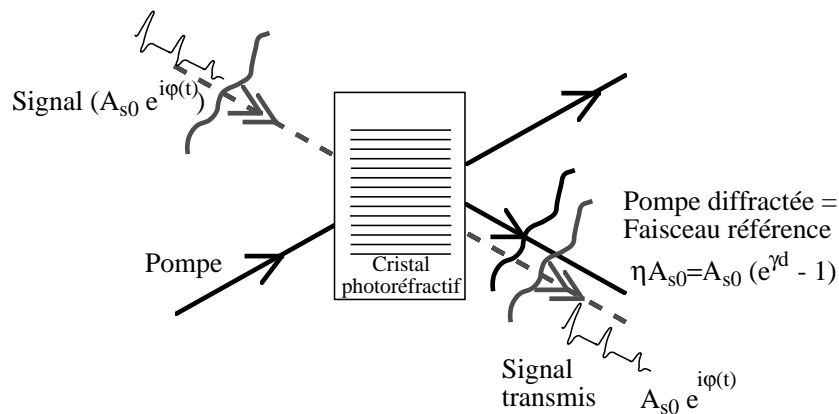


FIG. 7. Schéma de principe de la détection homodyne holographique à grand champ de vision.

En supposant que l'on est en présence d'un réseau d'indice pur, en régime de non atténuation de la pompe, on peut montrer que l'amplitude du faisceau signal en sortie du cristal, s'écrit [DEL95] :

$$A_s(z, t) = e^{-\alpha z/2} \left[A_s(0, t) + (e^{\gamma z} - 1) \bar{A}_s \right] \quad (28)$$

Dans cette expression, le premier terme représente le faisceau signal transmis dans le cristal et portant la modulation de phase, tandis que le second terme représente le faisceau diffracté proportionnel à la valeur moyenne de l'amplitude du faisceau signal sur le temps de réponse du cristal. Le faisceau diffracté prendra en compte un éventuel effacement du réseau inscrit lorsque l'amplitude de la modulation de phase sera trop importante. En particulier, si le faisceau est modulé en phase avec une

modulation de phase sinusoïdale de fréquence f et d'amplitude φ_0 : $\varphi(t) = \varphi_0 \sin(2\pi ft)$, on a alors $A_S(0,t) = A_{S0} e^{i\varphi(t)}$ et $\bar{A}_S = A_{S0} J_0(\varphi_0)$ avec A_{S0} l'amplitude du faisceau signal à l'entrée du cristal et J_0 la fonction de Bessel d'ordre 0.

Si on se limite au cas d'une modulation de phase de faible amplitude ($\varphi_0 \ll \pi/2$) de valeur connue, la réponse du système est linéaire et l'intensité de l'onde signal en sortie du cristal est égale à :

$$I_S(z,t) = e^{-\alpha z} I_{S0} \left[e^{2\gamma'z} - 2e^{\gamma'z} \sin(\gamma''z) \varphi(t) \right] \quad (29)$$

Dans cette expression on retrouve le terme de transfert d'énergie en $e^{2\gamma'z}$, mais on voit aussi apparaître un second terme qui est modulé à la même fréquence que la modulation de phase initiale, dont l'amplitude dépend de la partie imaginaire γ'' du gain photoréfractif en amplitude. On a donc ici un moyen simple permettant de mesurer entièrement le gain photoréfractif en amplitude et de remonter à son déphasage par rapport au réseau d'illumination. Comme précédemment, une étude plus complète et une procédure de mesure adaptée permettent de différencier le réseau d'indice d'un éventuel réseau d'absorption local ou non local [FRE99].

Le principal intérêt de ces techniques de mesure du gain utilisant le mélange à deux ondes est qu'elles fonctionnent avec des faisceaux déformés (aussi bien pour le faisceau pompe que pour le faisceau signal) dans la mesure où les faisceaux qui relisent l'hologramme sont les faisceaux qui l'ont inscrit et qu'ils sont, de ce fait, automatiquement à l'incidence de Bragg pour ce réseau.

2.1.4. Cinétique du transfert d'énergie

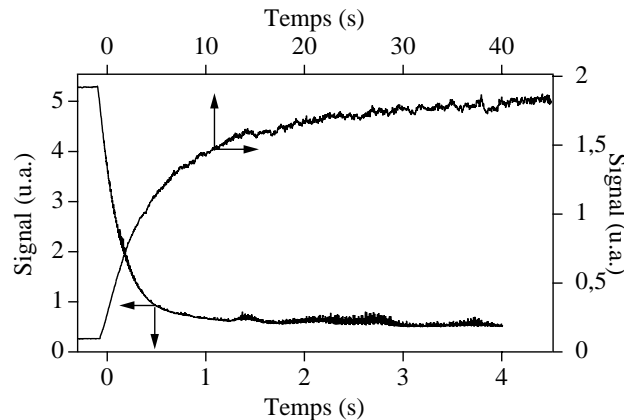


FIG. 8. Évolution temporelle du transfert d'énergie dans un régime d'amplification et un régime d'atténuation pour des conditions expérimentales identiques.

Au niveau de la cinétique du transfert d'énergie, le problème est plus complexe surtout dans le cas des forts gains de transfert d'énergie. Pour obtenir cette cinétique il faut résoudre un système d'équations aux dérivées partielles combinant les équations (6) et (17) en utilisant la définition de la modulation (19) [DEL95]. Contrairement à ce que pourrait laisser penser l'équation (6), la cinétique observée est rarement exponentielle sauf pour des gains très faibles et une faible absorption du cristal. En effet le transfert d'énergie entraîne une variation du rapport des intensités des deux faisceaux et donc une variation de la modulation des franges au cours du temps, lors de la propagation dans le cristal. L'état stationnaire à atteindre dépendant de cette modulation (Éq. 6), si la modulation des franges augmente (m se rapprochant de 1), comme dans le cas de l'amplification d'un faisceau faible par un faisceau fort, l'amplitude du champ de charge d'espace qu'il faudra atteindre à l'état stationnaire (mE_{sc}) augmentera et il faudra donc un temps plus long pour l'atteindre. Ce sera l'inverse dans le cas où la modulation des franges diminue, la valeur à atteindre à l'état stationnaire diminue de même et l'objectif sera ainsi atteint plus rapidement. Cet effet de changement de modulation est donc à l'origine de l'observation de temps d'établissement du transfert d'énergie plus court en régime

d'atténuation qu'en régime d'amplification, la différence pouvant facilement atteindre un ordre de grandeur (Fig. 8). L'expérience de transfert d'énergie est donc mal adaptée à la mesure de la cinétique de l'effet photoréfractif même si des expressions, décrivant de manière analytique la cinétique d'établissement du transfert d'énergie, existent et permettent de remonter à la constante de temps τ de l'effet photoréfractif [DEL95].

L'effet de l'absorption du cristal est plus simple à comprendre. La constante de temps, qui est inversement proportionnelle à l'éclairement incident, va s'allonger au cours de la propagation du fait de la perte d'énergie des faisceaux induite par l'absorption. On n'a donc pas une constante de temps unique dans le cristal mais un continuum de constantes de temps tout au long de la propagation dans le cristal, ce qui rend l'évolution de l'amplification des faisceaux non exponentielle. Toutefois, en première approximation, si l'absorption (et le gain) n'est pas trop forte, la cinétique reste exponentielle avec une constante de temps correspondant à celle calculée avec une intensité prise au milieu du cristal.

2.1.5. Problèmes dus aux forts gains d'amplification : coma photoréfractive

Pour la plupart des applications utilisant les matériaux photoréfractifs, un fort gain photoréfractif Γ est désirable. Par contre, quand il s'agit de réaliser des mesures de ce gain afin de comparer différents matériaux, un fort gain peut être gênant et peut même empêcher une mesure fiable. Par exemple, on peut espérer obtenir dans un matériau photoréfractif comme le BaTiO₃ des gains photoréfractifs allant jusqu'à 40 cm⁻¹, ce qui, pour une épaisseur de cristal de 5 mm, conduit à un facteur d'amplification théorique $e^{\Gamma z} \approx 5 \cdot 10^8$. Pour mesurer proprement un tel gain, il faut tout d'abord que la condition de non atténuation de la pompe soit vérifiée. Il faut pour cela que le faisceau signal, une fois amplifié, reste faible devant le faisceau pompe. Il faut donc assurer un rapport pompe-sonde $I_R(0)/I_S(0)$ à l'entrée du cristal d'au moins 10¹⁰. En supposant qu'un tel rapport d'intensité soit possible à réaliser, il reste qu'une telle mesure est très sensible au moindre faisceau parasite créé par la diffusion du faisceau pompe sur les défauts du cristal, qui peut facilement être plus intense que le faisceau signal. Ces faisceaux diffusés sont d'autant plus gênants qu'ils sont cohérents avec le faisceau pompe et inscrivent un réseau d'indice par lequel ils acquièrent de l'énergie aux dépens du faisceau pompe. Ce phénomène de diffusion amplifiée est à l'origine de la coma photoréfractive (« beam fanning ») observée dans les matériaux photoréfractifs ayant un fort gain photoréfractif (Fig. 9). En plus de la lumière parasite, qui empêche une mesure précise du gain, la coma photoréfractive va entraîner une perte de puissance du faisceau pompe (et même sa disparition complète dans certains cas, Fig. 9) qui fait que la condition de non atténuation de la pompe ne sera jamais vérifiée.

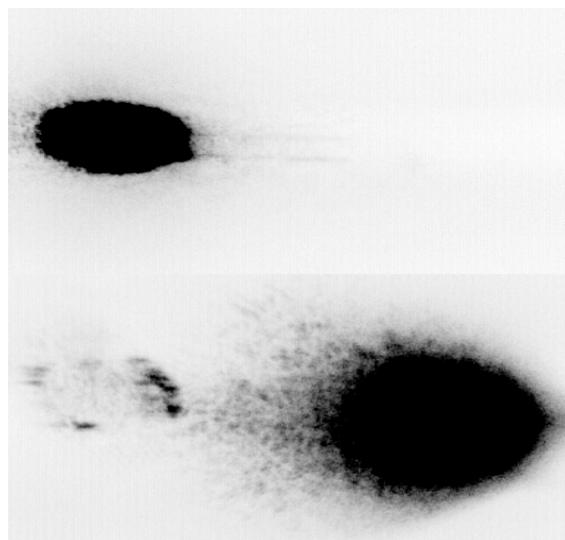


FIG. 9. Photographie de la projection sur un écran, des faisceaux transmis par un cristal de BaTiO₃ coupé à 45°. En haut, le faisceau transmis à travers le cristal avant la construction de la coma. En bas, après un certain temps, toute l'énergie du faisceau incident passe dans la coma photoréfractive.

Tous ces phénomènes font que l'on préférera, lors de la caractérisation photoréfractive des matériaux à fort gain (tels que les ferroélectriques), les configurations où le gain est le plus faible (par exemple en polarisation ordinaire pour le BaTiO₃), pour éviter les problèmes liés au fort gain et avoir des mesures fiables et répétitives.

2.2. Mélange à quatre ondes

Le montage de mélange à quatre ondes est à la base des montages de conjugaison de phase dans les matériaux photoréfractifs. D'une manière générale [PAU00], les quatre ondes de vecteurs d'onde \vec{k}_i interagissent, pour écrire une structure de réseaux complexes pouvant aller jusqu'à 6 réseaux (de vecteurs réseaux $\vec{k}_r^{i,j} = \vec{k}_i - \vec{k}_j$). Nous nous limiterons ici au cas où un seul réseau est inscrit et est relu par une onde de lecture qui vient diffracter sur le réseau inscrit, comme décrit sur la figure 3.

2.2.1. Efficacité de diffraction

Dans un montage de diffraction par mélange à quatre ondes, deux faisceaux interfèrent au niveau du cristal, créant ainsi le réseau photoréfractif, et un faisceau relit ce réseau en créant un faisceau diffracté, dont l'amplitude est reliée au gain photoréfractif en amplitude. On reprend les notations de l'équation (17), dans laquelle l'onde A_R est l'onde incidente et l'onde A_S l'onde diffractée. Si l'on suppose que l'onde de relecture relit le réseau à l'angle de Bragg, et que le réseau a une modulation constante sur toute l'épaisseur (pas de transfert d'énergie entre les faisceaux d'écriture), on peut écrire assez aisément l'intensité diffractée, en reprenant les notations du paragraphe 1.3.) :

$$I_S(z) = I_R(0) \sin^2 \left(\left| \frac{-i \pi n_0^3}{\lambda \cos \theta} r_{eff} E_{sc} \right| \left(\frac{m}{2} \right) z \right) = I_R(0) \sin^2 \left(\left(\frac{|\gamma| m}{2} \right) z \right) \quad (30)$$

avec simplement une légère différence dans la définition du gain γ . Le terme $(\vec{e}_R^* \cdot \vec{e}_S)$ a été sorti de γ et inséré dans la définition de m puisque les faisceaux A_R et A_S ne participent plus à l'écriture du réseau et n'ont donc plus la contrainte d'avoir la même polarisation (ce que nous utiliserons plus loin dans le phénomène de diffraction anisotrope).

L'expression (30) nous permet de discuter de plusieurs spécificités du montage de diffraction. Tout d'abord le mécanisme n'est sensible qu'au module du gain photoréfractif, qui est ainsi utilisé de manière optimale. Toutefois, ces expériences de diffraction ne nous permettent de retirer aucune information sur le déphasage du réseau d'indice par rapport au réseau d'illumination, ce qui est important pour déterminer le mécanisme physique à la base de la création du réseau d'indice. Ensuite, bien qu'une efficacité de diffraction de 100 % soit atteignable, on est souvent en régime de faible efficacité de diffraction pour lequel on a $I_S(z) = I_R(0) |\gamma|^2 m^2 z^2 / 4$. Cette faible efficacité de diffraction oblige souvent à travailler avec une modulation du réseau proche de 1 pour ne pas trop perdre de signal, avec l'inconvénient que ce régime de fonctionnement s'éloigne de celui pour lequel les expressions du champ de charge d'espace sont établies.

Ces expressions supposent de plus que le faisceau de relecture soit rigoureusement à l'incidence de Bragg pour avoir une relecture optimale. C'est aisé à obtenir pour des ondes planes, mais, contrairement au mélange à deux ondes, dès que les ondes sont déformées, l'efficacité de diffraction chute [VAN98], ce qui rend la comparaison avec la théorie plus compliquée.

2.2.2. Cinétique de la diffraction

En régime de faible efficacité de diffraction l'intensité du faisceau diffracté dépend du carré du champ de charge d'espace inscrit, dont la cinétique est donnée par l'équation (6) et contrôlée par les faisceaux d'écriture. Cela signifie que si les deux faisceaux d'écriture n'échangent pas d'énergie par mélange à deux ondes (ce qui est toujours possible par un choix de l'orientation du cristal et des polarisations des faisceaux d'écriture), la cinétique d'établissement du faisceau diffracté sera exponentielle avec une

constante de temps égale à 2τ . Cette mesure se fera aussi bien à l'écriture qu'à l'effacement. De plus, si l'on choisit une onde de lecture qui ne photoexcite pas de charges, ce qui est toujours possible puisque l'écriture du réseau et sa relecture sont découplées, on peut avoir accès au temps d'effacement du réseau dans le noir. Ce type de mesure n'était pas possible en régime de mélange à deux ondes puisque par principe la relecture ne peut pas y être complètement non destructive. Comme pour le cas du transfert d'énergie, le changement de constante de temps au cours de la propagation dû à l'absorption des faisceaux d'écriture doit être pris en compte. La cinétique reste en première approximation exponentielle avec une constante de temps correspondant à l'intensité prise au milieu du cristal.

2.2.3. Diffraction anisotrope

Le montage de mélange à quatre ondes ne nécessite pas que l'onde diffractée ait une polarisation identique à celle de l'onde incidente puisqu'aucun réseau n'est écrit par ces ondes. Cela signifie que l'on peut accéder à de nouvelles configurations de diffraction dans lesquelles le coefficient électro-optique effectif r_{eff} est non nul (voire maximal) pour des ondes de polarisation \vec{e}_R^{*i} et \vec{e}_S orthogonales.

La diffraction anisotrope a un certain nombre d'intérêts expérimentaux qui la rendent particulièrement attrayante. En premier, il y a la possibilité de séparer aisément le faisceau diffracté d'un éventuel faisceau diffusé qui aura la polarisation du faisceau incident. Un simple polariseur orienté pour laisser passer le faisceau diffracté coupe toute la lumière diffusée, ce qui permet de mesurer des signaux diffractés très faibles. Un autre avantage est la possibilité qui est donnée de séparer la contribution due à l'effet photoréfractif, d'une autre contribution isotrope (réseau d'absorption, réseau de population). Cette technique est particulièrement utilisée en régime impulsionnel [DEL93] pour séparer la faible composante de diffraction photoréfractive, de la composante de diffraction isotrope due au réseau de porteurs libres.

On peut remarquer que l'on peut mettre en évidence et utiliser cette diffraction anisotrope dans des montages de mélanges à deux ondes [DEL97A]. Deux faisceaux incidents de même polarisation inscrivent un réseau sur lesquels ils se diffractent pour créer des faisceaux polarisés orthogonalement. Dans les matériaux biréfringents le problème peut être plus compliqué du fait de la présence de conditions supplémentaires d'existence du faisceau diffracté, liées à la condition de Bragg qui peut être différente pour les différentes polarisations.

3. CONCLUSION

L'introduction à l'effet photoréfractif que constitue cet article permettra au lecteur de mettre en évidence expérimentalement les principales propriétés des matériaux photoréfractifs et de les relier aux caractéristiques physiques de ces matériaux. Un autre intérêt des montages présentés (mélange à deux et à quatre ondes) est que la plupart des dispositifs utilisant l'effet photoréfractif (stockage holographique, miroirs à conjugaison de phase, interférométrie holographique ou holographie dynamique intracavité) sont basés sur ces montages. Du point de vue des matériaux, les modèles présentés sont valables pour tous les matériaux photoréfractifs. Toutefois, certains matériaux ont des particularités (activité optique dans les sillénites, effet photovoltaïque dans le niobate de lithium, ...) qui peuvent venir modifier leurs performances. Ces effets qui viennent compliquer la physique de l'effet photoréfractif n'ont pas été abordés dans cet article, mais on pourra trouver des compléments utiles dans les références [PAU00] et [SOL96].

RÉFÉRENCES

- [ASH66] A. Ashkin, G.D. Boyd, J.M. Dziedzic, R.G. Smith, A.A. Ballman, J.J. Levinstein et K. Nassau, Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃, *Appl. Phys. Lett.* **9** (1966) 72.
- [BAS94] M.C. Bashaw, M. Jeganathan, et L. Hesselink, Theory of two-center transport in photorefractive media for low-intensity, continuous-wave illumination in the quasi-steady-state, *J. Opt. Soc. Am. B* **11** (1994) 1743.

- [CHE68] F.S. Chen, J.T. LaMacchia et D.B. Fraser, Holographic storage in lithium niobate, *Appl. Phys. Lett.* **13** (1968) 223.
- [CUD92] R.S. Cudney, G.D. Bacher, R.M. Pierce et J. Feinberg, Measurement of the photorefractive phase shift, *Opt. Lett.* **17** (1992) 67.
- [DEL90] Ph. Delaye, P.U. Halter et G. Roosen, Continuous-wave two beam coupling in InP:Fe and GaAs : evidence for thermal hole-electron competition in InP:Fe, *J. Opt. Soc. Am. B* **7** (1990) 2268.
- [DEL93] Ph. Delaye, K. Jarasiunas et G. Roosen, Picosecond investigation of photorefractive and free carrier gratings in GaAs:EL2 and CdTe:V, *Journ. Phys. III* **3** (1993) 1291.
- [DEL94] P. Delaye, L.A. de Montmorillon, H.J. von Bardeleben et G. Roosen, Photorefractive wave mixing in undoped liquid encapsulated Czochralski GaAs at 1.5 μ m: validation of photorefractive modelling, *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994) 2640.
- [DEL95] Ph. Delaye, L.A. de Montmorillon et G. Roosen, Transmission of time modulated optical signals through an absorbing photorefractive crystal, *Opt. Commun.* **118** (1995) 154.
- [DEL97A] Ph. Delaye, A. Blouin, D. Drolet, L.A. de Montmorillon, G. Roosen et J.P. Monchalain, Detection of ultrasonic motion of a scattering surface using photorefractive InP:Fe under applied DC field, *J. Opt. Soc. Am. B* **14** (1997) 1723.
- [DEL97B] Ph. Delaye, L.A. de Montmorillon, I. Biaggio, J.C. Launay et G. Roosen, Wavelength dependent effective trap density in CdTe: evidence for the presence of two photorefractive species, *Opt. Commun.* **134** (1997) 580.
- [DEM96] L.A. De Montmorillon, P. Delaye, G. Roosen, H.B. Rjeily, F. Ramaz, B. Briat, J.G. Gies-JG, J.P. Zielinger, M. Tapiero, von-H.J. Bardeleben, T. Arnoux et J.C. Launay, Correlations between microscopic properties and the photorefractive response for vanadium-doped CdTe, *J. Opt. Soc. Am. B* **13** (1996) 2341.
- [FRE99] L. Frey, J.M. Jonathan, A. Villing, et G. Roosen, Kinetics of photoinduced gratings by a moving grating technique, *Opt. Commun.* **165** (1999) 153.
- [GUN91] P. Gunter, et M. Zgonik, Clamped-unclamped electro-optic coefficient dilemma in photorefractive phenomena, *Opt. Lett.* **16** (1991) 1826.
- [HUO97] N. Huot, J.M.C. Jonathan et G. Roosen, Validity of the three-charge-state model in photorefractive BaTiO₃:Rh at 1.06 μ m in the CW regime, *Appl. Phys. B* **65** (1997) 489.
- [KUK79] N.V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M.S. Soskin et V.L. Vinetskii, Holographic storage in electrooptic crystals. I. steady state, *Ferroelectrics* **22** (1979) 949 ; Holographic storage in electrooptic crystals. II. Beam coupling-light amplification, *Ferroelectrics* **22** (1979) 961.
- [MON00] G. Montemezzani, Optimization of photorefractive two-wave mixing by accounting for material anisotropies: KNbO₃ and BaTiO₃, *Phys. Rev. A* **62** (2000) 053803.
- [NYE61] J.F. Nye, *Propriétés physique des cristaux*, Dunod, Paris (1961).
- [PAU91] G. Pauliat, P. Mathey et G. Roosen, Influence of piezoelectricity on the photorefractive effect, *J. Opt. Soc. Am. B* **8** (1991) 1942.
- [PAU00] G. Pauliat et G. Roosen, L'effet photoréfractif, in *L'optique non linéaire et ses matériaux*, R. Lévy et J.M. Jonathan, Eds., EDP Sciences (2000) 235-332.
- [SOL96] L. Solymar, D.J. Webb et A. Grunnet-Jepsen, *The physics and applications of photorefractive materials*, Clarendon Press, Oxford (1996).
- [STR86] F.P. Strohkendl, J.M.C. Jonathan. et R.W Hellwarth, Hole-electron competition in photorefractive gratings, *Opt. Lett.* **11** (1986) 312.
- [SUG95] B. Sugg, K. Shcherbin et J. Frejlich, Determination of the time constant of fast photorefractive materials using the phase modulation technique, *Appl. Phys. Lett.* **66** (1995) 3257.

- [TAY91] P. Tayebati et D. Mahgerefteh, Theory of the photorefractive effect for $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ and BaTiO_3 with shallow traps, *J. Opt. Soc. Am. B* **8** (1991) 1053.
- [VAN98] U. van-Stevendaal, K. Buse, H. Malz, H. Veenhuis et E. Kratzig, Reduction of light-induced refractive-index changes by decreased modulation of light patterns in photorefractive, *J. Opt. Soc. Am. B* **15** (1998) 2868.