



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

76105369

Ecole doctorale EMMA

THESE

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	2002/1025
Cote	S/MZ 02/32
Loc	

Présentée à l'Université de Metz par

Saïda BAHSINE

Pour obtenir le grade de **DOCTEUR** es Sciences

Spécialité: **PHYSIQUE**

**Caractérisation optique et électro-optique des cristaux
photoréfractifs $BaTiO_3$ dopés Rh ($BaTiO_3: Rh$) et $Ba_xCa_{1-x}TiO_3$
dopés rhodium**

Soutenue le 28 Novembre 2002 devant la Commission d'examen

JURY

- P. JULLIEN** Professeur à l'Université de Bourgogne, France (Rapporteur)
K. ROLEDER Professeur à l'Université de Silésie- Katowice, Pologne (Rapporteur)
P. MORETTI Maître de conférence à l'Université de Lyon I, France (Président)
D. RYTZ Docteur d'état, directeur de FEE, Idar Oberstein, Allemagne (Examineur)
G. KUGEL Professeur à l'Université de Metz, France (Directeur de thèse)
A. MAILLARD Maître de conférence à l'Université de Metz, France (Co-encadrant de thèse)

Ecole doctorale EMMA

THESE

Présentée à l'Université de Metz par

Saïda BAHSINE

Pour obtenir le grade de **DOCTEUR es Sciences**

Spécialité: **PHYSIQUE**

**Caractérisation optique et électro-optique des cristaux
photoréfractifs BaTiO_3 dopés Rh ($\text{BaTiO}_3: \text{Rh}$) et $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3$
dopés rhodium**

Soutenue le 28 Novembre 2002 devant la Commission d'examen

JURY

- P. JULLIEN** Professeur à l'Université de Bourgogne, France (Rapporteur)
K. ROLEDER Professeur à l'Université de Silésie- Katowice, Pologne (Rapporteur)
P. MORETTI Maître de conférence à l'Université de Lyon I, France (Président)
D. RYTZ Docteur d'état, directeur de FEE, Idar Oberstein, Allemagne (Examineur)
G. KUGEL Professeur à l'Université de Metz, France (Directeur de thèse)
A. MAILLARD Maître de conférence à l'Université de Metz, France (Co-encadrant de thèse)

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué à l'institut CLOES de l'Université de METZ, au laboratoire Matériaux Optiques Photonique et Systèmes (LMOPS CNRS FRE 2304), dirigé par le Professeur M. FONTANA que je tiens à remercier pour m'y avoir accueilli.

Je remercie tout particulièrement le Professeur G. KUGEL, mon directeur de thèse pour la confiance qu'il m'a accordée en m'accueillant au sein de son groupe. Je tiens à lui exprimer toute ma reconnaissance pour ses conseils, tant sur le plan scientifique que sur le plan humain.

J'ai le vif plaisir de remercier Monsieur Alain MEILLARD, Co-encadrant Maître de Conférences, pour son optimisme, son aide précieuse et ses nombreuses idées. Sa contribution à ce travail de thèse est considérable.

Je suis très honoré que Monsieur P. JULLIEN, Professeur à l'Université de Bourgogne, et Monsieur K. ROLEDER, Professeur à l'Université de Silésie-Katowice, aient accepté la lourde charge d'être rapporteurs de ce travail.

Je remercie également le directeur de FEE, D. RYTZ pour sa gentillesse, les nombreux cristaux qu'il a réalisés pour nous et sa présence en tant qu'examineur de ma thèse.

Que Monsieur P. MORRTTI, Maître de Conférence à l'Université de Lyon I, soit remercié pour l'honneur qu'il fait en acceptant d'être examinateur de ce travail.

Je souhaite adresser un remerciement à tous ceux qui ont su m'apporter leur aide tout au long de ce travail, I. Franke, J.P SALVESTRINI, J. ZAYER, F. VOLTZ.

Merci à A. AHAILOUF, Stéphanie et Fatiha avec lesquels j'ai partagé les hauts et les bas pendant les années de ma thèse.

Je suis particulièrement reconnaissante à R. Kremer et M. AILLERIE pour leur disponibilité et leur aides dans tous les problèmes informatiques que j'ai pu rencontrer.

J'exprime également ma gratitude à tous mes amis que j'ai eu le plaisir de côtoyer tout au long de ma thèse, mes collègues de bureau et de laboratoire MOPS et Supeléc... Mes remerciements s'adressent à tous les membres du MOPS et d'une façon générale à tout le CLOES.

Enfin, une pensée toute particulière à mes parents, mes frères et sœurs, mes amis et à tous ceux qui me sont chers.

Tables des matières

Introduction	1
Chapitre I: Effet photoréfractif dans le titanate de baryum (BaTiO₃)	4
1. Introduction	5
2. Présentation de l'étude	
2.1. Introduction	5
2.2. Structure du gyroscope à Fibre Optique et le projet	5
2.3. Choix d'un cristal photoréfractif	8
3. Effet photoréfractif dans BaTiO₃: Rh et Ba_xCa_{1-x}TiO₃: Rh	9
3.1 Définition de l'effet photoréfractif	9
3.2 Couplage d'ondes et notion de gain photoréfractif	11
3.2.1 Gain photoréfractif	11
3.2.2 Calcul de la modulation d'indice et du coefficient électro-optique effectif	12
3.3 Dopage du matériau	16
3.4 Modèle de transport de charges dans BaTiO ₃ : Rh et Ba _x Ca _{1-x} TiO ₃ : Rh à λ=850 nm	17
3.4.1 Modèle à trois états de charges, application à BaTiO ₃ :Rh à λ=850 nm	17
3.4.2 Champ de charge d'espace à l'état stationnaire	19
3.4.3 Modèle de transport de charges pour Ba _x Ca _{1-x} TiO ₃ : Rh	21
3.5 Détermination des paramètres internes de BaTiO ₃ : Rh et Ba _x Ca _{1-x} TiO ₃ :Rh à λ=850nm	23
3.6. Densité effective de pièges N _{eff}	25
4. Conclusion	25
Chapitre II : Préparation des cristaux de BaTiO₃	27

1. Introduction	28
2. Croissance cristalline	28
2.1. Les cristaux de titanate de baryum pur $BaTiO_3$	28
2.2. Système de croissance $BaTiO_3$ - $CaTiO_3$	30
3. Propriétés cristallographiques de $BaTiO_3$	31
3.1. Cristaux purs	31
3.2. Les cristaux dopés	33
3.2.1. Titanate de baryum dopé rhodium ($BaTiO_3 : Rh$)	33
3.2.2. Titanate de baryum dopé calcium $Ba_xCa_{1-x}TiO_3$ (BCT)	34
3.3. Obtention d'un échantillon monodomaine	35
4. Présentation des échantillons utilisés	36
5. Conclusion	37
Chapitre III : Propriétés optiques linéaires dans $BaTiO_3$	38
1. Introduction	39
2. Spectres d'absorption visible et infrarouge pour les cristaux de $BaTiO_3$	
2.1. Introduction	39
2.2. Etude bibliographique	39
2.3. Technique expérimentale	41
2.3.1. Dispositif expérimental	41
2.3.2. Méthode de mesure des coefficients d'absorption	42
2.4. Résultats de mesure des coefficients d'absorption	43
2.4.1. Absorption en lumière polarisée pour $BaTiO_3 : Rh$	43
2.4.1.1. Spectres d'absorption	44
2.4.1.2. Etude cartographique des coefficients d'absorption à $\lambda=632,8nm$	46
a) Cartographie du coefficient d'absorption ordinaire (α_o)	47
b) Cartographie du coefficient d'absorption extraordinaire (α_e)	48
c) Conclusion	49
2.4.2. Spectres d'absorption de $Ba_xCa_{1-x}TiO_3: Rh$	50

2.5. Les niveaux d'impuretés de BaTiO ₃ : Rh et BCT : Rh	51
2.6. Conclusion	52
3. Mesure des indices de réfraction ordinaire et extraordinaire	53
3.1. Introduction	53
3.2. Ellipsoïde des indices	54
3.3. Indice de réfraction de BaTiO ₃ et de BCT	54
3.4. Résultats expérimentaux des indices de réfraction de BaTiO ₃ : Rh	55
3.4.1. Indice de réfraction à 632,8 nm	56
a) Indice ordinaire n _o	56
b) Indice extraordinaire n _e	58
3.4.2. Indices de réfraction aux longueurs d'onde: 532 nm et 850 nm	61
a) Indice ordinaire n _o	61
b) Indice extraordinaire n _e	62
3.4.3. Tableau récapitulatif	65
3.5. Difficultés rencontrées	66
3.6. Conclusion	69
4. Constantes diélectriques et piézoélectriques	70
4.1. Introduction	70
4.2. Constantes diélectriques	70
4.2.1. Généralités sur les constantes diélectriques	70
4.2.2. Etude bibliographique sur les constantes diélectriques	70
4.2.2.1. Coefficients diélectriques de BaTiO ₃ à température ambiante	70
4.2.2.2. Effet du dopage en fer	71
4.2.2.3. Influence du dopage en calcium (Ba _x Ca _{1-x} TiO ₃)	73
4.2.3. Mesure de la constante diélectrique ε ₃₃ ^T de BaTiO ₃ : Rh	73
4.2.3.1. Dispositif expérimental	73
4.2.3.2. Influence du dopage en rhodium	74
4.2.3.3. Etude en fonction de la température	75
4.3. Effet piézoélectrique dans BaTiO ₃	75

4.3.1. Tenseur piézoélectrique	75
4.3.2. Coefficients piézoélectriques à température ambiante de BaTiO ₃ pur et dopé	76
4.3.3. Mesure du coefficient piézoélectrique d ₃₁ du BaTiO ₃ : Rh	77
4.3.3.1. Résultats expérimentaux pour BaTiO ₃ : Rh	77
4.3.3.2. Etude en fonction de la température	77
5. Conclusion	79
Chapitre IV : Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃:Rh et BCT:Rh)	81
1. Introduction	82
2. Effet électro-optique dans BaTiO₃	82
2.1. Introduction	82
2.2. Définition des coefficients électro-optiques	82
2.3. Influence d'un champ électrique appliqué	83
2.3.1. Champ électrique parallèle à l'axe ferroélectrique, mesure de r ₁₃ et r ₃₃	84
2.3.2. Champ électrique perpendiculaire à l'axe mesure de r ₄₂	85
2.4. Rappel bibliographique sur les coefficients électro-optiques	88
2.4.1. Coefficients électro-optiques de BaTiO ₃ à température ambiante	88
2.4.2. Influence du dopage au fer	89
2.4.3. Influence de la longueur d'onde	90
b) Ajustement par la relation de Sellmeier	90
2.4.4. Influence de la concentration en lacunes d'oxygène	91
2.4.5. Influence du calcium sur BaTiO ₃ (BCT)	91
2.5. Contribution piézo-optique aux différents coefficients EO	92
2.6. Conclusion	93
3. Montages expérimentaux pour la détermination des coefficients EO de BaTiO₃: Rh et BCT: Rh	94
3.1. Introduction	94
3.2. Montages expérimentaux de type interférométrique	94

3.2.1. Généralités	94
3.2.2. Description de l'interféromètre de Michelson adapté aux mesures de r_{13} et r_{33}, réglages et mesures	95
3.2.2.1. Dispositif expérimental	95
3.2.2.2. Réglage du cristal	97
3.2.2.3. Effet pyroélectrique pour déterminer le sens de l'axe C	97
3.2.2.4. Automatisation du système et visualisation	98
3.2.2.5. Fonction de transfert de l'interféromètre de Michelson	98
3.2.3. Montage à compensation à polarisation linéaire de type Sénarmont	100
3.2.3.1. Description du montage	101
3.2.3.2. Fonction de transfert du système	102
3.2.3.3. Réglages et principes	103
3.3. Conclusion	104
4. Résultats expérimentaux des coefficients EO pour BaTiO₃:Rh et BCT: Rh	
4.1. Introduction	105
4.2. Etude des coefficients EO du BaTiO₃ dopé rhodium	105
4.2.1. Mesures des coefficients EO déterminés par la méthode interférométrique (r_{13} et r_{33})	105
4.2.1.1. Résultats expérimentaux à 632, 8nm	107
a) Mesure de r_{13}	107
b) Mesure de r_{33}	108
4.2.1.2. Influence de la température	110
a) Etude de r_{33} en fonction de la température	110
b) Comparaison de l'évolution de la constante diélectrique ϵ_{33} avec r_{33} en fonction de la température	112
4.2.1.3. Résultats expérimentaux à $\lambda=850\text{nm}$	114
a) Mesure de r_{13}	114
b) Mesure de r_{33}	115
4.2.1.4. Comparaison des coefficients EO en fonction de la longueur d'onde	117

4.2.1.5. Problèmes rencontrés en appliquant le champ électrique statique dans les cristaux photoréfractifs et les solutions proposés	118
4.2.1.6. Validation de la technique par le cristal LiNbO ₃	119
4.2.1.7. Origine de la dérive des points expérimentaux	122
4.2.2. Mesure des coefficients EO r_{42} et r_c à partir du banc Sénarmont	123
4.2.2.1. Mesure de r_c	123
a) Résultats de r_c à $\lambda=632,8$ nm	124
b) Résultats de r_c à $\lambda=850$ nm	125
4.2.2.2. Mesure de r_{42}	109
a) Conditions expérimentales	126
b) Résultats expérimentaux	127
4.2.3. Analyse et discussion des résultats	128
4.2.3.1. Comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes	128
4.2.3.2. Tableau récapitulatif	129
4.2.3.3. Analyse du comportement en fréquence du coefficient EO r_{42}	130
4.3. Mesure des coefficients EO de BCT : Rh	131
4.3.1. Résultats expérimentaux à $\lambda=632,8$ nm	132
a) Mesure r_{13}	132
b) Mesure r_{33}	133
4.3.2. Résultats expérimentaux à $\lambda=850$ nm	134
a) Mesure r_{13}	134
b) Mesure r_{33}	135
4.3.3. Tableau récapitulatif	136
5. Conclusion	136
Conclusion Générale	138
Références bibliographiques	141
Annexe A: Différentes contributions à l'effet photoréfractif	

Annexe B: Protocole de mesure des indices de réfraction

Annexe C: Description de la technique de mesure des coefficients EO

Introduction

L'effet photoréfractif fut découvert en 1966 par Ashkin et ses collaborateurs [A. Ashkin 66]. Ils ont mis en évidence que l'indice du niobate de lithium était modifié par un faisceau laser. Assez rapidement, les applications potentielles de ce phénomène sont apparues et ont donné lieu à de nombreuses études sur les matériaux présentant des propriétés photoréfractives (Yariv et Yeh [Y. Yariv 84], et P. Yeh [P. Yeh 93]).

La caractérisation optique et électrooptique des cristaux photoréfractifs (BaTiO_3 : Rh et BCT: Rh) faisant l'objet du présent travail, est liée à un projet industriel: l'insertion d'un miroir à double conjugaison de phase dans un gyroscope à fibre optique fonctionnant à 850 nm.

Le cristal BaTiO_3 est un des meilleurs candidats du fait de sa haute sensibilité photoréfractive. En outre les propriétés photoréfractives peuvent être ajustées à la longueur d'onde désirée à l'aide de dopants tel que le rhodium (Rh). Cependant, ce matériau a une température de transition de phase à quelques degrés au-dessus de 0 °C, ce qui le rend inutilisable dans des systèmes embarqués. Un dopage additionnel par du Calcium (Ca) permet d'éviter ce problème.

D'une façon générale, l'effet photoréfractif dépend de l'effet électro-optique à travers le coefficient électro-optique effectif. Une bonne connaissance de cet effet est donc nécessaire à l'étude et à la maîtrise de l'effet photoréfractif.

Le but de notre travail consiste donc à étudier les propriétés optiques linéaires et non linéaires des cristaux photoréfractifs du titanate de baryum dopés rhodium (BaTiO_3 : Rh) et titanate mixte baryum- calcium dopés rhodium ($\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3$: Rh) en fonction de la longueur d'onde et de la température. Les propriétés étudiées sont les suivantes: les spectres d'absorption, les constantes diélectriques, les coefficients piézo-électriques, les indices de réfraction et les coefficients électro-optiques.

Dans cette optique nous avons été amenés à développer différents dispositifs expérimentaux pour mesurer les coefficients électro-optiques et pour déterminer les indices de réfraction. Cette étude est répartie dans ce mémoire en quatre chapitres :

Dans le **premier chapitre**, nous présentons l'intérêt de la conjugaison de phase dans les gyromètres à fibre optique. Puis nous expliquons le choix du matériaux photoréfractifs par l'étude de la sensibilité des cristaux BaTiO_3 dopés rhodium et calcium aux longueurs d'onde proche infrarouge.

Dans le **deuxième chapitre**, nous rappelons les techniques de croissance utilisées pour fabriquer les cristaux de titanate de baryum, leurs structures ainsi que les dopages utilisés dans cette étude.

Le **chapitre trois**, comprend trois parties: La première montre l'influence des différents dopants sur les spectres d'absorption. La seconde partie est consacrée à la mesure des indices de réfraction ordinaire et extraordinaire des cristaux étudiés, en fonction de la longueur d'onde. Enfin, la troisième partie porte sur l'étude des constantes diélectriques et piézoélectriques des cristaux BaTiO₃ dopés rhodium. L'évolution de la constante diélectrique en fonction de température sera comparée à celle des coefficients piézoélectriques et électro-optiques.

Enfin, le **quatrième chapitre** regroupe trois parties : une première partie dans laquelle nous rappelons les définitions des effets électro-optiques dans le titanate de baryum, nous expliquons le principe de mesure des différents coefficients et enfin, nous donnons une étude bibliographique de ces coefficients pour le BaTiO₃ pur et dopé au fer et le titanate mixte baryum calcium.

La seconde partie est consacrée à l'étude des coefficients r_{13} , r_{33} , r_{42} et r_c à l'aide de montages interférométriques et Sénarmont.

Dans la dernière partie, nous donnons les différentes valeurs des coefficients électro-optiques et leurs variations avec la longueur d'onde, la température et le dopage en rhodium et calcium. Pour l'intérêt et la lisibilité de ce mémoire, de nombreux aspects du travail de thèse ont été reportés en annexes.

L'annexe A présente les différentes contributions à l'effet photoréfractif et électro-optiques.

L'annexe B présente le banc expérimental ainsi que la méthode et les équations permettant le calcul des indices de réfraction.

L'annexe C décrit le banc interférométrique ainsi que le protocole de mesure et les équations permettant de déterminer les coefficients EO.

Chapitre I:
**Effet photoréfractif dans le titanate de
baryum (BaTiO₃)**

1. Introduction

L'effet photoréfractif ouvre la voie à de nombreuses applications basées sur la variation d'indice photo-induite. Il est particulièrement efficace dans le titanate de baryum, en raison de la forte valeur des coefficients électro-optiques et d'un gain photoréfractif très élevé, ce qui permet notamment de réaliser un miroir à conjugaison de phase [M. H. Garrett 92-1] L'utilisation des propriétés photoréfractives du titanate de baryum aux longueurs d'onde proche infrarouge et à des plages de températures élargies, nécessite l'introduction de dopants tels que le rhodium et le calcium.

Nous présentons dans la première partie les gyromètres à fibre optique. Puis nous expliquons l'intérêt de la conjugaison de phase dans de tels systèmes enfin, nous précisons le choix du matériau photoréfractif. La seconde partie rappellera : le principe de l'effet photoréfractif et du couplage à deux ondes ainsi que les modèles photoréfractifs utilisés habituellement pour décrire les phénomènes observés dans les cristaux de titanate de baryum dopés rhodium BaTiO₃ : Rh et de titanate mixte de baryum et calcium Ba_xCa_{1-x}TiO₃: Rh noté par la suite BCT :Rh à la longueur d'onde $\lambda=850$ nm.

2. Présentation de l'étude

2.1. Introduction

Le travail concerne la caractérisation optique et électro-optique des cristaux photoréfractifs BaTiO₃ et BCT dopés rhodium. Il s'inscrit dans le projet de recherche industriel SYRECIDE, et concerne la modification d'un gyroscope à fibre optique utilisé comme station inertielle notamment dans l'avionique. Dans un premier temps je vais présenter le gyroscope à fibre optique basé sur un miroir à conjugaison de phase ainsi que le choix des cristaux

2.2. Structure du gyroscope à Fibre Optique (FOG) et le projet

La précision d'un gyroscope à fibre optique est gouvernée par la réciprocity de l'interféromètre. Le schéma de principe d'un tel appareil est présenté dans la figure suivante (Figure 2. 1),.

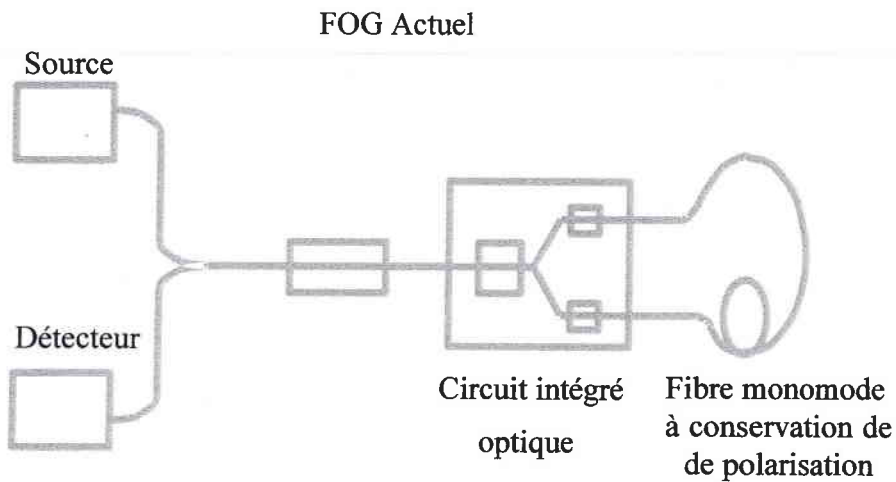


Figure 2.1: Structure du gyroscope actuelle

La fibre monomode à conservation de polarisation garantit cette réciprocity et permet à la lumière entrante d'être recouplée dans l'optique intégrée. Cependant, ce type de fibre a un procédé de fabrication plus complexe et son coût est donc plus élevé.

Le gyroscope à fibre optique proposé est composé: d'une fibre multi-modes utilisée classiquement en télécommunication et d'un miroir à conjugaison de phase assurant la réciprocity des ondes qui se propagent dans l'interféromètre de Sagnac (figure 2. 2).

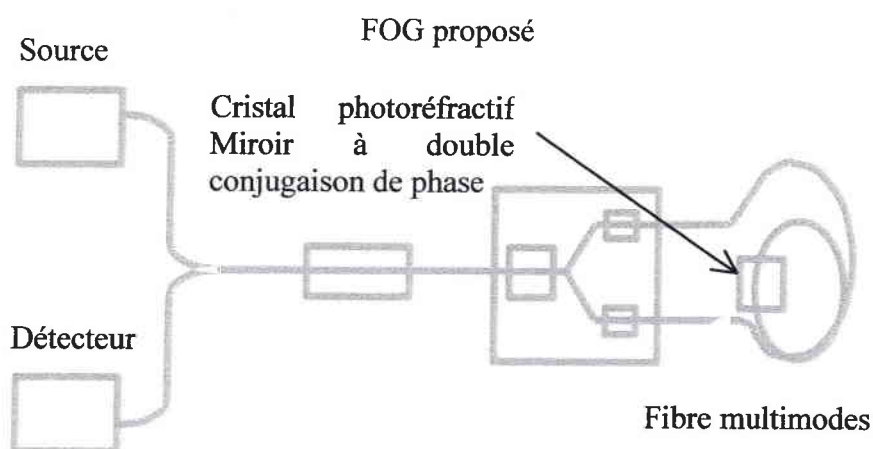


Figure 2. 2: Le gyroscope à fibre optique basé sur un cristal photoréfractif

Chapitre I: Présentation de l'étude et effet photoréfractifs des cristaux BaTiO₃: Rh et BCT:Rh

Cette nouvelle structure utilise le miroir à double conjugaison de phase (MDCP), la lumière sortante de ce composant est conjuguée à la lumière entrante et peut donc être recouplée. Ce miroir MDCP étant intégré dans le gyroscope à fibre optique (FOG) doit fonctionner aux longueurs d'onde infrarouge et pour des températures allant jusqu'à - 70 C. Ce projet a été réalisé par les partenaires suivants:

- La SFIM (Société Française d'Industrie Métallique) à Paris maintenant intégrées à la SAGEM est l'initiateur et le coordonnateur du projet.
- Supélec (école d'ingénieur) à Metz dont la tâche consiste à concevoir une source laser émettant à $\lambda = 850$ nm, adaptée au gyroscope à fibre optique.
- La société FEE (Forschungsinstitut Für Mineralische Und Metallische Werkstoffe Edelsteine / Edelmetalle) implantée à Idar-Oberstein en Allemagne, s'occupe de la fabrication des cristaux BaTiO₃ et BCT dopés rhodium et de leur préparation.
- Le laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée situé à Orsay assure l'étude photoréfractive du couplage deux ondes et du MDCP et réalise l'insertion de celui ci dans le gyroscope.
- Enfin notre Laboratoire MOPS chargé de l'analyse et de la caractérisation optique des cristaux en étudiant les propriétés optiques linéaires (homogénéité, absorption et indice de réfraction) et non linéaires (coefficient électro-optique en fonction de la température et de la longueur d'onde). Dans ce contexte, nous avons été amenée à développer des dispositifs expérimentaux pour mesurer les coefficients électro-optiques et les indices de réfraction à plusieurs longueurs d'ondes. Compte tenu des difficultés rencontrées lors des mesures dans les matériaux photoréfractifs, des précautions particulières ont dû être prises afin d'obtenir des résultats reproductibles.

2.3. Choix d'un cristal photoréfractif

De nombreux matériaux présentent des propriétés photoréfractives; on cite par exemple:

- Les semi-conducteurs tels que ZnCdTe ou InP ont l'avantages d'être sensibles aux longueurs d'ondes des télécommunications 1,3 μm et 1,55 μm [Petrov 89]
- Les ilménites (LiNbO₃, LiTaO₃) sont souvent utilisés en stockage holographique [D.L. Staebler 72], [D. Von der Linde 75].
- Les pérovskites (KNbO₃, KTa_{1-x}Nb_xO₃, BaTiO₃) sont intéressants pour leurs forts coefficients électro-optiques qui les rendent utilisables dans de nombreuses applications comme la réalisation de modulateurs électro-optiques ou de miroirs à conjugaison de phase [J. Feinberg 82]. Par ailleurs, dès 1987, Weiss et ses collaborateurs [S. Weiss 87] envisagent d'appliquer la photoréfraction à la soustraction d'image. Mc Michael et al. [Mc Michael 87] reprennent l'idée d'introduire un miroir à conjugaison de phase dans un gyroscope à fibre optiques. Le BaTiO₃ est un des meilleurs candidats du fait de sa haute sensibilité photoréfractive. Cependant, ces matériaux ne sont pas sensibles aux longueurs d'onde d'infrarouge. Afin de rendre ce cristal sensible dans l'infrarouge, on le dope en rhodium (BaTiO₃: Rh) [G. W. Ross 93]. Cependant, ce matériau a une température de transition de phase à quelques degrés au-dessus de 0⁰ C ce qui le rend délicat à intégrer dans un système industriel. L'introduction de calcium dans la structure [Ch. Kuper 97] permet d'éviter ce problème en déplaçant la température de transition de phase vers des températures plus basses

3. Effet photoréfractifs dans BaTiO₃: Rh et Ba_xCa_{1-x}TiO₃ : Rh

3.1. Définition de l'effet photoréfractif

L'effet photoréfractif est une combinaison de plusieurs phénomènes distincts :

- La photoconduction: Elle se traduit par l'excitation des charges aux endroits éclairés, ces charges étant transportées par entraînement, diffusion ou effet photovoltaïque, puis piégées dans les zones sombres. Il apparaît ainsi un champ électrique dans le matériau, appelé le champ de charge d'espace.
- L'effet électro-optique: Il induit une modulation d'indice à partir de la modulation du champ de charge d'espace.

Chapitre I: Présentation de l'étude et effet photoréfractifs des cristaux BaTiO₃: Rh et BCT:Rh

La figure (3. 1) montre l'installation du champ de charge d'espace ainsi que la modulation d'indice créée par ce mécanisme.

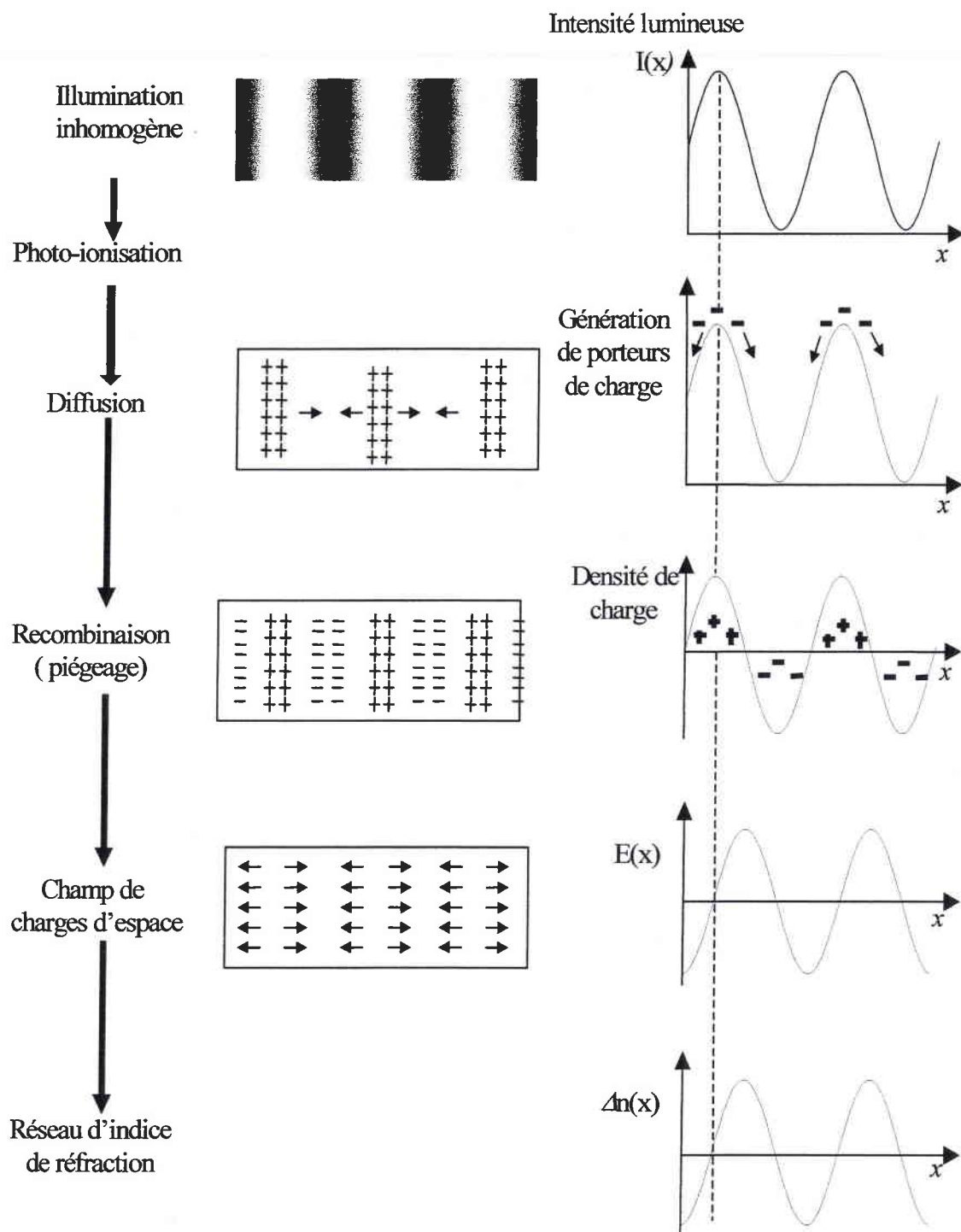


Figure 3. 1 : Mécanisme de modulation d'indice dans un cristal photoréfractif

3. 2 Couplage d'ondes et notion de gain photoréfractif

Lorsque deux ondes interfèrent dans un cristal photoréfractif, il se crée par effet photoréfractif un réseau d'indice déphasé par rapport au réseau d'illumination. La valeur du déphasage dépend du mécanisme de transport ainsi que du signe des porteurs de charges. Dans le cas de BaTiO₃, le transport de charge se fait plus généralement par diffusion; le déphasage étant alors de $\pi/2$, il s'ensuit un couplage entre les deux faisceaux, ce qui se traduit par un transfert d'énergie du faisceau pompe vers le faisceau sonde. Le sens du transfert d'énergie dépend d'une part du signe des porteurs majoritaires, généralement des trous dans le cas BaTiO₃, et d'autre part du sens de la polarisation spontanée P_S .

3.2. 1. Gain photoréfractif

Lorsque deux ondes planes cohérentes d'intensités I_s et I_p , de longueur d'onde λ et de vecteurs d'onde \vec{k}_s et \vec{k}_p faisant un angle 2θ entre elles interfèrent dans un cristal photoréfractif (figure 3. 2), elles produisent un champ d'interférence dont l'intensité est [K. Blotekjaer 77]:

$$I(x) = I_o (1 + m \cos \vec{k}_g \cdot \vec{r}) \quad (3.1)$$

avec :

$$I_o = I_s + I_p \quad \text{intensité totale incidente}$$

$$m = 2 \frac{\sqrt{I_s I_p}}{I_s + I_p} \quad \text{taux de modulation}$$

$$\vec{k}_g = \vec{k}_s - \vec{k}_p \quad \text{vecteur d'onde du réseau d'illumination}$$

$k_g = \frac{2\pi}{\Lambda} = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$ module du vecteur d'onde Λ étant le pas du réseau et λ la longueur d'onde des faisceaux dans l'air.

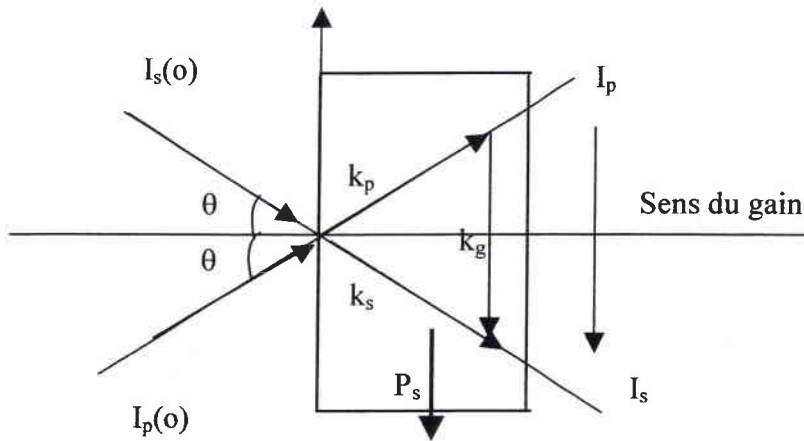


Figure 3. 2 : Configuration du mélange deux ondes

Ainsi, dans le cas de la configuration de la figure 2, le faisceau signal I_s sera amplifié ou inversement atténué au détriment du faisceau pompe I_p . Le gain g s'exprime à partir des intensités de sortie de I_s par l'équation suivante :

$$g = \frac{I_s \text{ en présence de } I_p}{I_s \text{ seul}} = e^{\Gamma L} \quad (3.2)$$

Avec:

Γ : le gain exponentiel (ou gain absolu)

L : la longueur d'interaction des deux faisceaux dans le cristal

Le transfert d'énergie caractérisé par un gain en mélange des deux ondes Γ est donné par:

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\lambda} n^3 r_{\text{eff}} E_{\text{sc}} \left(\vec{e}_s \cdot \vec{e}_p \right) \quad (3.3)$$

où λ est la longueur d'onde dans le vide, n l'indice de réfraction, r_{eff} le coefficient électro-optique effectif (qui sera défini dans le paragraphe suivant), E_{sc} l'amplitude du champ de charge d'espace et $\vec{e}_s \cdot \vec{e}_p$ le produit scalaire entre les vecteurs unitaires parallèles au champ électrique de chaque faisceau incident. Ce produit scalaire dépend uniquement de la polarisation. La dépendance du gain photoréfractif avec le vecteur réseau $k_g = \frac{4\pi n \sin\theta}{\lambda_0}$ et l'intensité incidente vient du champ de charge d'espace qui est décrit dans la plupart des cas par la formule générale [N.V Kukhtarev 79 et [Y. Fainman 86]:

$$E_{\text{sc}}(k_g, k_0) = \frac{k_B T}{e} \frac{k_g}{1 + \frac{k_g^2}{k_0^2}} \quad (4)$$

avec $k_B T$ est l'énergie thermique (k_B est la constante de Boltzmann) et k_0 est le vecteur d'onde d'écran de Debye.

Ce vecteur d'onde k_0 est fonction de la densité effective de pièges N_{eff} donné par

$$\text{l'expression : } k_0^2 = \frac{e^2 N_{\text{eff}}}{k_B T \epsilon_0 \epsilon^{\text{eff}}} \quad (5)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et ϵ^{eff} est la constante diélectrique effective.

3.2.2 Calcul de la modulation d'indice et coefficient électro-optique effectif

Lorsque les deux faisceaux d'illumination éclairent le cristal, ils créent une figure d'interférence induisant le champ de charge d'espace spatialement modulé dans le matériau. L'angle entre les faisceaux dans le cristal est 2θ , α est l'angle entre le vecteur réseau \vec{k}_g et l'axe C . Les angles θ et α sont pris à l'intérieur du cristal (figure 3.3).

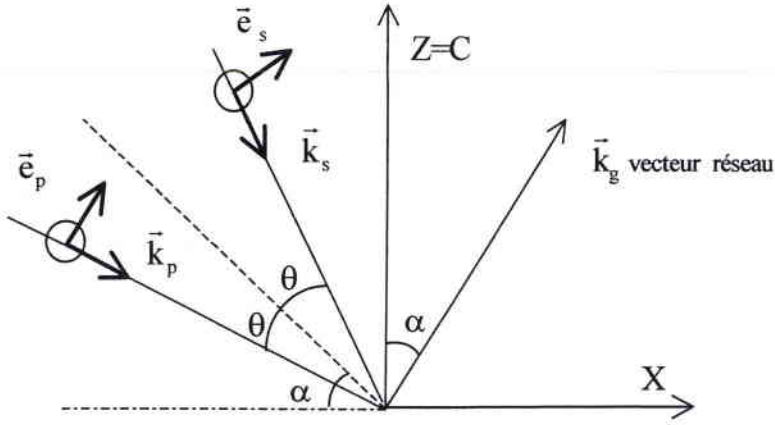


Figure 3.3 : Orientation des faisceaux par rapport aux axes du cristal et conventions d'angles

Considérons le champ de charge d'espace présent dans le cristal sur la forme $\vec{E} = m\vec{E}_{sc} \cos(\vec{k}_g \cdot \vec{r})$ avec m le taux de modulation de la figure d'interférence et E_{sc} l'amplitude du champ de charge d'espace. La modulation d'indice induite par ce champ s'exprime sous la forme de la modulation du tenseur [P. Günter 91] :

$$\Delta\eta_{ij} = r_{ijk}^S E_k + p_{ijkl}^E u_{kl} \quad (3.6)$$

où r_{ijk}^S est le coefficient électro-optique à déformation nulle,

\vec{E}_k est le composante du champ électrostatique dans le matériau selon k ,

$$E_k = E_{sc} n_k \quad (3.7)$$

avec n_k le cosinus directeur du champ de charge d'espace selon k ,

p_{ijkl}^E les coefficients élasto-optiques à champ électrique constant,

u_{kl} est la matrice de déformation induit par effet piézo-électrique : $u_{kl} = \frac{\partial u_k}{\partial x_l}$.

Après avoir calculé la déformation u_{kl} induite par le champ de charge d'espace $E = E_{sc} \cos(\vec{k}_g \cdot \vec{r})$, on obtient [M.Zgonik 94] :

$$(\Delta\eta)_{ij} = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} = r_{ijk}^{\text{eff}} E_{sc} n_k \cos(\vec{k}_g \cdot \vec{r}) = (r_{ijk}^S n_k + p_{ijkl}^E n_l A^{-1}_{ik} B_j) E_{sc} n_k \cos(\vec{k}_g \cdot \vec{r}) \quad (3.8)$$

Avec : $A_{ik} = C_{ijkl}^E n_j n_l$ et $B_i = e_{kij} n_k n_j$

où C_{ijkl}^E sont les constantes élastiques à champ constant et e_{ijk} les coefficients piézoélectriques.

Le premier terme r_{ijk}^{eff} rend compte de l'effet électro-optique linéaire et le deuxième terme des déformations de la maille cristalline. Ces différents tenseurs, participant à l'effet photoréfractif pour BaTiO₃ sont donnés dans l'annexe A.

Pour déterminer le gain photoréfractif, on n'utilise pas la modulation du tenseur d'imperméabilité mais plutôt la modulation du tenseur de permittivité relative $[\Delta\epsilon_{r,ij}^{\omega}]$. Ce tenseur apparaît dans l'expression du gain à travers le coefficient électro-optique effectif pour chaque polarisation propre. Ce coefficient électro-optique effectif est défini par Zgonik [M.Zgonik 95] :

$$r_{\text{eff}} = \frac{1}{n^4 m E_{sc}} \vec{e}_s [\epsilon_r^{\omega}] [\Delta\eta [\epsilon_r^{\omega}]] \vec{e}_p \quad (3.9)$$

avec $[\epsilon_r^{\omega}]$ le tenseur permittivité relative à la fréquence optique. \vec{e}_p et \vec{e}_s sont les polarisations des ondes qui écrivent le réseau. Cette variation d'indice dépend de la direction du champ et diffère pour l'indice ordinaire et l'indice extraordinaire. C'est pourquoi on définit un coefficient électro-optique effectif pour chaque polarisation propre.

Dans le cas de titanate de baryum, le coefficient électro-optique effectif pour une polarisation extraordinaire est donnée par [M. Zgonik 95] :

$$r_{\text{eff}}^{\text{ext}} = \frac{\cos\alpha}{2} [n_o^4 r_{13} (\cos(2\theta) - \cos(2\alpha)) + 4n_o^2 n_e^2 r_{42} \sin^2(\alpha) + n_o^4 r_{33} (\cos(2\theta) + \cos(2\alpha))] \quad (3.10)$$

et en polarisation ordinaire il est exprimé par l'équation:

$$r_{\text{eff}}^{\text{ord}} = r_{13} n_o^2 \cos \alpha \quad (3.11)$$

3.3. Dopage du matériau

Le phénomène photoréfractif est lié à la présence dans le matériau de centres donneurs et de pièges dans la bande interdite. Ces centres peuvent provenir soit d'un dopage intentionnel, soit de la présence d'impuretés à l'état de traces lors de la croissance.

Le dopage consiste à introduire volontairement des impuretés, on substitue au titane un ion (par exemple, un métal de transition). Ces dopants n'étant souvent pas de même valence que l'ion titane, la neutralité électrique du cristal est rétablie grâce à différents mécanismes de compensation de charge comme la création de lacunes d'oxygène. La présence des ions dopants et compensateurs, dont les tailles et les charges sont souvent différentes de celles de l'ion titane, modifie la température de transition de l'échantillon. Par exemple, pour un dopage au fer, la température décroît linéairement avec la concentration, passant de 132°C pour un cristal pur à 114°C pour un cristal dopé à 1% de fer [P. Jullien. 92].

Comme on peut, par dopage, modifier de façon sensible les propriétés des cristaux, il est fréquent d'utiliser ce moyen afin d'améliorer leurs performances. Pierre Jullien et ses collaborateurs [Y. Semanou 87] ont montré que le gain en mélange deux ondes est modifié par le dopage en fer ou le traitement d'oxydoréduction également étudié outre atlantique [S. Ducharme 86]. Le choix de la nature du dopant est lié, entre autres, à la longueur d'onde à laquelle on souhaite travailler. Le dopage au cobalt, par exemple, permet d'augmenter le gain photoréfractif des cristaux dans le domaine visible [D.Rytz 90], [Garrett 92-2]. Ce dopage donne une couleur jaune plus au moins marquée aux échantillons et une absorption d'autant plus importante, que le dopage est fort. Le titanate de baryum dopé rhodium (BaTiO₃ : Rh) permet d'augmenter les propriétés de couplage d'onde dans le domaine du proche infrarouge [M. Kaczmarek 95], [N. Huot 97-1], [N. Huot 97-2]. En 1999, Song et al. [H. Song 00] présentent une étude des niveaux d'impuretés et des processus de transfert de charge induits par illuminations ou thermiquement dans le BaTiO₃ : Rh.

3.4. Modèle de transport de charge dans BaTiO₃ : Rh et Ba_xCa_{1-x} Ti O₃ : Rh à λ=850 nm

Toutes les interprétations photoréfractives reposent sur l'utilisation d'un modèle de bandes faisant intervenir non seulement les bandes de valence et de conduction, mais aussi les niveaux d'impuretés dans la bande interdite.

En 1976, Kukhtarev [N.V. Kukhtarev 76] développa le premier modèle à un niveau d'impureté et un seul type de porteurs; ce modèle a permis d'expliquer au moins qualitativement de nombreux résultats expérimentaux. Par la suite, d'autres modèles pouvant faire intervenir plusieurs niveaux d'impuretés et deux types de porteurs ont été développés. En 1991, Tayebati [P. Tayebati 91] a proposé un modèle de transport de charges basé sur deux types de pièges distincts; ce modèle permet d'expliquer certaines phénomènes observés, comme l'absorption induite et la dépendance du gain photoréfractif avec l'intensité. En 1994, Bachow et ses collaborateurs [M.C. Bachow 94] ont appliqué le modèle à deux types de pièges avec une compétition électrons-trous pouvant s'appliquer au BaTiO₃ dans le domaine du visible.

Dans cette partie, nous allons rappeler les modèles utilisés pour l'interprétation de l'effet photoréfractif pour les cristaux dopés rhodium dans l'infrarouge.

3.4.1. Modèle à trois états de charges application à BaTiO₃:Rh à λ=850 nm

L'analyse chimique des cristaux de BaTiO₃ : Rh a révélé que le rhodium se présente sous trois états de charge : Rh³⁺, Rh⁴⁺, Rh⁵⁺. Deux niveaux sont mis en jeu: Rh^{3+/4+} et Rh^{4+/5+}. Dans ce matériau, la conduction est due aux trous qui existent dans la bande de valence. Le processus de transfert de charge s'écrit donc sous la forme:



où p désignant un trou libre.

Ce modèle est dit «à trois états de charge ». Comme Rh⁴⁺ et Ti⁴⁺ ont le même état de charge, on considère que Rh⁴⁺ a un état de charge « neutre » et sa densité volumique sera notée N. En conséquence, Rh³⁺ apparaît comme un accepteur de trous et Rh⁵⁺ comme un donneur de trous. Leurs densités volumiques respectives seront notées N⁻ et N⁺. La neutralité électrique du matériau est assurée par des densités volumiques constantes N_A (accepteurs d'électrons) et N_D (donneurs d'électrons). Le diagramme proposé pour ce modèle est représenté sur la figure 3.4:

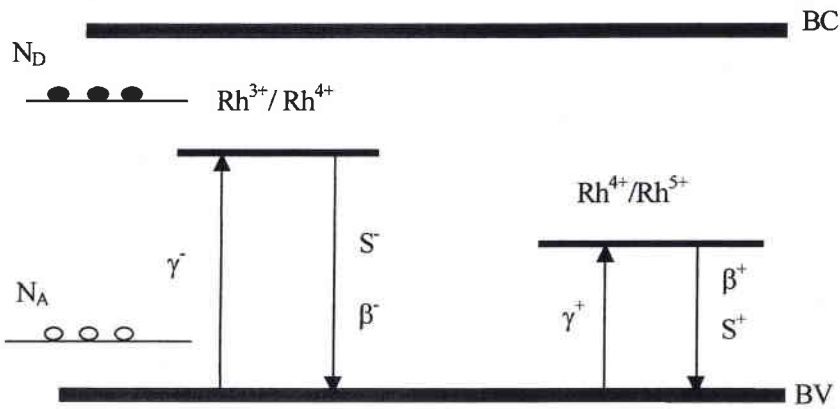


Figure 3 4 : Modèle d'états de charge à trois bandes appliqué sur BaTiO₃ : Rh

S⁻ et S⁺ sont les sections efficaces de photo-ionisation de Rh⁴⁺ et Rh⁵⁺ respectivement, β⁻ et β⁺ sont les taux d'ionisation thermique de ces mêmes niveaux et γ⁻ et γ⁺ sont les taux de recombinaison des trous dans Rh⁴⁺ et Rh⁵⁺ respectivement.

La densité volumique totale du rhodium dans le matériau notée N_T est :

$$N_T = N^- + N + N^+ \quad (3.13)$$

Les équations régissant l'effet photoréfractif sont:

$$\begin{aligned} \frac{\partial N^-}{\partial t} &= (S^- I + \beta^-) N - \gamma^- p N^- \\ \frac{\partial N^+}{\partial t} &= -(S^+ I + \beta^+) N^+ + \gamma^+ p N \end{aligned} \quad (3.14)$$

I est l'intensité lumineuse d'éclairement.

La densité de courant due au déplacement des porteurs et l'équation de continuité des trous sont donnés par :

$$\begin{aligned} \vec{J} &= e\mu\vec{E} - \mu k_B T \vec{\nabla} p \\ e \frac{\partial}{\partial t} (p + N^+ - N^-) + \text{div} \vec{J} &= 0 \end{aligned} \quad (3.15)$$

p représente la densité de trous, e , est la charge (positive) du trou et μ sa mobilité, k_B est la constante de Boltzmann et T la température absolue.

Ces équations sont complétées par l'équation de Poisson qui donne la variation spatiale du champ électrique interne :

$$\text{div} \vec{E} = \frac{e}{\epsilon_0 \epsilon_{r, \text{stat}}} [N_D - N_A + p + N^+ - N^-] \quad (3.16)$$

La résolution de ces équations régissant l'effet photoréfractif pour une illumination modulée $I = I_0 + 1/2(mI_0 e^{ikx} + c.c)$, permet de déterminer le champ de charge d'espace ainsi que les paramètres physiques intervenant dans ce modèle. Les solutions des différentes grandeurs physiques sont cherchées sous la forme:

$$X(\vec{r}) = X_0 + \text{Re}(X_1 e^{-ikr}) \quad (3.17)$$

X_0 correspondant à la solution sous éclaircissement uniforme et X_1 à la modulation de l'amplitude.

3. 4. 2. Champ de charge d'espace à l'état stationnaire

La résolution du système d'équations à l'ordre zéro permet de déterminer les densités de charge fixes à l'état stationnaire $N_{0\text{Stat}}^-$, $N_{0\text{Stat}}$ et $N_{0\text{Stat}}^+$:

$$\begin{aligned} N_{0\text{Stat}}(I_0) &= \frac{1}{1-\kappa} \left[\left[\kappa N_T^2 + \kappa(\kappa-1)(N_A - N_D)^2 \right]^{1/2} - \kappa N_T \right] \\ N_{0\text{Stat}}^+(I_0) &= 1/2 [N_T + N_A - N_D - N_{0\text{Stat}}] \\ N_{0\text{Stat}}^-(I_0) &= 1/2 [N_T - N_A + N_D - N_{0\text{Stat}}] \end{aligned} \quad (3.18)$$

$$\text{Avec } \kappa = \frac{S^+ I_0 + \beta^+ \gamma^-}{S^- I_0 + \beta^- 4\gamma^+}$$

La résolution du système d'équations à l'ordre 1 qui régit le modèle permet de définir deux paramètres importants appelés densités effectives de pièges. Ces paramètres dépendent de l'intensité I :

$$\begin{aligned} N_{\text{eff}}^+ (I) &= N_{\text{ostat}}^+ (I) \frac{(N_T + N_D - N_A)}{N_T} \\ N_{\text{eff}}^- (I) &= N_{\text{ostat}}^- (I) \frac{(N_T - N_D + N_A)}{N_T} \end{aligned} \quad (3.19)$$

La densité effective de pièges totale vaut :

$$N_{\text{eff}} (I) = N_{\text{eff}}^+ + N_{\text{eff}}^- = N_{\text{ostat}}^+ + N_{\text{ostat}}^- \frac{(N_D - N_A)^2}{N_T} \quad (3.20)$$

Les grandeurs physiques qui sont mesurées expérimentalement (rendement holographique, gain en mélange deux ondes) sont liées au champ de charges d'espace, donc l'amplitude complexe de ce dernier modulé à la fréquence spatiale $k_g/2\pi$ est la suivante:

$$E_1 = \text{im} E_{\text{sc}} = \text{im} \frac{k_\beta T}{e} \eta(I) \frac{k_g}{1 + \frac{k_g^2}{k_0^2(I)}} \quad (3.21)$$

$$\text{Avec } k_0^2(I_0) = k_0^{-2} + k_0^{+2} \text{ tel que } k_0^{\pm 2}(I) = \frac{e^2}{k_\beta T \epsilon_0 \epsilon_{r,\text{Stat}}} N_{\text{eff}}^\pm (I) \quad (3.22)$$

Avec k_0^- et k_0^+ : deux nombres d'onde, appelés nombres d'ondes d'écran de Debye.

Dans l'expression précédente, $\eta(I)$ exprime la saturation du gain avec l'intensité, qui s'écrit en première approximation:

$$\eta(I) = \frac{1}{1 + \frac{I_{sat}}{I}} \quad (3.23)$$

Ce terme est reliée physiquement à une compétition entre l'excitation thermique et l'excitation optique par cette expression: $\eta(I) = 1 - \left(\frac{\beta^-}{S^- I_0 + \beta^-} \frac{k_0^{-2}}{k_0^2} + \frac{\beta^+}{S^+ I_0 + \beta^+} \frac{k_0^{+2}}{k_0^2} \right)$ (3.24)

et correspond expérimentalement à l'intensité pour laquelle le gain photoréfractif est divisée par 2.

Si il y a un fort couplage entre les populations des trois états, $k_0(I)$ peut être défini à partir de la population N_0 du niveau intermédiaire seul:

$$k_0 = \frac{e}{k_B T \epsilon_0 \epsilon_{r,stat}} \left[N_T - N_0(I_0) - \frac{(N_D - N_A)^2}{N_T} \right] = \frac{e^2}{k_B T \epsilon_0 \epsilon_{r,stat}} N_{eff}(I) \quad (3.25)$$

Le champ de charge d'espace est déphasé de $\pi/2$ d'où le nombre complexe i dans l'amplitude de E_1 . Il comporte un coefficient $\eta(I)$ qui sature à l'unité lorsque l'intensité croît. Le modèle à trois états de charges prévoit une forte dépendance du champ de charge d'espace avec l'illumination ainsi que la densité effective des pièges. Cet effet n'existe pas dans le modèle simple de Fainman [Y. Fainman 86].

3.4.3. Modèle de transport de charges pour Ba_xCA_{1-x}TiO₃:Rh

L'effet photoréfractif pour BCT : Rh à 850 nm est décrit par un modèle à trois niveaux : deux niveaux de rhodium (Rh^{3+/4+}, Rh^{4+/5+}) et un niveau de fer (Fe^{3+/4+}) [Bernhardt 2000], du fait de la présence de fer en grande quantité dans les cristaux BCT. Nous allons le présenter brièvement.

Sous illumination les impuretés sont photo excitées de la façon suivante :



où p désigne un trou libre. Ce modèle peut être résumé par le diagramme de bande représenté sur la figure (3. 5).

- N_A et N_D représentent respectivement les densités de donneurs et d'accepteurs qui permettent d'assurer la neutralité électrique du matériau.
- S^- , S^+ et S^F sont les sections efficaces de photo-ionisation des trous à partir Rh^{4+} , Rh^{5+} et Fe^{4+} respectivement,
- β^- , β^+ et β^F sont les coefficients d'excitation thermique de ces trois niveaux,
- γ^- , γ^+ et γ^F sont les taux de recombinaison des trous sur Rh^{3+} , Rh^{4+} et Fe^{3+} respectivement.

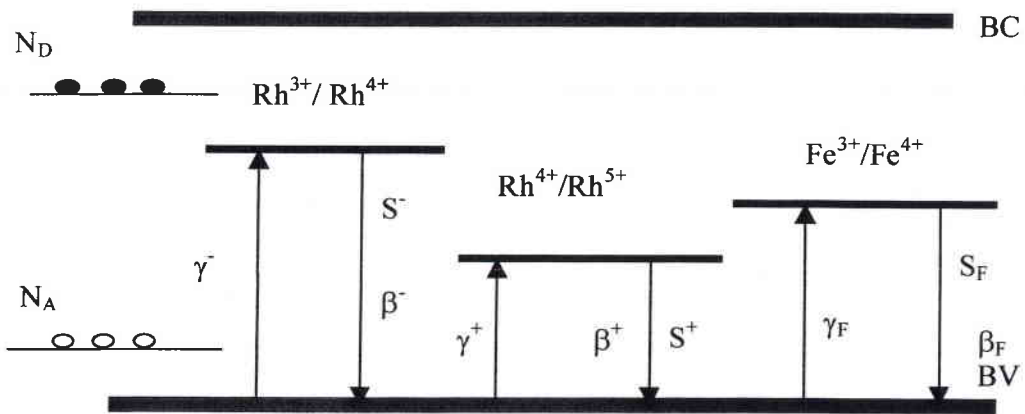


Figure 3. 5 : Schéma des niveaux d'énergie d'un cristal de BCT : Rh contenant du fer comme impureté additionnelle.

Les équations qui régissent l'effet photoréfractif dans ce modèle sont les mêmes que celles du modèle à deux états de charge. Dans ce cas, il y a deux densités, la densité totale de rhodium N_T et la densité totale de fer N_{TF} , nous avons :

$$\begin{aligned} N_T &= N^- + N + N^+ \\ N_{TF} &= N^-_F + N_F \end{aligned} \quad (3.27)$$

Tous ces paramètres sont déterminés par simulations et leurs valeurs sont données dans le paragraphe suivant.

3.5. Détermination des paramètres internes des cristaux BaTiO₃ : Rh et

Ba_xCa_{1-x}TiO₃:Rh à λ=850nm.

Les valeurs de ces paramètres sont obtenues par ajustement des équations avec les résultats expérimentaux obtenus en couplage deux ondes. Ces paramètres ont été déterminés pour des cristaux dopés à 1000 ppm en rhodium pour le BaTiO₃ : Rh [N. Huot 99] et pour le BCT : Rh [Bernhardt 2001-1] à 850 nm. Le tableau 3. 2 résume les valeurs des paramètres intervenant dans ces modèles.

On remarque que les paramètres obtenus pour le niveau de rhodium dans BCT ne s'éloignent pas trop de ceux du niveau de rhodium dans le BaTiO₃ : Rh pour une même longueur d'onde, mis à part la section efficace de photo-ionisation de Rh⁵⁺, le taux de recombinaison vers Rh³⁺ et le taux d'émission thermique de Rh⁴⁺

Paramètres	Valeurs ajustées pour BCT : Rh	Valeurs ajustées BaTiO ₃ : Rh
Section efficace de photo- ionisation de Rh ⁵⁺ : S ⁺ (m ²)	9×10^{21}	$1,24 \times 10^{21}$
Section efficace de photo- ionisation de Rh ⁴⁺ : S ⁻ (m ²)	$0,4 \times 10^{21}$	$0,56 \times 10^{21}$
Section efficace de photo- ionisation de Fe ⁴⁺ : S ^F (m ²)	$0,001 \times 10^{21}$	-
Taux de recombinaison vers Rh ⁴⁺ (m ³ /s) : γ^+	$2,92 \times 10^{14}$	$3,5 \times 10^{14}$
Taux de recombinaison vers Rh ³⁺ (m ³ /s) : γ^-	$15 * \gamma^+$	$0,3 * \gamma^+$
Taux de recombinaison vers Fe ³⁺ (m ³ /s) : γ^F	γ^+	-
Taux d'émission thermique de Rh ⁵⁺ (s ⁻¹) : β^+	2,3	2,3
Taux d'émission thermique de Rh ⁴⁺ (s ⁻¹) : β^-	0 ,0001	0,01
Taux d'émission thermique de Fe ⁴⁺ (s ⁻¹) : β^F	0,000125	-
Concentration totale de fer (m ⁻³) : N _F	64×10^{23}	-
Densité de charges de compensation (m ⁻³) : N _{ad}	$- 0,82 \times 10^{23}$	-
Concentration totale de rhodium pour un cristal dopé à 1000 ppm (m ⁻³) : N _T	$3,3 \times 10^{23}$	$3,3 \times 10^{23}$

Tableau 3. 2 : Paramètres permettant d'ajuster les simulations suivant un modèle à trois niveaux avec les résultats expérimentaux [Bernhardt 2001-1] sur des cristaux BCT : Rh et à deux niveaux à 3 état de charge pour BaTiO₃ : Rh obtenus à 850 nm

3. 6. Densité effective de pièges N_{eff}

La densité effective de piège N_{eff} est un paramètre important dans l'effet photoréfractif. Afin de mesurer ce paramètre pour les cristaux dopés rhodium et calcium, Bernhardt et al [S.Bernhardt 2001-2] ont mesuré la dépendance du gain avec le pas de réseau en déterminant, en polarisation ordinaire, r_{22}^{eff} . Les résultats sont présentés sur le tableau suivant pour le cristal non dopé et les cristaux dopés à différentes quantités.

Cristal	$N_{\text{eff}} (\text{m}^{-3})$	$r_{22}^{\text{eff}} (\text{pm/V})$
BCT non dopé	$6,2 \cdot 10^{22}$	11,6
BCT : Rh 1000ppm	$5,3 \cdot 10^{22}$	13,6
BCT : Rh 2000ppm	$7,2 \cdot 10^{22}$	15,3
BCT : Rh 4000ppm	$8,5 \cdot 10^{22}$	20,3
BCT : Rh 10000ppm	$19,6 \cdot 10^{22}$	22,2

Tableau 3. 3 : Valeurs expérimentales de la densité de pièges et du coefficient électro-optique effectif pour les cristaux de BCT : Rh.

Ce tableau montre que le rhodium a une influence sur la densité effective de pièges et le coefficient électro-optique effectif r_{22}^{eff} dès le dopage à 1000 ppm. Ces paramètres augmentent avec le dopage en rhodium.

4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'influence des différents dopants sur les propriétés photoréfractifs du titanate du baryum pur et son dérivé. Le rappel des modèles existant pour décrire l'effet photoréfractif dans BaTiO₃: Rh et BCT: Rh à 850 nm, a mis en valeur le rôle du rhodium dans la sensibilité photoréfractive à 850 nm. Nous avons mis en évidence des différences importantes entre le BaTiO₃: Rh et le BCT : Rh au niveau du transfert de charges :

Chapitre I: Présentation de l'étude et effet photoréfractifs des cristaux BaTiO₃: Rh et BCT:Rh

modèle à deux niveaux ($\text{Rh}^{3+/4+}$, $\text{Rh}^{4+/5+}$) pour BaTiO₃: Rh et modèle à trois niveaux pour BCT : Rh ; deux niveaux de rhodium ($\text{Rh}^{3+/4+}$, $\text{Rh}^{4+/5+}$) et un niveau de fer ($\text{Fe}^{3+/4+}$).

Chapitre II:

Préparation des cristaux de BaTiO₃

1. Introduction

Les résultats des mesures optiques dans les cristaux sont tributaires de la qualité des échantillons utilisés. Les cristaux qui ont fait l'objet de notre étude proviennent de la société FEE (Idar-Oberstein, Allemagne) qui maîtrise entre autre la croissance du titanate du baryum dopé rhodium (BaTiO₃ : Rh). Les cristaux de titanate du baryum dopé calcium et rhodium (Ba_x Ca_{1-x} TiO₃ : Rh ou BCT : Rh) ont été d'abord synthétisés à l'Université d'Osnabrück puis à Idar Oberstein (FEE). Nous utiliserons ici des cristaux provenant de FEE.

Ce chapitre est consacré à la description des méthodes de croissance des cristaux de titanate de baryum (BaTiO₃) et BCT, ainsi qu'aux rappels de la structure cristalline, des températures de transition et de la structure en domaines.

2. Croissance cristalline

2.1. Les cristaux de titanate de baryum pur BaTiO₃

Les cristaux utilisés proviennent de boules mono-cristallines fabriquées par la société FEE. Le tirage de BaTiO₃ se fait par top- seeded solution growth (TSSG) consistant à faire pousser un cristal à partir d'un germe en contact avec un bain fondu à haute température. Afin d'éviter le passage de la transition hexagonale-cubique à 1450°C, qui est destructive dans le cas d'un bain constitué d'un mélange de 50 % de TiO₂ et de 50 % BaO , la croissance s'effectue dans un mélange non stœchiométrique contenant 65% de TiO₂ et 35% de BaO. Ceci permet de démarrer la croissance à environ 1430°C. Le diagramme d'équilibre de phase suivant (figure 1) nous donne les températures de croissance de BaTiO₃.

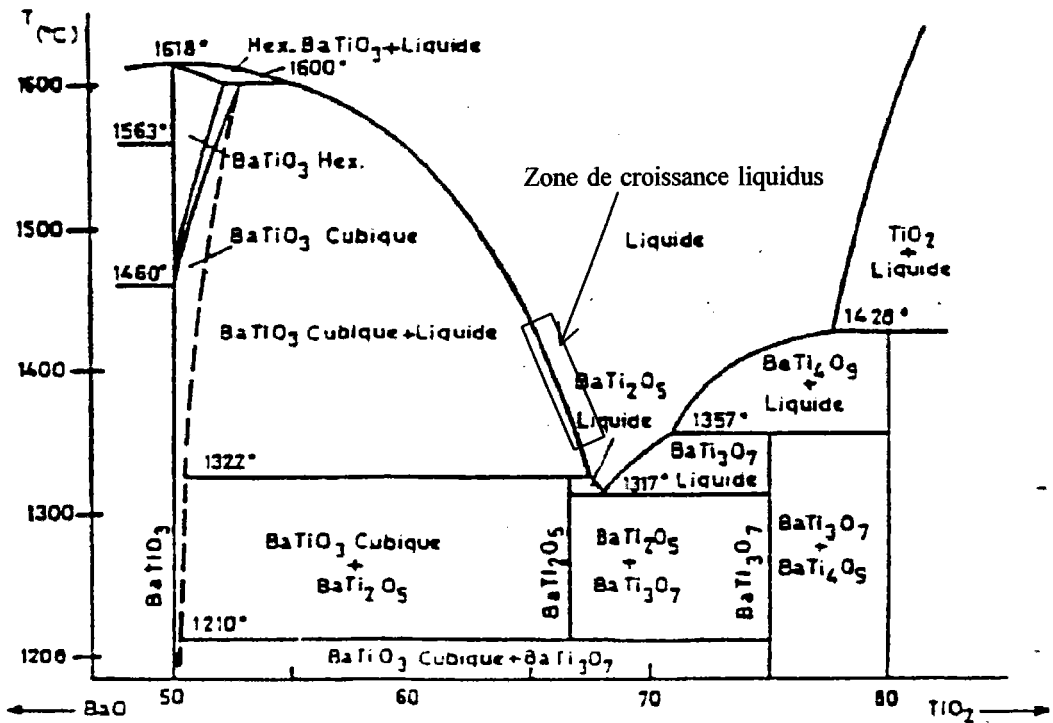


Figure 1 : Diagramme d'équilibre de phase du BaTiO₃ []

Le mélange contenu dans un creuset de platine est placé dans un four dont la température est gérée par un contrôleur programmable. Pendant la croissance, le four est refroidi à un taux ajusté de façon à suivre la courbe de liquidus du diagramme de phase (zone encadrée sur la figure 1).

Après croissance, le cristal est maintenu pendant plusieurs heures à température élevée, puis refroidi assez rapidement. Le passage de la température de transition cubique – quadratique est à réaliser lentement. En fin de refroidissement, on obtient une boule de BaTiO₃ dont la forme dépend des gradients thermiques imposés par la géométrie du four et des bouchons réfractaires qui y sont installés. A partir de cette boule, des échantillons aux formes adaptées à l'étude envisagée sont taillés.

Pour la croissance des cristaux de BaTiO₃, la technique de croissance (TSSG) est connue comme étant la meilleure car donnant des structures monocristallines de très bonne qualité pour une exploitation optique. Il est aussi plus aisé de contrôler, au moyen de cette technique, la pureté chimique et la structure en domaines ferroélectriques, que par la technique en flux Remeika.

2.2. Système de croissance BaTiO₃-CaTiO₃

Le système BaTiO₃-CaTiO₃ a été étudié d'une façon très détaillée et complète de la température ambiante jusqu'à 1900°C par plusieurs techniques [R.C.Devries 55]. Le diagramme d'équilibre de phase suivant, (figure 2) nous donne les températures de croissance de BaTiO₃ et CaTiO₃.

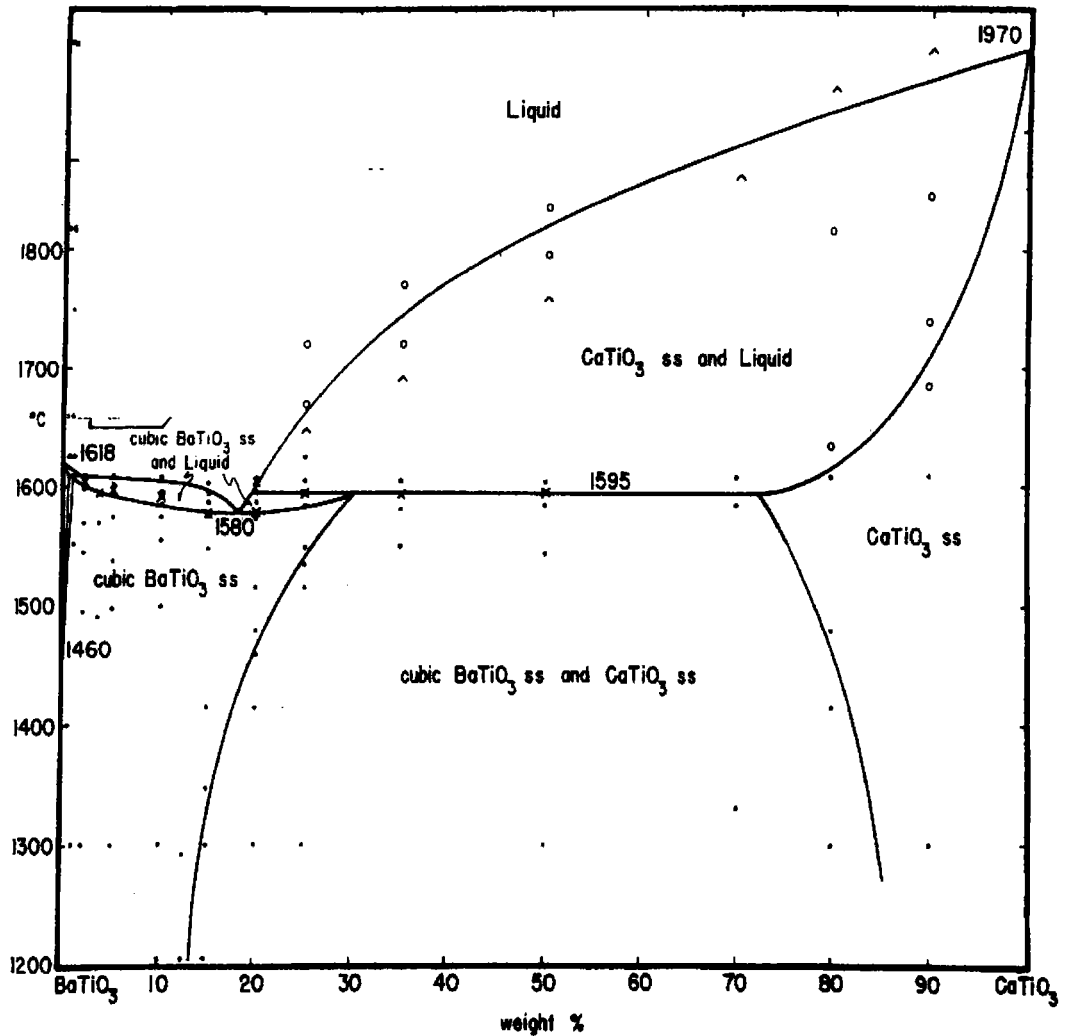


Figure 2 : Diagramme de phase de BaTiO₃ et CaTiO₃

La technique Czochralski est utilisée dans la fabrication des cristaux Ba_xCa_{1-x}TiO₃ ; ces cristaux sont obtenus en chauffant, un mélange contenant du BaCO₃ , du CaCO₃ et du TiO₂ pour obtenir une fraction molaire x = 0,23 en CaTiO₃ placé dans un creuset en platine porté à la température de

croissance de 1590°C. A 1590° on obtient des cristaux en phase cubique. La méthode de croissance des cristaux est détaillé dans le référence [Ch. Kuper 97]

Compte tenu des besoins en applications des cristaux photoréfractifs, Barbosa et ses collaborateurs [L.B. Barbosa 2001] ont fait une étude systématique pour déterminer les conditions optimales de croissance rapide des fibres du cristal BCT par la technique de LHPG (Laser-Heated Pedestal Growth).

3. Propriétés cristallographiques du BaTiO₃

Les matériaux ferroélectriques tels que le titanate de baryum présente de nombreuses phases et dans certaine de ces phases s'organisent en domaines ferroélectriques devant être dominés pour l'utilisation optique. Ce paragraphe rappelle les points importants de la structure cristalline de BaTiO₃.

3.1. Cristaux purs

Le titanate de baryum a une structure pérovskite de forme générale ABO₃ où A est un cation divalent (Ba²⁺) et B un cation tétravalent (Ti⁴⁺). Il présente différentes phases selon le domaine de température considéré. Les différentes phases et leurs caractéristiques, paramètres de maille, direction de la polarisation spontanée, température de transition [K.Laâbidi 91] et classe cristallographique sont résumés dans le tableau 1.

A une température supérieure à 134°C, le BaTiO₃ a une maille cubique simple. Les sommets du cube sont occupés par les ions baryum, les ions oxygènes se plaçant au centre des faces du cube et l'ion titane au centre (figure 2). Dans cette phase, le matériau est centrosymétrique et ne présente pas d'effet électro-optique. Lors du passage de la phase cubique à la phase quadratique, phase stable à la température ambiante, les déformations de la maille se font le long d'un axe cubique dans la phase tétragonale. Un des côtés du cube s'allonge et devient l'axe polaire du cristal. Dans la phase quadratique, dont la maille est représentée sur la figure 3, les déplacements des ions titane et oxygène créent un moment dipolaire, le barycentre des charges négatives ne coïncide plus avec celui des charges positives. La direction et le sens de cette polarisation ainsi créés dépendent du déplacement des ions. Or ces derniers se déplacent de façon «aléatoire» suivant les directions des

Chapitre 2: Préparations des cristaux de BaTiO₃

axes principaux. Ainsi, on constate que la polarisation spontanée peut être orientée suivant l'une quelconque des directions des axes cristallographiques cubiques initiaux.

Phases	Ferroélectrique Paraélectrique	Température de transition	Paramètres de la maille	Groupe d'espace
Rhomboédrique	Ferroélectrique	- 82°C	$a = b = c = 4,004 \text{ \AA}$	C_{3v}^5 R_{3m}
Orthorhombique	Ferroélectrique		$a = c = 4,011 \text{ \AA}$ $b = 3.983 \text{ \AA}$	C_{2v}^{11} C_{mm}
Quadratique	Ferroélectrique	134°C	$a = b = 3,992 \text{ \AA}$ $c = 4,036 \text{ \AA}$	C_{4v}^1 P_{4mm}
Cubique	Paraélectrique		$a = b = c = 4,01 \text{ \AA}$	O_h^1 P_{m3m}

Tableau 1 : Transitions de phase et structure cristallographique du BaTiO₃ dans les différents domaines de la température

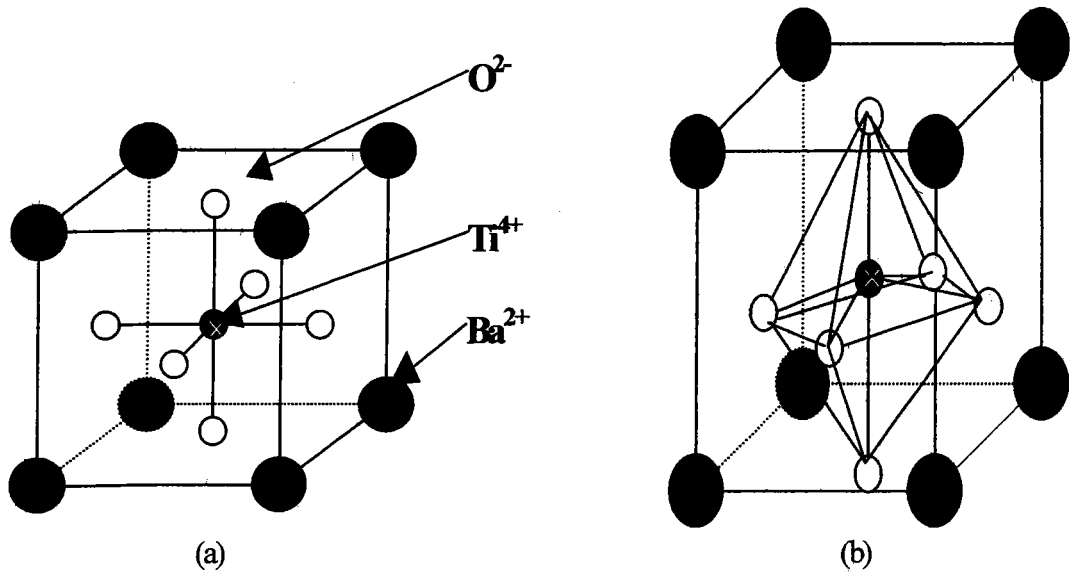


Figure 3 : Mailles cubique (a) et quadratique (b)

3.2. Les cristaux dopés

La technique de fabrication est identique à celle des cristaux purs, une partie du TiO₂ est remplacée par l'oxyde du dopant souhaité, l'ion dopant se substitue à l'ion titane. De nombreux dopants ont été utilisés, comme par exemple le fer, le cobalt et l'ion rhodium.

3.2.1. Titanate de baryum dopé rhodium (BaTiO₃ : Rh)

Le dopage au rhodium consiste à remplacer une partie de dioxyde de titane (TiO₂) par de l'oxyde de rhodium (Rh₂O₃) [M.Kaczmarek 95-2], [B. A. Wechsler 94].

Les premiers cristaux de titanate de baryum dopés rhodium, sensibles dans l'infrarouge, étaient appelés dans la littérature « cristaux bleus » [M. Kaczmarek 95-2] du fait de leur couleur caractéristique différente de celle des cristaux de titanate de baryum pur BaTiO₃ particulièrement sensibles dans le visible (de couleur plutôt jaune ou vert clair). En 1994 des études spectroscopiques ont montré que la présence de rhodium était responsable de cette couleur bleu et de la sensibilité dans l'infrarouge proche [B. A. Wechsler 94].

Chapitre 2: Préparations des cristaux de BaTiO₃

Ce cristal est utilisable entre 10 °C et 130 °C dans sa phase quadratique; les transitions de phase pouvant induire des structures en domaine sont à proscrire. Cette susceptibilité à la température le rend inexploitable pour des utilisations industrielles à températures variables.

3.2.2. Titanate de baryum dopé calcium Ba_xCa_{1-x} TiO₃ (BCT)

Le dopage au calcium permet d'étendre la plage de température de la phase quadratique [C.Kuper 97]. En effet la température de transition de phase quadratique – orthorhombique décroît vers les basses températures (-120 °C).

Comme pour BaTiO₃, ces cristaux sont obtenus en phase cubique et sont refroidis jusqu'à la température ambiante après avoir passé la transition de phase paraélectrique - ferroélectrique à 98°C.

En baissant la température jusqu'à -120 °C, aucune transition de phase supplémentaire n'est observée. Le tableau 2 résume les différentes phases de BCT connues jusqu'à présent.

Phases	Ferroélectrique Paraélectrique	Paramètres de la maille	Température de transition	Groupe d'espace
Orthorhombique	Ferroélectrique		-120°C	C ¹¹ _{2v} C _{mm}
Tetragonale	Ferroélectrique	a=b=3.962 Å c=3.999 Å	98 °C	C ¹ _{4v} P4mm
Cubique	Paraélectrique	a = b= c		O ¹ _h Pm3m

Tableau 2: Transitions de phases et structure cristallographique de BCT

3.3. Obtention d'un échantillon monodomaine

Comme déjà mentionné précédemment, dans la phase quadratique, la polarisation diélectrique peut prendre trois directions différentes. Une région du cristal dans laquelle la polarisation est uniforme est un domaine ferroélectrique. On distingue différents arrangements de ces domaines (figure 4).

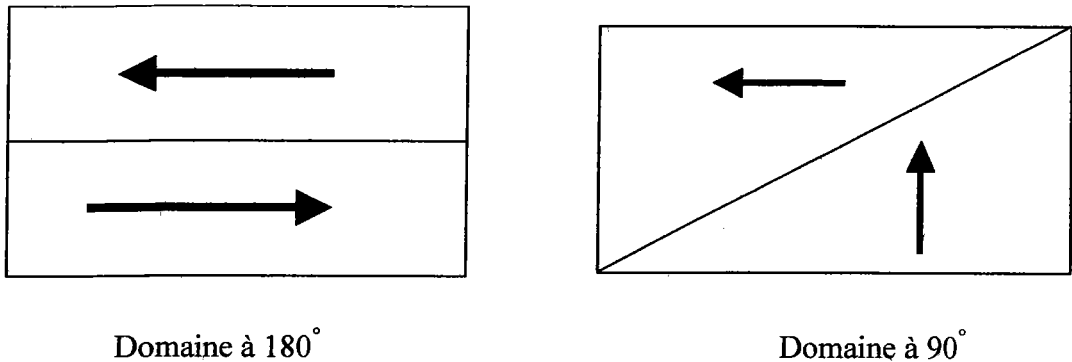


Figure 4 : Structure des domaines

Lorsque les directions des polarisations des domaines adjacents sont perpendiculaires, ce sont des domaines à 90°. Si les deux polarisations sont parallèles mais de sens opposé, on obtient des domaines à 180°. L'existence des domaines ferroélectriques pose évidemment problème car certaines grandeurs mesurées peuvent dépendre de l'orientation relative de la direction, de propagation et de polarisation de la lumière par rapport aux axes cristallographiques. De plus, les parois de domaines, en diffractant la lumière, perturbent la transmission de la lumière à travers l'échantillon.

Différentes méthodes de traitement ont été utilisées pour rendre les cristaux monodomaines [W.Ousi Benomar 86]. La méthode la plus efficace est une méthode thermo-électrique. Elle consiste à faire passer l'échantillon de la phase cubique vers la phase quadratique sous l'application d'un champ électrique statique. Le cristal est porté à une température supérieure à la température de transition (134°C pour un cristal pur). Un champ électrique continu adapté à la taille de l'échantillon (2 kV/cm) définit cette fois une direction et un sens. La polarisation est liée directement au sens du champ électrique. Le cristal est ensuite refroidi lentement jusqu'à la température ambiante.

4. Présentation des échantillons utilisés

Avant de présenter l'étude de l'influence du calcium et du rhodium sur les propriétés linéaires et non linéaires, nous présentons ici les différents échantillons utilisés dans notre étude. Les cristaux dopés à 1000 ppm du rhodium qui ont une couleur bleu-vert, sont présentés sur la figure ci-dessous .

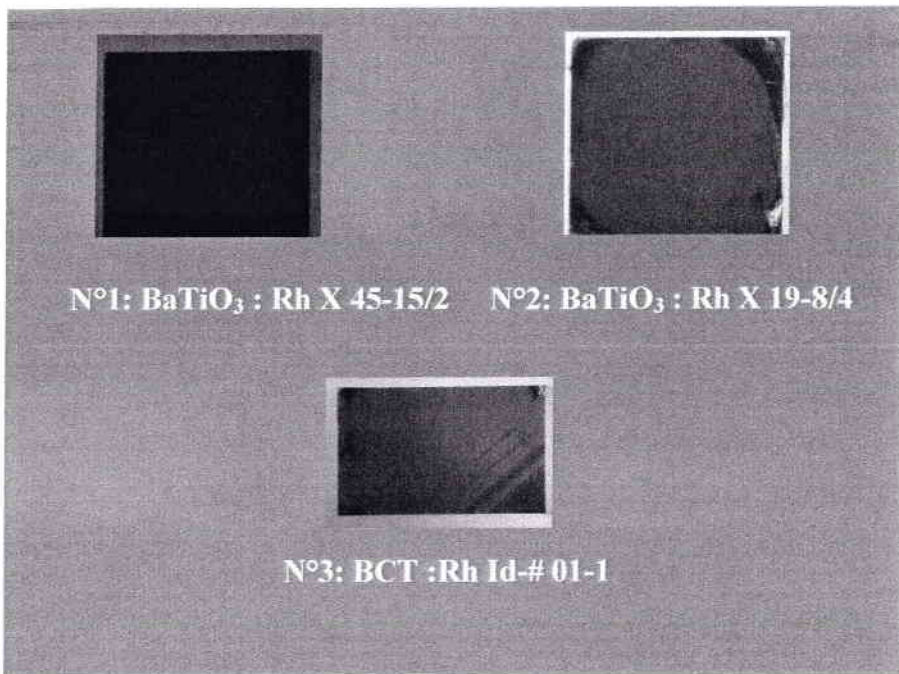


Figure 4: Les cristaux utilisés(BaTiO₃ et BCT) dopés 1000 ppm du rhodium dans le bain

Les caractéristiques géométriques des échantillons utilisés sont résumées dans le tableau 2.

Echantillons	L _x (mm)	L _y (mm)	L _z (mm)
BaTiO ₃ : Rh (N°1)	4,4	5,6	5,1
BaTiO ₃ :Rh (N°2)	4,4	6,2	4,1
BCT: Rh (N°3°)	5,5	5,35	4,1

Tableau 2 : Echantillons de BaTiO₃ et BCT dopés 1000 ppm rhodium utilisés pour ce travail

5. Conclusion

Les cristaux de BaTiO₃ et BCT sont des cristaux obtenus à haute température et doivent traverser des transitions de phase au cours de leur refroidissement. Cette opération ainsi que l'opération de polarisation indispensable pour obtenir des échantillons monodomains propices aux études optiques, sont délicates et bien maîtrisées par la société FEE. Les échantillons de taille importante monodomains et polis ont été préparés et seront soumis aux mesures optiques développées dans les chapitres suivants.

Chapitre III : Propriétés optiques linéaires dans BaTiO₃

1. Introduction

L'objectif de ce chapitre est de déterminer les propriétés optiques linéaires des cristaux dopés au rhodium BaTiO₃ : Rh et BCT : Rh. En effet, l'utilisation de ces matériaux dans différents dispositifs optiques nécessite de connaître les propriétés optiques linéaires telles que l'absorption, l'indice de réfraction, les constantes diélectriques et les coefficients électro-optiques. Par ailleurs, les matériaux étudiés ici sont également piézoélectriques.

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'étude de l'absorption. Dans le paragraphe qui suivra, nous présenterons les résultats expérimentaux de la mesure des indices de réfraction obtenus sur nos cristaux. La troisième partie sera consacrée aux constantes diélectriques et piézoélectriques en fonction de la température. Ces données seront donc utiles lors des mesures des coefficients électro-optiques. Enfin, nous analyserons les résultats et nous discuterons l'origine des variations observées.

2. Spectres d'absorption dans le visible et l'infrarouge pour les cristaux BaTiO₃

2.1. Introduction

Le but de cette partie est l'étude des phénomènes d'absorption de lumière; en premier lieu, nous présentons une étude bibliographique faite sur des cristaux BaTiO₃ pur et dopés. La seconde partie est consacrée à la description de la technique expérimentale utilisée. Les résultats des spectres d'absorption obtenus sur BaTiO₃: Rh et BCT: Rh, sont comparés avec d'autres spectres et une étude cartographique d'absorption dans le visible sur nos échantillons est présentée et discutée.

2.2. Etude bibliographique

Les coefficients d'absorption de BaTiO₃ ont fait l'objet de multiples études [C.N.Berglund 67], [M. Didomenico 67] [S.H.Wemple 70] [P. Moretti 81]. Ces travaux ont montré que le coefficient d'absorption varie exponentiellement en fonction de l'énergie des photons suivant

une loi de type «Urbach». Il est à noter que certains résultats ne vérifient pas cette loi [S.H. Wemple 70] et ces différences ont été interprétées comme étant dues aux impuretés contenues dans les échantillons.

La forme de la courbe d'absorption dépend fortement de la nature et de la concentration du dopant introduit. Par exemple le dopage au fer (figure 2.1), fait translater les bords d'absorption vers les basses énergies tout en augmentant sensiblement les coefficients d'absorption [P. Jullien 92], tandis que l'introduction du cobalt a peu d'influence sur le bord d'absorption [M. H Garret 92-2] mais modifie le profil des courbes surtout pour les grandes concentrations (figure 2.2). Ainsi, pour des cristaux dits purs, les phénomènes d'absorption peuvent apparaître différents. Pour exemple, les figures (2.1) et (2.2) correspondant aux mesures de Jullien [P. Jullien 92] et Garret [M. H Garret 92-2] apparaissent différentes. Ces variations sont probablement dues à des impuretés résiduelles existants dans les cristaux provenant des conditions de croissance différentes.

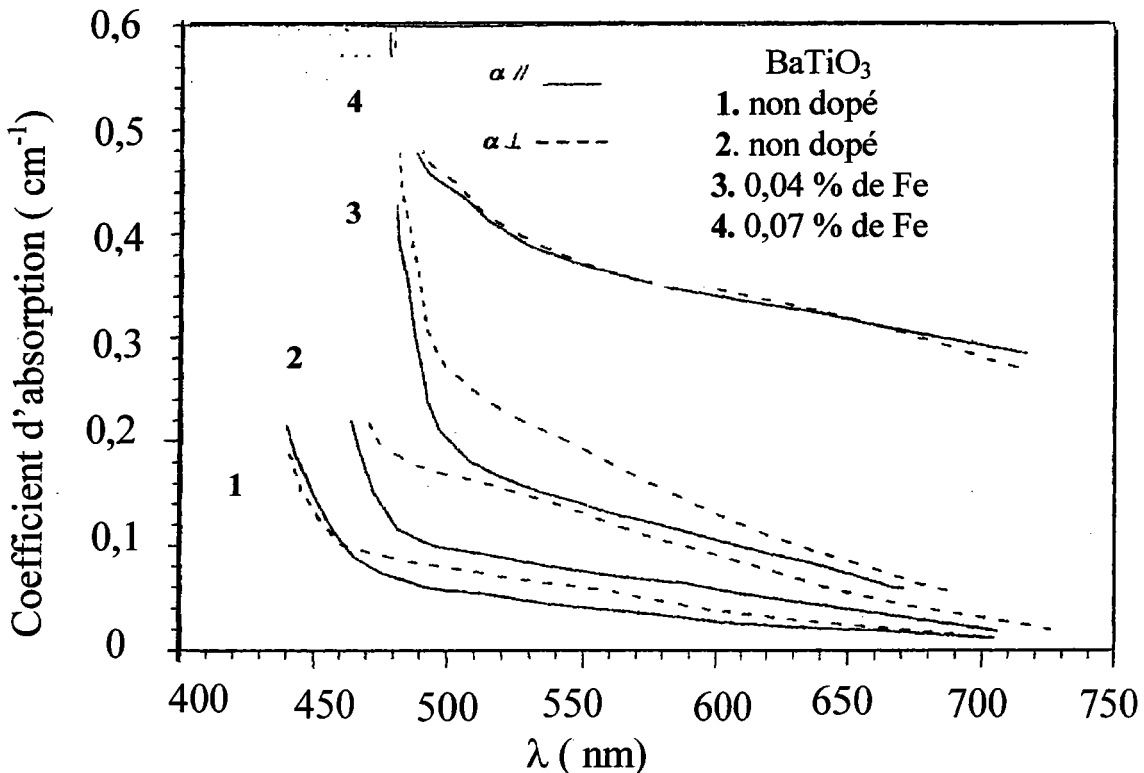


Figure 2.1 : Coefficients d'absorption pour BaTiO₃ pur et dopé fer [P.Jullien 92]

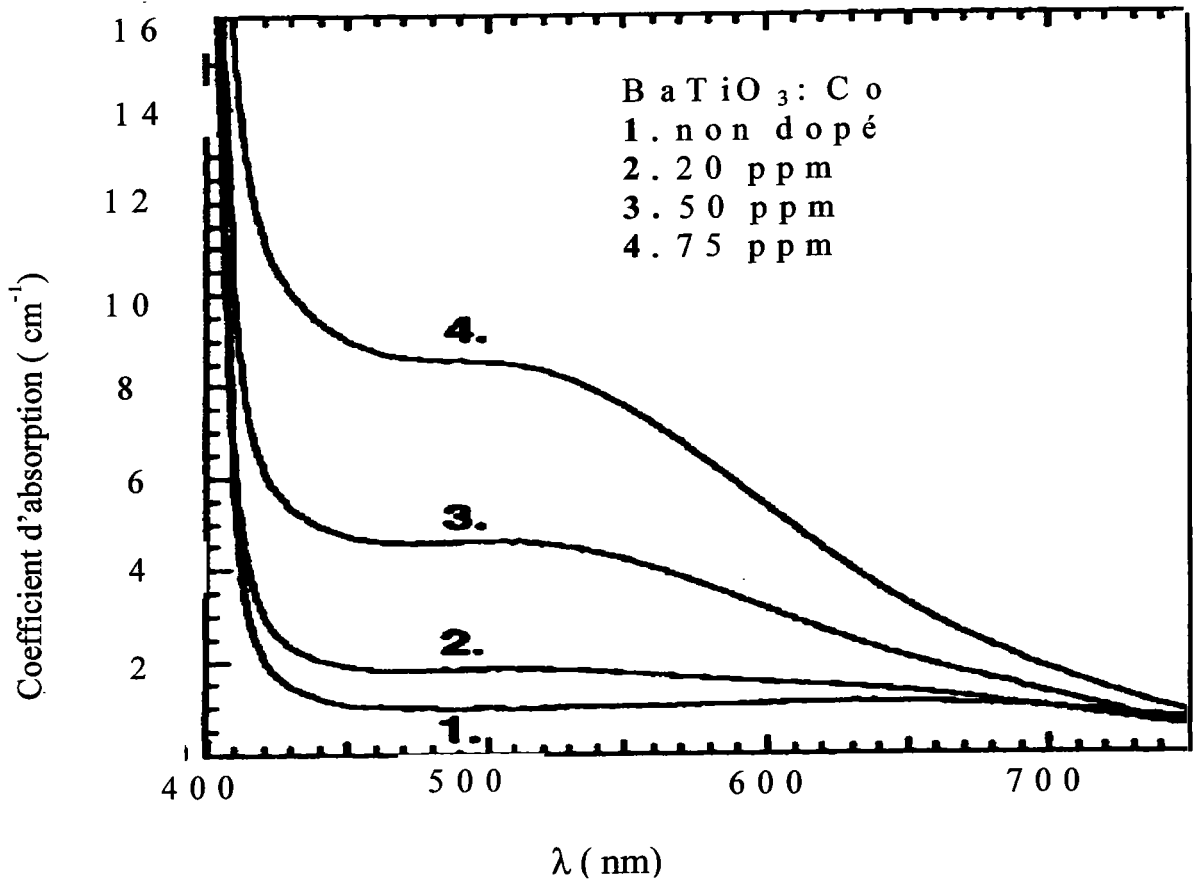


Figure 2. 2 : Coefficients d'absorption pour BaTiO₃ pur et dopé Co

[M. H. Garrett 92-2]

2.3. Technique expérimentale

Dans ce paragraphe nous décrivons la technique expérimentale mise en œuvre pour mesurer les spectres d'absorption du BaTiO₃ : Rh et BCT : Rh.

2.3.1. Dispositif expérimental

L'appareil utilisé pour mesurer le spectre d'absorption, au laboratoire de Spectrométrie de Masse et de Chimie Laser (LSMCL) de l'Université de Metz est un spectromètre UV/Vis/NIR de marque Perkin-Elmer, modèle lambda 14. Sa gamme de longueur d'onde s'étend de l'ultraviolet (190 nm) au proche infrarouge (IR) (1100 nm). Dans notre étude, nous nous

sommes limités à l'intervalle visible et proche IR, plus précisément à des longueurs d'ondes variables entre 400 et 1100 nm.

La méthode de mesure utilise deux faisceaux. La source de lumière est délivrée par une lampe, rendue monochromatique à l'aide d'un monochromateur à réseau, puis séparée en deux faisceaux de même intensité. L'un des faisceaux traverse l'échantillon et l'autre est utilisé comme référence. Le système compare les intensités des deux faisceaux.

2.3.2 Méthode de mesure des coefficients d'absorption

L'appareil utilisé mesure l'absorbance définie par l'expression :

$$A = \log \frac{I_T}{I_0} \quad (2.1)$$

où I_0 et I_T sont respectivement les intensités incidente et transmise.

Dans le cas d'une incidence normale et pour une absorption faible, la transmission des échantillons est donnée par :

$$I_T = I_0(1 - R)^2 \exp(-\alpha d) \quad (2.2)$$

α est le coefficient d'absorption de l'échantillon, d son épaisseur et R le coefficient de réflexion en intensité.

Le coefficient d'absorption de l'échantillon en fonction de l'absorbance est donné par l'expression :

$$\alpha = \frac{A \ln 10 + 2 \ln(1 - R)}{d} \quad (2.3)$$

Pour une propagation de l'onde lumineuse selon l'axe optique de l'échantillon, le coefficient de réflexion R , en fonction de la longueur d'onde de mesure, est donné par :

$$R = \left(\frac{n(\lambda) - 1}{n(\lambda) + 1} \right)^2 \quad (2.4)$$

où $n(\lambda)$ est l'indice du matériau à la longueur d'onde λ utilisée.

2.4. Résultats des mesures des coefficients d'absorption

Nous avons effectué les mesures d'absorption dans les domaines visible et infrarouge IR sur des échantillons dopés rhodium : BaTiO₃ : Rh et BCT : Rh.

Pour mettre en évidence l'anisotropie cristalline, nous avons effectué des mesures d'absorption sur des cristaux polarisés et monodomains en lumière polarisée perpendiculairement à l'axe optique (α_o) ou parallèlement à l'axe optique (α_e) des cristaux.

2.4.1. Absorption en lumière polarisée pour BaTiO₃ : Rh

Les deux spectres obtenus dans le domaine [400 nm – 1100 nm] sur les différents cristaux étudiés, présentent trois bandes d'absorption (figure 2.3). Deux premières bandes situées dans le visible, autour de 514 nm (2,41 eV) et 652 nm (1,9 eV) et la troisième est centrée dans le proche infrarouge 820 nm (1,6 eV).

Ces courbes montrent une nette anisotropie de l'absorption dans le visible [550 nm-700 nm] pour BaTiO₃ : Rh. Dans cette gamme de longueur d'onde les valeurs des coefficients d'absorption α_o sont plus élevées que celles de α_e . L'allure de ces spectres est la même pour les deux échantillons dopés Rhodium.

Cette étude est détaillée dans les paragraphes suivants et les résultats obtenus seront comparés avec ceux reproduits dans la littérature.

2.4.1.1. Spectres d'absorption

Les résultats obtenus (figure 2.3) montrent que la présence du rhodium influence fortement le profil des courbes d'absorption comparés avec les spectres d'absorption de BaTiO₃ pur [figure 2.1, P. Jullien 92]. Ces spectres mettent en évidence trois larges bandes d'absorption

une bande autour de 500 nm traduit la présence de fer (Fe^{3+/4+}), à 650 nm une bande de forte absorption est due au rhodium Rh^{3+/4+} et une bande autour de 850 nm due au rhodium Rh^{4+/5+}. On remarque que l'absorption diminue lorsqu'on passe de 650 nm (7,15 cm⁻¹) à 850 nm (1,8 cm⁻¹).

L'allure des spectres obtenus est comparable avec celles obtenues dans la littérature pour BaTiO₃ : Rh (figure 2. 4) pour une concentration importante de rhodium [B.A.Wechsler. 94].

Nous observons que les valeurs d'absorption à 650 nm croissent quand la quantité de rhodium augmente de 400 à 1600 ppm (figure 2.4). Nous constatons que l'absorption pour notre cristal "provenant d'un bain" dopé à 1000 ppm est deux fois plus élevée que celle obtenu par Wechsler pour un cristal "provenant d'un bain" dopé à 1600 ppm (figure 2.4). Ces écarts sont, vraisemblablement dus à des conditions de croissance, modifiant la quantité de rhodium ayant pénétré dans le cristal.

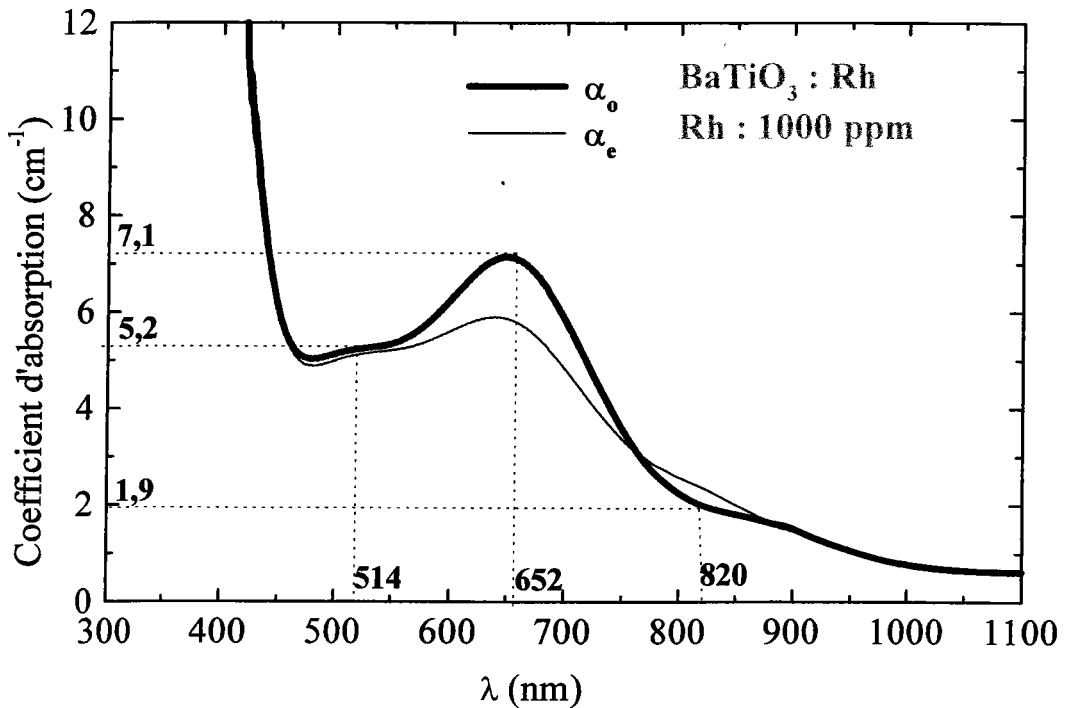


Figure 2. 3: Spectres d'absorption pour BaTiO₃: Rh (N°1)

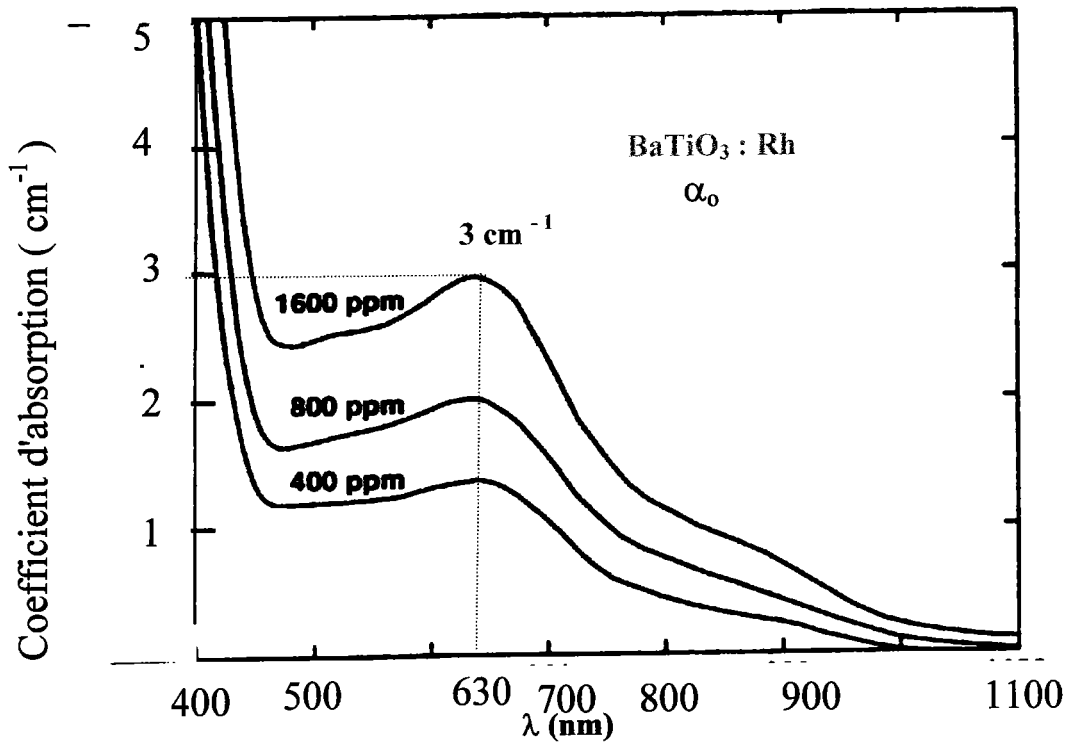


Figure 2. 4 : Spectres d'absorption pour BaTiO₃ : Rh [B.A. Wechsler. 94]

2.4.1.2. Etude cartographique des coefficients d'absorption à λ=632,8 nm

Dans cette partie, nous allons présenter une étude cartographique de l'absorption qui permet de caractériser l'homogénéité du cristal. La méthode utilisée est basée sur la mesure d'absorbance donnée par l'équation (2.3).

Pour étudier l'homogénéité du cristal nous avons mis en place un montage permettant d'étudier une cartographie d'absorption à 633 nm (figure 2.5). Ce montage est composé d'un faisceau laser de diamètre 10 mm et deux lentilles L1 et L2 (afocal) permettant de diminuer le diamètre de faisceau laser à un diamètre de 0,7 mm sur le cristal ainsi que d'une translation horizontale et verticale du cristal. La lame 1/4 polarise circulairement le faisceau incident puis un polariseur permet d'obtenir une polarisation rectiligne et de l'orienter en

polarisation ordinaire ou extraordinaire enfin, un photodétecteur permet de mesurer l'intensité transmise I_t .

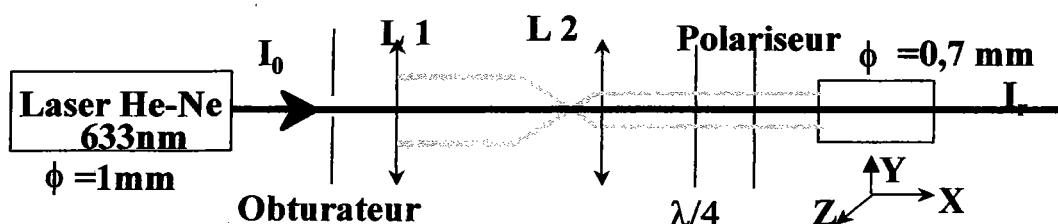


Figure 2.5: Montage de mesure des coefficients d'absorption

On utilise comme source de lumière un laser He-Ne de longueur d'onde $\lambda=632,8$ nm, polarisé soit de façon ordinaire ou extraordinaire pour déterminer respectivement le coefficient d'absorption ordinaire (α_o) et extraordinaire (α_e). Le tableau 2.1 regroupe les différentes conditions expérimentales adaptées pour réaliser ces mesures.

Coefficient d'absorption extraordinaire (α_e)	Coefficients d'absorption ordinaire (α_o)
- Propagation perpendiculaire à C	- Propagation perpendiculaire à P _s
- Polarisation parallèle à C	- Polarisation perpendiculaire à P _s
- Indice extraordinaire $n_e = 2,36$	- Indice ordinaire $n_o = 2,41$
- Longueur de propagation $L=5,6$ mm	- Longueur de propagation $L= 5,6$ mm

Tableau 2.1 : Conditions expérimentales pour accéder à α_e et α_o

Cette configuration a l'avantage d'utiliser les mêmes faces d'entrée et de sortie de l'échantillon et ainsi ne pas être sujet aux différences de qualité des surfaces polies. Le paragraphe suivant donne l'ensemble des résultats obtenus sur le cristal BaTiO₃: Rh référence (N°1).

a) Cartographie du coefficient d'absorption ordinaire (α_o)

Cette cartographie (tableau 2.2) présente la répartition du rhodium dans le cristal via le coefficient d'absorption ordinaire. Plus la zone est sombre plus le coefficient d'absorption est élevé et par conséquent l'absorption du rhodium est importante.

La valeur moyenne de ce coefficient, calculée à partir de cette cartographie, est de $6,7 \text{ cm}^{-1}$ ce qui est concordant avec la valeur extraite du spectre d'absorption ordinaire (figure 2. 3), $\alpha_o = 7 \text{ cm}^{-1}$. L'avantage de cette cartographie est l'obtention de la distribution du rhodium dans le cristal. Dans notre cas et d'après le tableau 2.2, elle est non homogène.

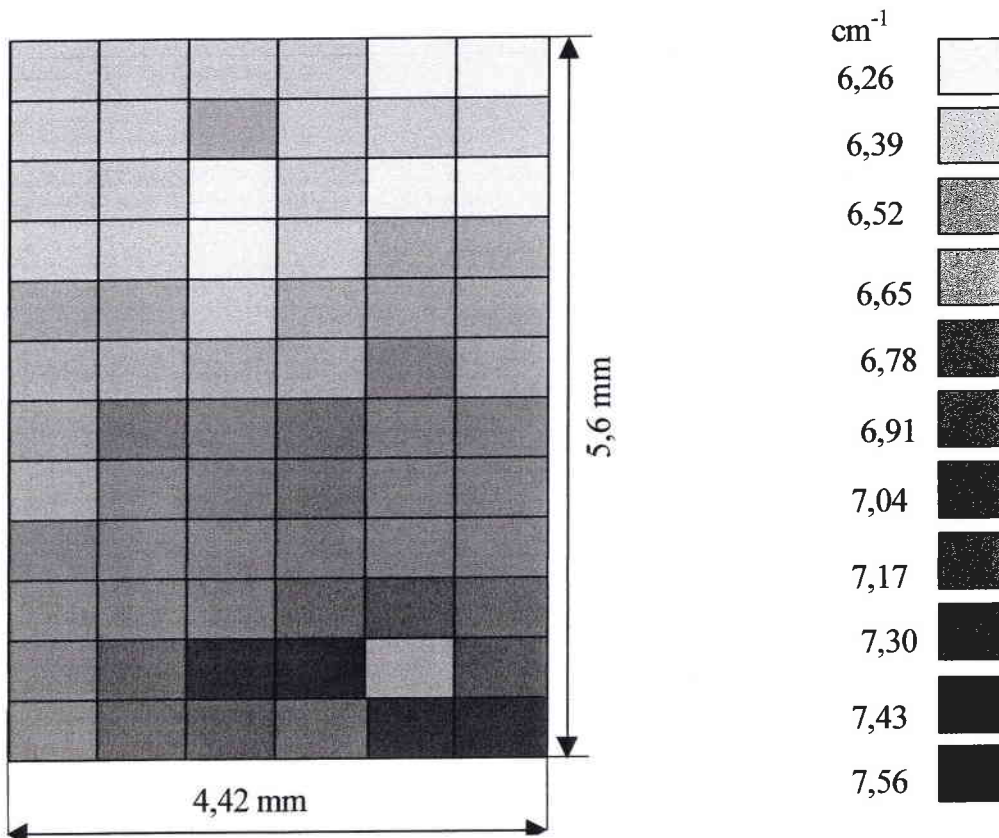


Tableau 2. 2: Cartographie du coefficient d'absorption ordinaire (α_o) pour le BaTiO₃: Rh

b) Cartographie du coefficient d'absorption extraordinaire (α_e)

La cartographie du coefficient d'absorption extraordinaire (tableau 2.3) permet de la même manière de tirer des conclusions du même type qui précédemment.

En la comparant avec celle du coefficient ordinaire, on observe la domination des zones moins sombres, voir même l'apparition de zones équivalentes à des valeurs du coefficient α_e plus faibles,. On note que α_o est plus grand que α_e . Notons aussi que la moyenne obtenue correspond bien à celle déduite de la figure (2.3)

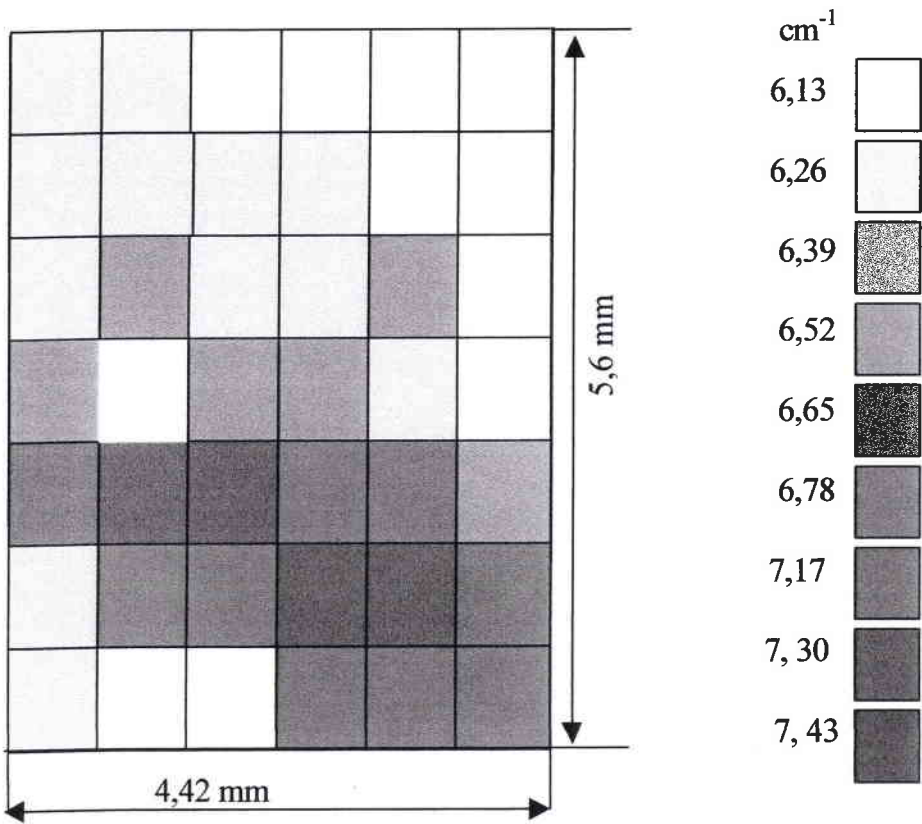


Tableau 2.3: Cartographie pour les coefficients d'absorption ordinaire (α_e) pour BaTiO₃ : Rh

c) Conclusion

Nous pouvons conclure que les deux configurations ont un coefficient d'absorption élevé à 632,8 nm. La valeur moyenne du coefficient d'absorption extraordinaire (α_e) reste toujours inférieure à celle du coefficient ordinaire (α_o). Ce résultat confirme l'anisotropie remarquée dans les spectres d'absorption. On note aussi une répartition non homogène du rhodium. Ceci peut être dû à des concentrations différentes de rhodium dans le cristal ou bien à un état de valence différents de rhodium selon la position dans le cristal.

Cette étude peut éventuellement expliquer la différence des valeurs d'absorption remarquée entre nos résultats et ceux obtenus par B.A. Wechsler. 94.

2.4.2. Spectres d'absorption pour (BCT : Rh)

La figure 2.6 présente les spectres d'absorption obtenus pour le cristal BCT: Rh dans les mêmes conditions expérimentales que pour le cristal BaTiO₃: Rh en lumière naturelle, polarisée ordinaire (α_o) ou extraordinaire (α_e).

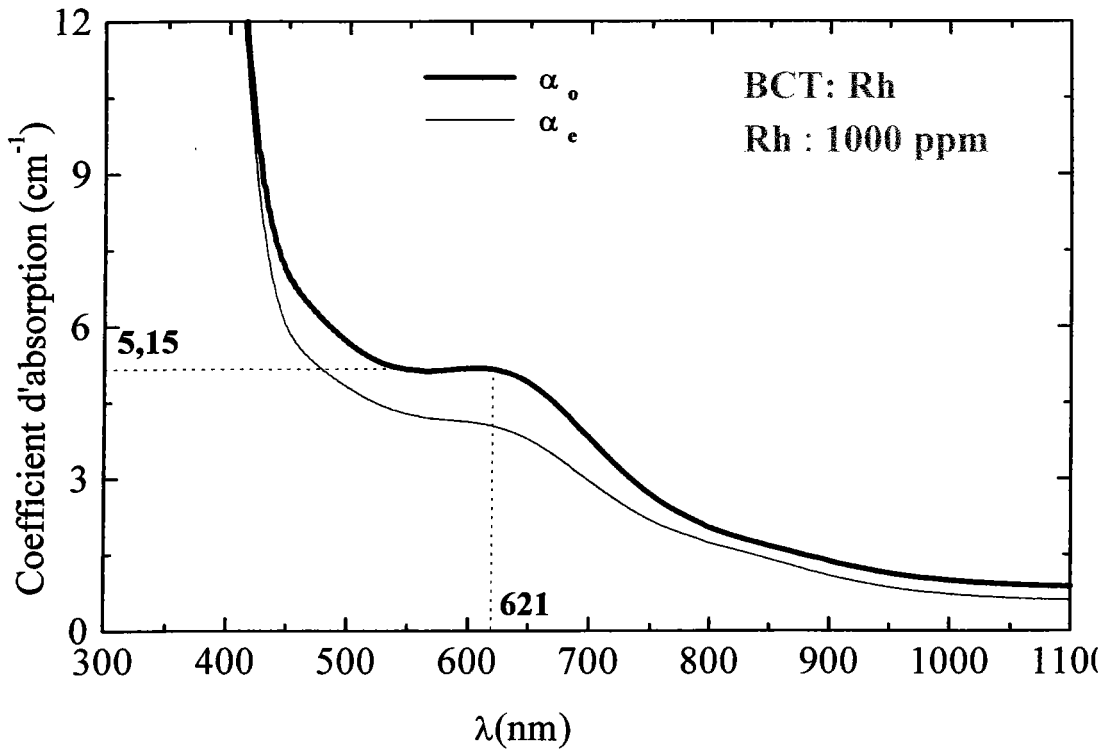


Figure 2. 6: Spectres d'absorption pour BCT: Rh

On observe une large bande d'absorption dans le visible. Ces résultats montrent que le dopage en rhodium influence fortement le profil des spectres d'absorption pour le BCT ainsi qu'une anisotropie bien marquée dans le visible pour les deux polarisations. Ces coefficients diminuent lorsqu'on passe de 620 nm (5,1 cm⁻¹) à 850 nm (1,65 cm⁻¹). Une étude de l'absorption de BCT et BCT : Rh a été faite par Veenhuis [Veenhuis 2000] pour différentes concentrations du dopant de Rh (figure 2. 7). On remarque que les courbes d'absorption des cristaux BCT et celles des cristaux à faibles concentrations en Rh sont similaires à celles du BaTiO₃ pur. Un dopage avec des concentrations plus élevées en Rh (1000 ppm) fait apparaître une bande d'absorption vers 630 nm, ce qui est en accord avec nos mesures.

Le rhodium a donc les mêmes effets sur les spectres d'absorption de BaTiO₃ et de BCT:

l'apparition d'une bande d'absorption centrée vers la longueur d'onde 630 nm; les deux autres bandes sont moins marquées pour le BCT.

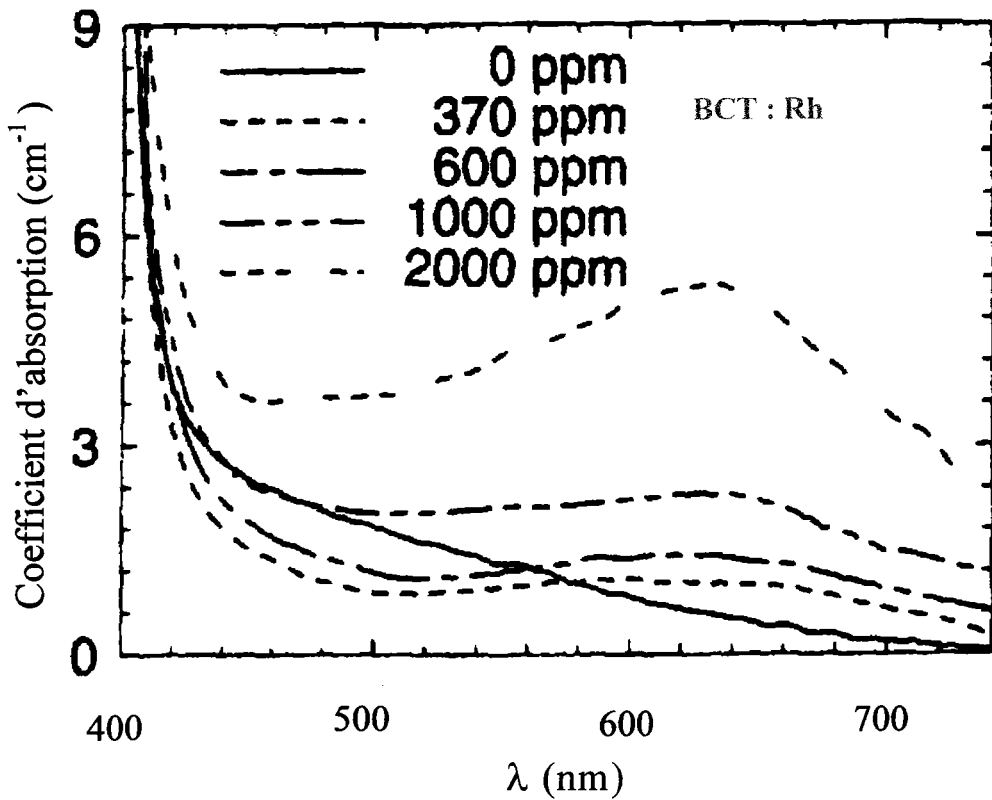


Figure 2. 6: Coefficients d'absorption ordinaire (α_0) pour BCT : Rh

2.5. Les niveaux d'impuretés pour BaTiO₃ : Rh et BCT : Rh

Nous avons observé trois bandes d'absorption, bien marquées autour de 514 nm, 652 nm et 820 nm dans le cas de BaTiO₃ : Rh ; par contre pour BCT :Rh une seule bande bien marquée à 621 nm apparaît. Pour interpréter les spectres obtenus, nous faisons appel à d'autres mesures spectroscopiques. Les plus complètes publiées sur le BaTiO₃ : Rh, ont été effectuées par l'équipe du professeur O.F. Schirmer de l'Université d'Osnabrück en Allemagne [Kröse 95]. Elles sont basées sur des mesures de résonance paramagnétique électronique [RPE] à basse température 4,5 K et à 300 K. Cette technique permet d'identifier les sites paramagnétiques à partir du spectre d'absorption d'une onde micro-onde obtenue en présence d'un champ magnétique variable. En effet, les niveaux électroniques des sites paramagnétiques vont être affectés par la présence du champ magnétique et vont être plus ou moins en résonance avec l'onde excitatrice (micro-onde), ce qui va modifier son absorption par le cristal. Ces mesures sont effectuées à une fréquence fixe de 9GHz de l'onde excitatrice.

Dans les cristaux de BaTiO₃: Rh, trois niveaux ont été identifiés: Rh^{4+/5+} qui absorbe aux environs de 1,6 eV (775 nm) , Rh^{3+/4+} qui absorbe autour de 1,9 eV (652, 6 nm), Fe^{3+/4+} qui absorbe autour 2,8 eV (442,85 nm).

Nous remarquons que pour le BaTiO₃: Rh (figure 2.3), l'absorption augmente autour de 1,6eV et 1,9 eV ; nous pouvons attribuer à une augmentation des concentrations en Rh⁵⁺ et en Rh⁴⁺. respectivement En conséquence, on peut attribuer la diminution de la bande d'absorption autour de 1,9 eV pour BCT: Rh (figure 2.5) à la diminution de la concentration en Rh⁴⁺.

2.6. Conclusion

L'influence du rhodium sur l'absorption du BCT est identique à celle du BaTiO₃ avec une large bande d'absorption autour de 600 nm ; cette bande attribuée à ce dopant à l'état de valence Rh^{3+/4+}.

L'étude cartographique de l'absorption à $\lambda=633$ nm montre que la répartition du rhodium dans l'échantillon n'est pas homogène, ou bien au fait que l'état de valence de rhodium n'est pas homogène dans le cristal.

3. Mesure des indices de réfraction ordinaires et extraordinaires

3.1. Introduction

Parmi les méthodes couramment utilisées pour déterminer les indices de réfraction des cristaux, nous trouvons:

- la méthode du minimum de déviation
- la méthode interférométrique

La première méthode est précise mais nécessite la fabrication de prismes de grande taille et, de plus, dans le cas de BaTiO₃ de prismes monodomains. Cependant, si la croissance cristalline permet d'avoir des monocristaux avec les dimensions souhaitées, le caractère monodomaine et l'orientation précise des axes optiques d'un prisme peuvent être délicats à obtenir.

La méthode interférométrique [MS. Shumate 66] permet de mesurer les indices de réfraction sur des échantillons à faces parallèles plus faciles à préparer que les prismes.

Un des problèmes majeurs dans la détermination des indices de réfraction de BaTiO₃ provient de son caractère photoréfractif. En effet, le champ de charges d'espace apparaissant sous éclairage perturbe grandement les mesures.

Ainsi pour caractériser notre cristal, nous avons été amenés à développer un montage basé sur les mesures des coefficients de réflexion en utilisant les coefficients de Fresnel, cette méthode ne nécessite pas de traverser le cristal ni de tailler un prisme monodomaine.

Les valeurs ainsi déterminées des indices de réfraction de nos échantillons seront pris en compte dans les déterminations des coefficients électro-optiques. Ce chapitre est consacré donc à la mesure des indices de réfraction des cristaux de BaTiO₃: Rh et de BCT: Rh par cette méthode.

3.2. Ellipsoïde des indices

Dans un milieu anisotrope, les indices dépendent de la direction de propagation des ondes et de leurs polarisations; les différentes valeurs d'indices peuvent se résumer sous la forme d'une surface appelée ellipsoïde des indices. Rapportée aux axes principaux, son équation s'écrit :

$$B_{ij}X_iX_j = 1 \quad (3.1)$$

où $B_{ij} = \left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij}$ est le tenseur d'imperméabilité relative, n est l'indice de réfraction du matériau et X_i et X_j représentent les coordonnées d'espace liées à la direction de propagation. En phase quadratique, le titanate de baryum est un matériau biréfringent uniaxe négatif.

3.3. Indice de réfraction de BaTiO₃ et de BCT

Des mesures de l'indice de réfraction de BaTiO₃ ont été faites par différents auteurs à température ambiante [M. S. Schumate 66], [A.R. Johnson 71] soit par l'une ou l'autre des méthodes précédemment mentionnées.

L'équation de Sellmeier décrivant la dispersion en longueur d'onde des indices à température ambiante, s'écrit:

$$n_i^2(\lambda) - 1 = A_i + \frac{B_i}{1 - \left(\frac{C_i}{\lambda}\right)^2} \quad (3.2)$$

où i caractérise l'indice soit ordinaire (o) soit extraordinaire (e), (λ : exprimée en nm).

Les valeurs des constantes A_i , B_i et C_i , peuvent être obtenues par ajustement des résultats expérimentaux donnés par Buse pour BaTiO₃ pur [K.Buse 93] et Simon pour BCT [M. Simon 97] (tableau 3.1).

n_i	BaTiO ₃ [K.Buse 93]		BCT [M. Simon. 97]	
	(i = o)	(i = e)	(i = o)	(i = e)
A_i	2,154	2,109	2,061	2,212
B_i	2,141	2,022	2,056	2,058
$C_i (10^{-14} \text{ m}^2)$	7,89	7,095	6,81	7,654

Tableau 3. 1: Coefficients de Sellmeier pour chaque indice de réfraction n_i

A partir de ces constantes, nous avons déterminé les valeurs des indices ordinaire et extraordinaire. Le tableau 3. 2 donne les valeurs de ces indices aux trois longueurs d'onde utilisées dans notre travail pour BaTiO₃ et BCT.

n_i	BaTiO ₃ pur			BCT		
	(i = o)	(i = e)	Δn	(i = o)	(i = e)	Δn
532 nm	2,47	2,40	- 0,07	2,45	2,40	- 0,05
633 nm	2,41	2,35	- 0,06	2,39	2,35	- 0,04
850 nm	2,35	2,31	- 0,04	2,34	2,30	- 0,04

Tableau 3. 2: Indices de réfraction pour BaTiO₃ et BCT

On constate que les valeurs n_o obtenues pour BaTiO₃ pur sont légèrement supérieures à celle obtenues pour BCT, les indices extraordinaires étant pratiquement égaux.

3.4. Résultats expérimentaux des indices de réfraction de BaTiO₃ : Rh

L'étude de l'effet électro-optique des cristaux BaTiO₃ dopés rhodium, nécessite la connaissance des indices ordinaire et extraordinaire. Ces indices ne sont pas disponibles dans

la littérature puisque aucune étude n'a été faite sur des cristaux dopés rhodium. Nous avons développé un dispositif de mesure afin de les déterminer expérimentalement. Le montage utilisé est un montage goniométrique permettant de mesurer pour les angles d'incidence θ les intensités réfléchies par la face avant du cristal. Pour éviter les faisceaux parasites provenant de la face arrière du cristal, nous avons placé une goutte d'huile sur cette face afin d'adapter les indices et de favoriser la transmission. Le dispositif expérimental ainsi que les expressions des équations sont décrits en annexe B. La méthode est basée sur la mesure des coefficients de réflexion (R) en fonction de l'angle d'incidence θ_i . Les configurations dépendent de la polarisation du faisceau incident, ainsi que de la position de l'axe optique du cristal par rapport au plan d'incidence. En effet, lorsque l'axe optique du cristal est perpendiculaire au plan d'incidence (figure B. 2 dans l'annexe B), deux cas se présentent :

- La polarisation du faisceau incident est perpendiculaire au plan d'incidence (polarisation TE) ; on mesure le coefficient de réflexion extraordinaire perpendiculaire $R_{\perp e}$ où $\perp e$ représentent la polarisation extraordinaire TE)
- La polarisation est parallèle au plan d'incidence (polarisation TM); le coefficient de réflexion ordinaire parallèle est mesuré ($R_{//o}$ où $//o$ indiquent la polarisation TM ordinaire) (figure B. 2 dans l'annexe B).

Dans le cas où l'axe optique est parallèle au plan d'incidence (figure B. 3 dans l'annexe B), nous mesurons les coefficients de réflexion extraordinaire parallèle ($R_{//e}$) ou ordinaire perpendiculaire ($R_{\perp o}$).

Nous avons effectué la mesure des coefficients de réflexion en fonction de l'angle d'incidence pour les différentes configurations ($R_{\perp o}$, $R_{//o}$, $R_{\perp e}$ et $R_{//e}$) à $\lambda=632,8$ nm, $\lambda=532$ nm et $\lambda=850$ nm.

3.4.1. Indice de réfraction à $\lambda=632,8$ nm

a) Indice ordinaire n_o

La figure 3.1 présente les courbes expérimentales des coefficients de réflexion $R_{\perp 0}$ ainsi que $R_{// 0}$ en fonction de l'angle d'incidence θ_i .

A partir des coefficients de réflexion, on pourra remonter à l'indice de réfraction par plusieurs moyens:

- En réalisant un ajustement des données expérimentales spécifiques sur les coefficients $R_{// 0}$ et $R_{\perp 0}$ (B. 8 et B. 9 dans l'annexe B).
- Après avoir retrouvé le minimum des coefficients de réflexion //, et en ajustant la courbe $R_{// 0}$ en fonction de l'angle d'incidence, il est possible de déterminer l'angle de Brewster i_B et par conséquent l'indice de réfraction (figure 3. 2).

Les valeurs d'indice ordinaire déterminés par ces trois méthodes sont les mêmes et égales à $n_o = 2,41$.

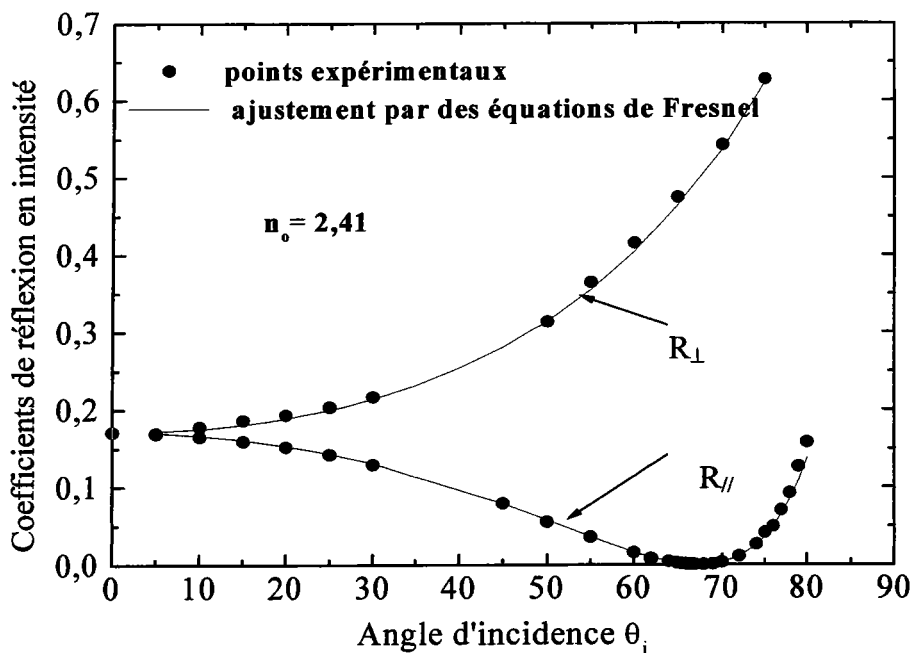


Figure 3. 1: Coefficients de réflexion $R_{\perp 0}$ et $R_{// 0}$ en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=632,8$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

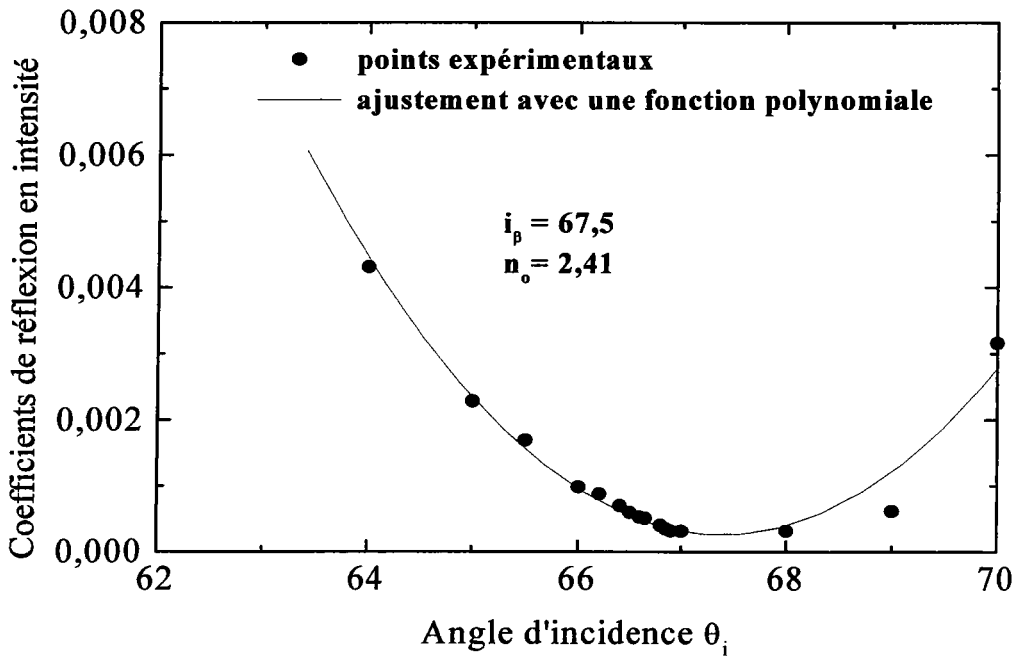


Figure 3. 2: Coefficients de réflexion $R_{//o}$ (intensité minimale) en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=632,8$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

b) Indice extraordinaire

Les mesures ont été effectuées suivant la même procédure que celle décrite auparavant. Afin de déterminer l'indice de réfraction extraordinaire nous avons effectué les mesures des coefficients de réflexion en polarisation extraordinaire $R_{\perp e}$ et $R_{//e}$ en fonction de l'angle d'incidence. La figure 3. 3 présente les résultats expérimentaux des coefficients de réflexion pour la configuration $R_{\perp e}$ à partir desquels on remonte à l'indice de réfraction n_e en ajustant l'équation de Fresnel (B. 7 dans l'annexe B). La figure 3. 4 rapporte l'étude du coefficient de réflexion en fonction de l'angle d'incidence pour la configuration $R_{//e}$. L'indice de réfraction obtenu pour la configuration $R_{//e}$ n'est pas l'indice extraordinaire n_e mais l'indice de réfraction effectif noté n_{eff} (détails : paragraphe B.2.b, Annexe B). On pourra remonter à l'indice de réfraction n_e par l' équation suivante:

$$n_e = \left[\frac{n_{\text{eff}}^2 - \sin^2(\theta_i)}{1 - \frac{\sin^2(\theta_i)}{n_o^2}} \right]^{\frac{1}{2}} \tag{2.3}$$

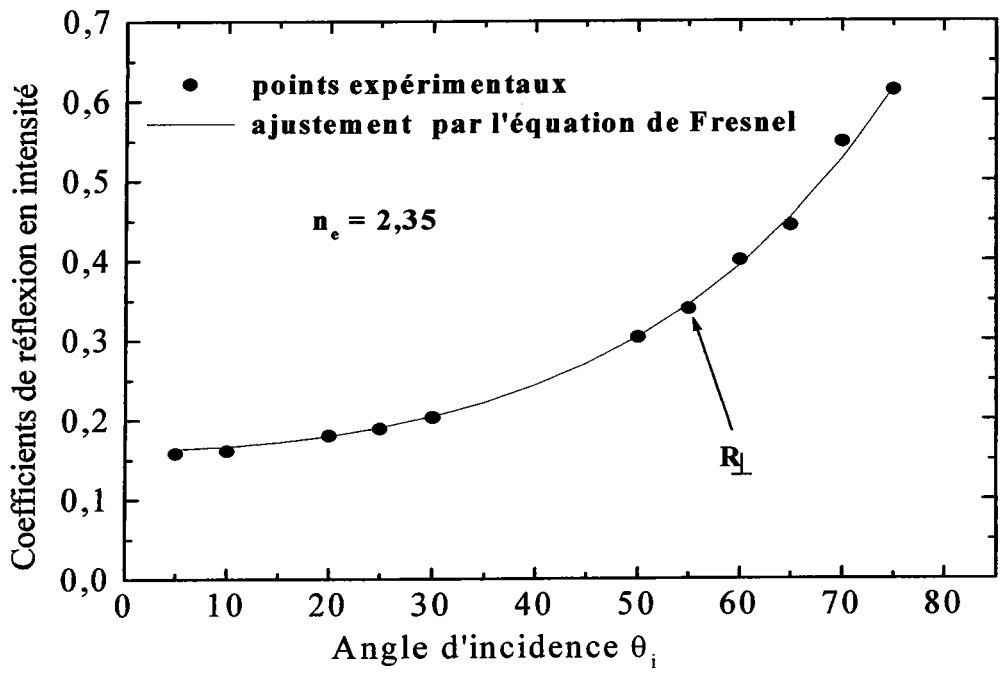


Figure 3. 3: Coefficients de réflexion en intensité $R_{\perp e}$ en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=632,8$ nm pour BaTiO₃: Rh (N°1)

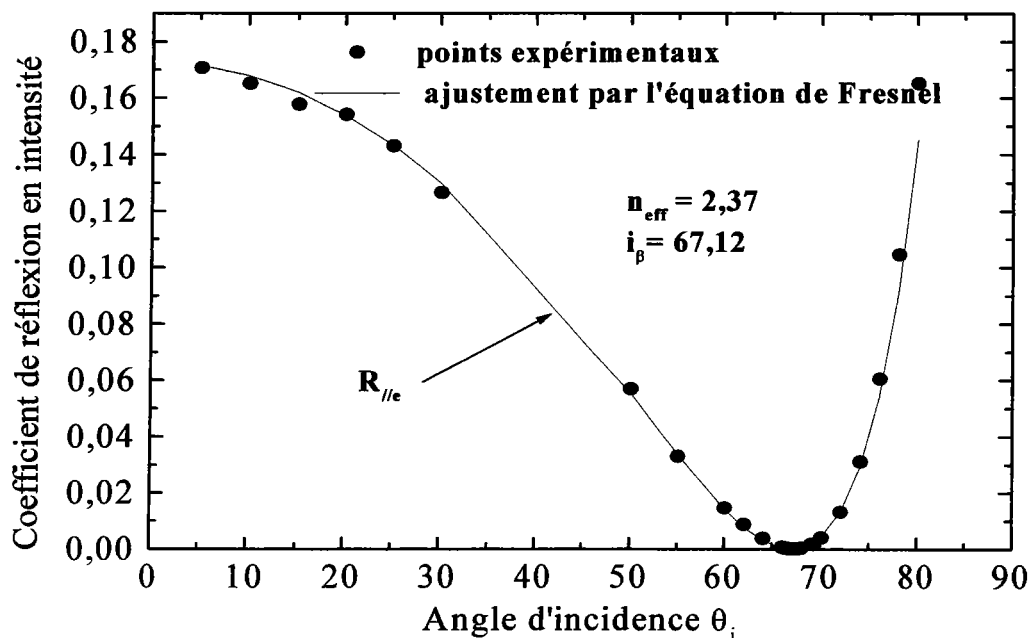


Figure 3. 4: Coefficients de réflexion $R_{//e} (n_e(\theta))$ en fonction de l'angle d'incidence à

$\lambda=632,8$ nm pour BaTiO₃: Rh (N°1)

Les valeurs expérimentales des indices de réfraction ordinaire ainsi qu'extraordinaire obtenues pour ces différentes configurations, étudiées à 632,8 nm, pour BaTiO₃ dopé rhodium (N°1) sont regroupées dans le tableau 3.3.

Configurations étudiées	Indice obtenu via l'angle de Brewster	Indice ajusté via les équation de Fresnel
$R_{\perp o}$		$n_o = 2,41$
$R_{//o}$	$n_o = 2,41$	$n_o = 2,41$
$R_{\perp e}$		$n_e = 2,35$
$R_{//e}$	$n_{eff} = 2,37 \Leftrightarrow n_e = 2,35$	$n_{eff} = 2,37 \Leftrightarrow n_e = 2,35$

Tableau 3. 3 : Indices de réfraction pour différentes configurations étudiées à 632,8 nm

Les valeurs de ces coefficients concordent parfaitement entre elles. Ces résultats permettent de valider le banc et la méthode de mesure.

3.4.2. Indices de réfraction aux longueurs d'onde: 532 nm et 850 nm

Les mesures ont été effectuées suivant la même procédure que celle décrite auparavant à 632,8 nm.

a) Indice ordinaire n_o

Les résultats de la variation des coefficients de réflexion $R_{\perp o}$ et $R_{//o}$ en fonction de l'angle d'incidence sont représentés sur les figures 3.5 et 3.6 pour les deux longueurs d'onde 532 nm et 850 nm. Les courbes en traits continus représentent des ajustements réalisés avec les équations de Fresnel, elles nous ont permis de déterminer l'indice ordinaire n_o . Les valeurs d'indice ordinaire obtenus par deux courbes sont les identiques. On remarque que l'indice ordinaire n_o diminue lorsqu'on passe de 532 nm ($n_o = 2,52$) à 850 nm ($n_o = 2,33$).

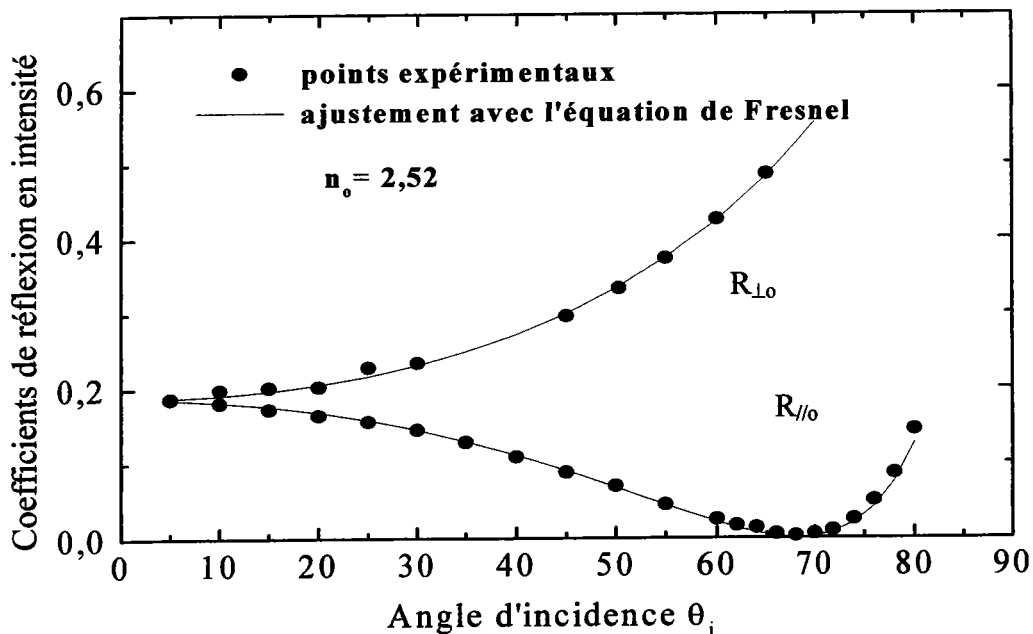


Figure 3.5: Coefficients de réflexion $R_{//o}$, $R_{\perp o}$ (n_o), en fonction de l'angle d' incidence à $\lambda=532$ nm pour BaTiO₃ : Rh (X 45-15/ 2)

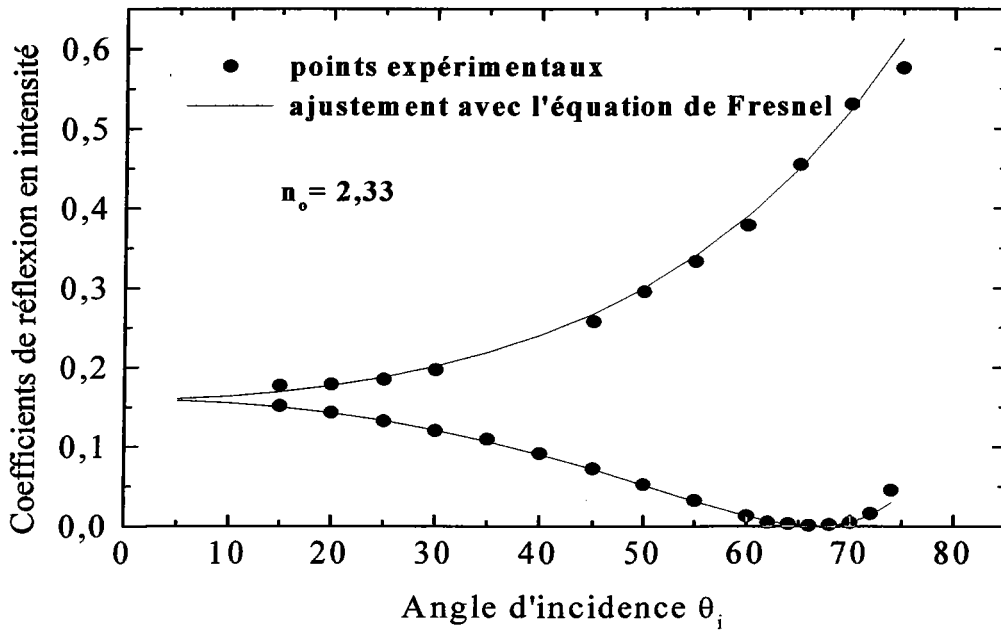


Figure 3. 6: Coefficients de réflexion ($R_{//o}$, R_{Lo} (n_o) en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=850$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

b) Indice extraordinaire n_e

Les figures 3.7 et 3.8 représentent les courbes expérimentales des coefficients de réflexion R_{Le} aux deux longueurs d'ondes 532 nm et 850 nm permettant de déterminer l'indice extraordinaire n_e . Par ajustement de ces résultats par l'équation B.9 (Annexe B), on obtient l'indice extraordinaire n_e . Ces résultats montrent une dispersion de l'indice extraordinaire n_e lorsqu'on passe de 532 nm ($n_o = 2,46$) à 850 nm ($n_o = 2,33$).

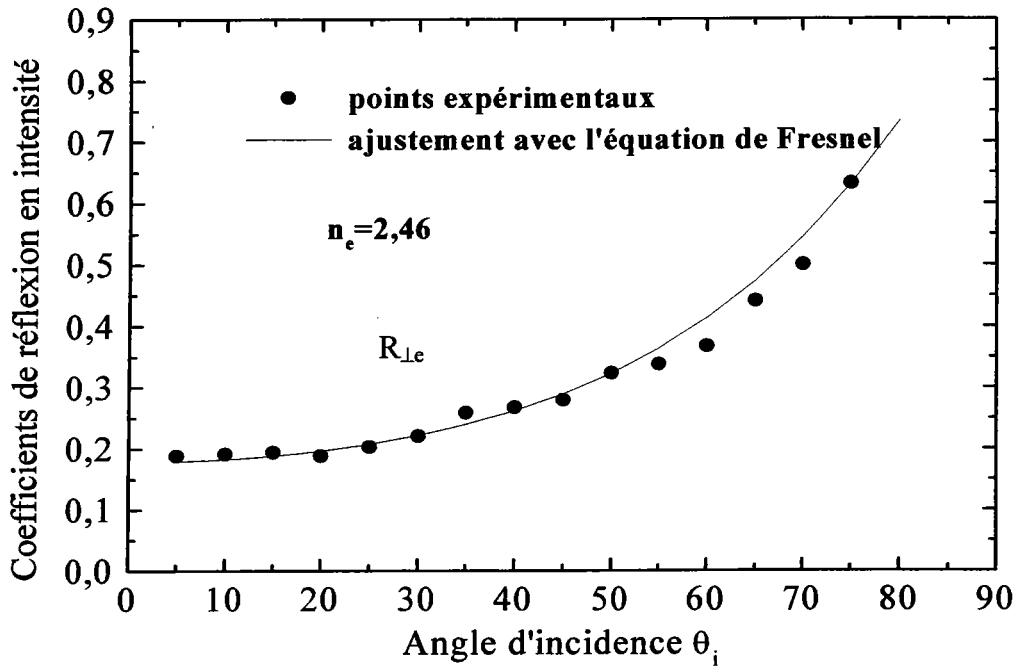


Figure 3.7: Coefficients de réflexion en intensité $R_{\perp e}$ en fonction de l'angle d' incidence à $\lambda=532$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

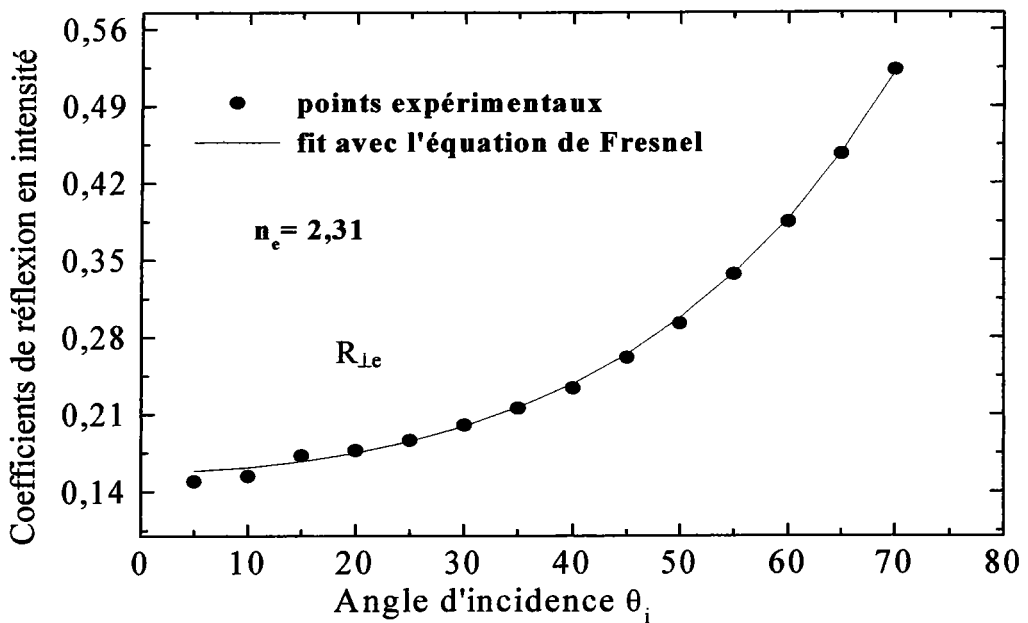


Figure 3.8 : Coefficients de réflexion $R_{\perp e}$ en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=850$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

La figure 3. 9 représente les coefficients de réflexion en polarisation extraordinaire à TM $R_{//e}$ à $\lambda=532$ nm. Rappelons que pour cette configuration l'indice obtenu par ajustement est n_{eff} . Ces résultats sont surprenants car nous nous attendions à ce que l'équation de Fresnel ajuste les résultats expérimentaux. Ce phénomène peut être dû à l'effet «beam-fanning».

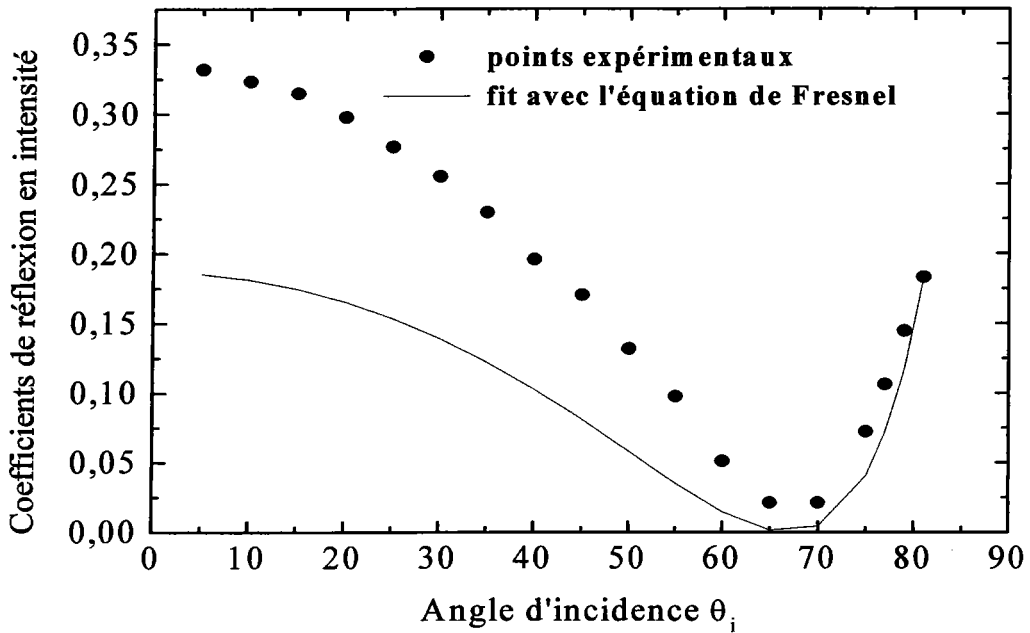


Figure 3. 9: Coefficients de réflexion $R_{//e}$ (n_{eff}) en fonction de l'angle d'incidence (n_{eff}) à $\lambda=532$ nm pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

Cette étude à été faite à $\lambda=850$ nm, la figure 3.10 représente la variation de ce coefficient de réflexion $R_{//e}$ en fonction de l'angle d'incidence. Par ajustement des points expérimentaux par l'équation de Fresnel, on obtient $n_{\text{eff}} = 2,17$. En utilisant l'équation (3.3), on obtient l'indice extraordinaire $n_e = 2,12$. Ce dernier est inférieur à l'indice extraordinaire ($n_e = 2,31$) déterminé par la configuration $R_{\perp e}$.

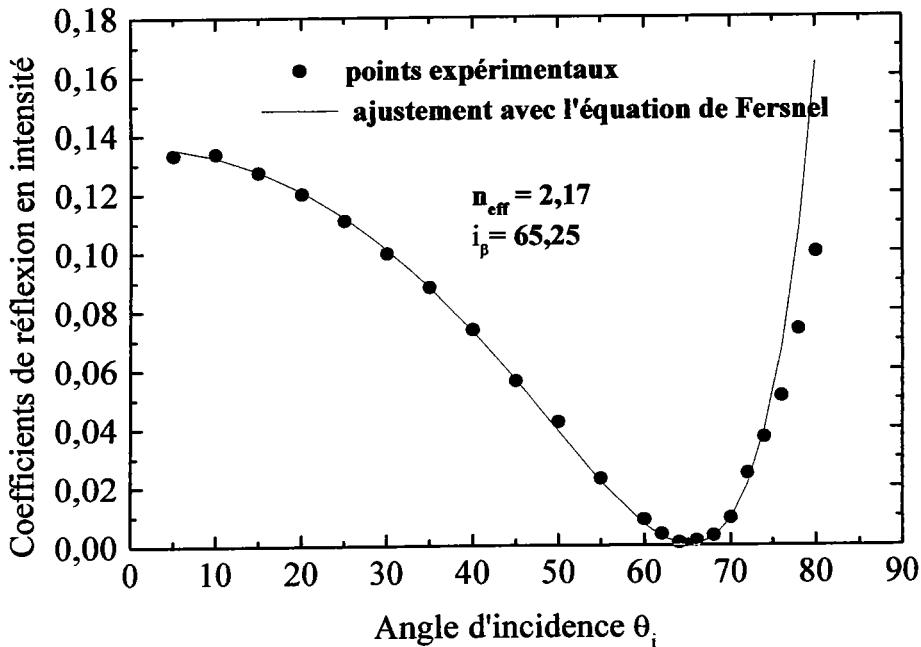


Figure 3. 10: Coefficients de réflexion $R_{//e}$ (n_{eff}) en fonction de l'angle d'incidence à $\lambda=850\text{nm}$ pour BaTiO₃ : Rh (N°1)

En polarisation extraordinaire $R_{//e}$, nous n'avons donc pas pu tenir compte de cette valeur d'indice extraordinaire n_e à $\lambda=850\text{ nm}$. Nous avons rencontré les mêmes problèmes qu'à 532 nm puisque nous avons été gênés par le beam-fanning. Nous discuterons ce phénomène par la suite (paragraphe 3.5 page 58).

3.4.3. Tableau récapitulatif

Le tableau 3.3 donne les valeurs des indices de réfraction n_o et n_e pour BaTiO₃: Rh obtenues par nos mesures et nous permet de les comparer avec celles de BaTiO₃ pur obtenus par Buse [K. Buse 93]

n_i	BaTiO ₃ : Rh (nos résultats)			BaTiO ₃ [K. Buse 93]		
	n_o	n_e	Δn	n_o	n_e	Δn
532 nm	2,52	2,46	- 0,06	2,47	2,40	- 0,07
632,8 nm	2,41	2,36	- 0,05	2,41	2,35	- 0,06
850 nm	2,33	2,31	- 0,02	2,35	2,31	- 0,04

Tableau 3. 3 : Dispersion des indices de réfraction du BaTiO₃ : Rh

On remarque que la dispersion des valeurs d'indices de réfraction dans le cas de titanate de baryum dopé en rhodium dans ces proportions (1000 ppm dans le bain) est plus forte que celle obtenus dans le cas du titanate de baryum pur.

3.5. Difficultés rencontrées

Nous avons rencontré des problèmes lors de la mesure $R_{//e}$ pour les deux longueurs d'ondes (532 nm et 850 nm). La figure 3.9 (paragraphe 3.4.2) représente les coefficients de réflexion $R_{//}$ extraordinaires . Ces résultats sont surprenants car nous nous attendions à ce que les équations de Fresnel ajustent les résultats expérimentaux.

Cependant, nous avons pu constater qu'il existait des réflexions multiples entre les faces du cristal, nous illuminons le cristal par un faisceau laser à $\lambda=532$ nm, et la figure 3.11 montre une diffusion amplifiée (figure 3. 11). Ce phénomène bien connu dans le titanate de baryum appelé " beam fanning" se comporte ici comme un parasite.

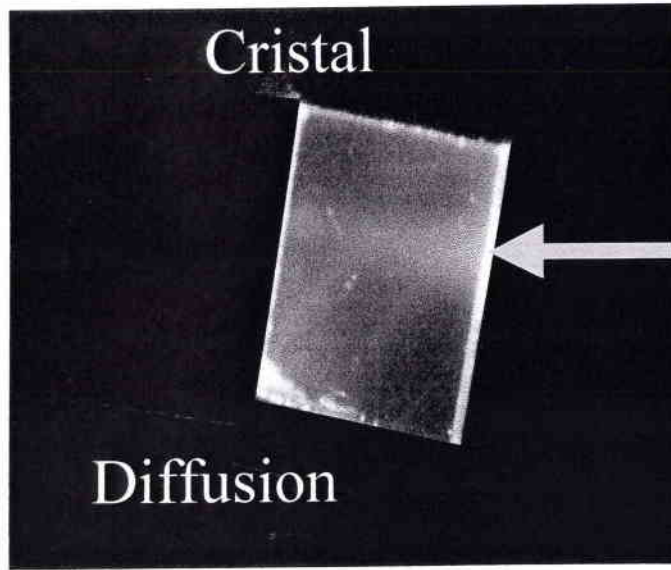


Figure 3.11: Diffusion dans le cristal: Effet « beam fanning »

Ce phénomène se manifeste dans les cristaux photoréfractifs lorsque la polarisation est extraordinaire. Pour s'assurer de notre hypothèse nous avons pris des images par transmission à l'aide d'une caméra CDD pour les deux polarisations ordinaire et extraordinaire (figure 3. 12)

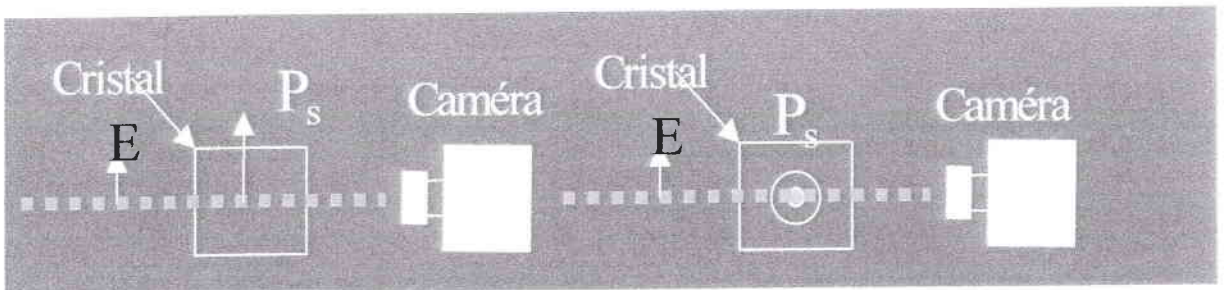


Figure 3.12: Montages expérimentaux utilisés pour les images

nous avons enregistré les images données dans la figure 3.13:

- en polarisation extraordinaire $R_{//e}$ avec la polarisation de la lumière parallèle au plan d'incidence
- en polarisation ordinaire $R_{//o}$ et la polarisation de la lumière est perpendiculaire au plan d'incidence image 3.

- Nous observons clairement la « diffusion » du faisceau (figure 3. 13). En effet, dans le cas d'une polarisation extraordinaire, à t_1 il n'y a pas de diffusion puis au bout de quelques secondes t_2 , la diffusion apparaît sur les faces du cristaux dans la direction de l'axe C (vers le bas des images 1et 2). Ce problème ne se pose pas à 632,8 nm de façon aussi rapide.

Pour expliquer l'augmentation de coefficient de réflexion. Le phénomène de diffusion amplifiée crée des faisceaux courbés dans la direction de l'axe C, qui peuvent se réfléchir dans les coins du cristal, en profitant des réflexions totales sur les faces du cristal et d'obtenir des faisceaux parasites allant dans la direction du faisceau réfléchis et ainsi contribuer à la forte valeur du coefficient de réflexion.

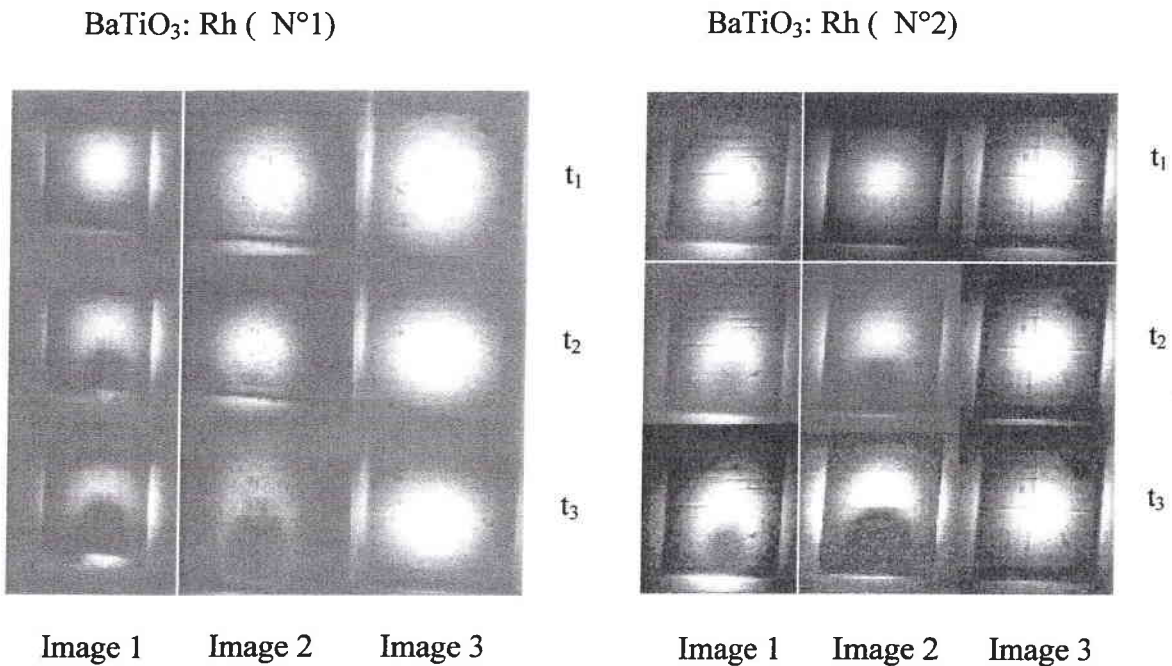


Figure 3. 13: Observation expérimentale du « beam fanning » sur les cristaux dopés rhodium

3.6. Conclusion

Le dopage en rhodium affecte l'indice de réfraction par rapport au titanate de baryum pur ainsi que la biréfringence $n_e - n_o$. Ces résultats montrent que les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire dépendent de la longueur d'onde : Ces paramètres diminuent lorsque la longueur d'onde augmente.

4. Constantes diélectriques et piézoélectriques

4.1. Introduction

Dans cette partie, nous allons rappeler les définitions générales des constantes diélectriques et des coefficients piézoélectriques, nous présenterons une étude bibliographique de ces constantes mesurées dans BaTiO₃ avec différents dopants.

Puis nous présenterons des résultats de mesures des coefficients d_{13} et ϵ_{33} obtenus sur nos cristaux de BaTiO₃:Rh, ainsi qu'une étude de l'évolution de ces paramètres en fonction de la température. Il est à noter qu'aucune de ces informations n'est, à notre connaissance, disponible dans la littérature sur ce matériau.

4.2. Constantes diélectriques

4.2.1. Généralités sur les constantes diélectriques

L'expression du vecteur induction électrique D en fonction de l'excitation E s'écrit à l'aide du tenseur de permittivité diélectrique ϵ_{ij} relatif:

$$D_i = \epsilon_0 \epsilon_{ij} E_j \quad (4.1)$$

Ce tenseur est symétrique et se diagonalise dans un système d'axes orthonormés appelés axes principaux. Pour la phase quadratique du BaTiO₃, ces axes sont confondus avec les axes cristallographiques du cristal et l'on a deux constantes diélectriques :

ϵ_{33} suivant l'axe polaire du cristal

ϵ_{11} suivant les deux autres axes du cristal

Le tenseur s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{pmatrix}$$

Tableau 4. 1: Tenseur diélectrique

4.2.2. Etude bibliographique sur les constantes diélectriques

4.2.2.1. Coefficients diélectriques du titanate de baryum pur à température ambiante

Les mesures des coefficients ϵ_{11} et ϵ_{33} ont été faites par plusieurs auteurs; les plus significatives sont celles publiées par Berlincourt, Didominico, Zgonik.[D. Berlincourt 58], [M. Didominico 68] et [M. Zgonik 94].

Le tableau suivant présente les valeurs des constantes diélectriques de BaTiO₃ à contrainte nulle T (basse fréquence) et à déformation nulle S (haute fréquence) données dans la littérature à la température ambiante:

	D. Berlincourt 58	M. Didominico 68	M. Zgonik 94
ϵ^s_{11}	1970		2180 ±100
ϵ^s_{33}	109		56± 3
ϵ^T_{11}	2920	3000	4400±400
ϵ^T_{33}	168	160	130 ± 5

Tableau 4. 2: Constantes diélectriques de BaTiO₃

Ce tableau montre que les valeurs des constantes diélectriques présentent des variations importantes, voire contradictoires. En effet, on trouve une variation de ϵ^T_{11} allant de 2920 [D. Berlincourt 58] jusqu'à 4400[M. Zgonik 94] ainsi que $\epsilon^s_{33} = 109$ [D. Berlincourt 58] et $\epsilon^s_{33} = 56$ [M. Zgonik 94]. Cette dispersion des constantes diélectriques est due au différentes méthodes de la croissance. En effet, les cristaux utilisés par D. Berlincourt et M. Didominico sont obtenus par la technique de flux dite Remeika. Ces cristaux présentent un certain nombre d'impuretés provenant du flux, de l'environnement ou des produits de départs par exemple : potassium, fluor, platine et strontium). Ces ions modifient les propriétés diélectriques mais paraissent moins affecter les propriétés optiques.

4.2.2.2. Effet du dopage en fer

Les constantes diélectriques des cristaux de BaTiO₃ purs et dopés fer ont été mesurées par Y.Abid [Y.Abid 94]. Les figures suivantes (Figure 4.1) montrent que le dopage en fer fait augmenter ces constantes de 500% pour un cristal dopé à 0,075%, et qu'elles ne dépendent pas de la fréquence du champ électrique appliqué dans la gamme entre 0,1KHz et 100KHz.

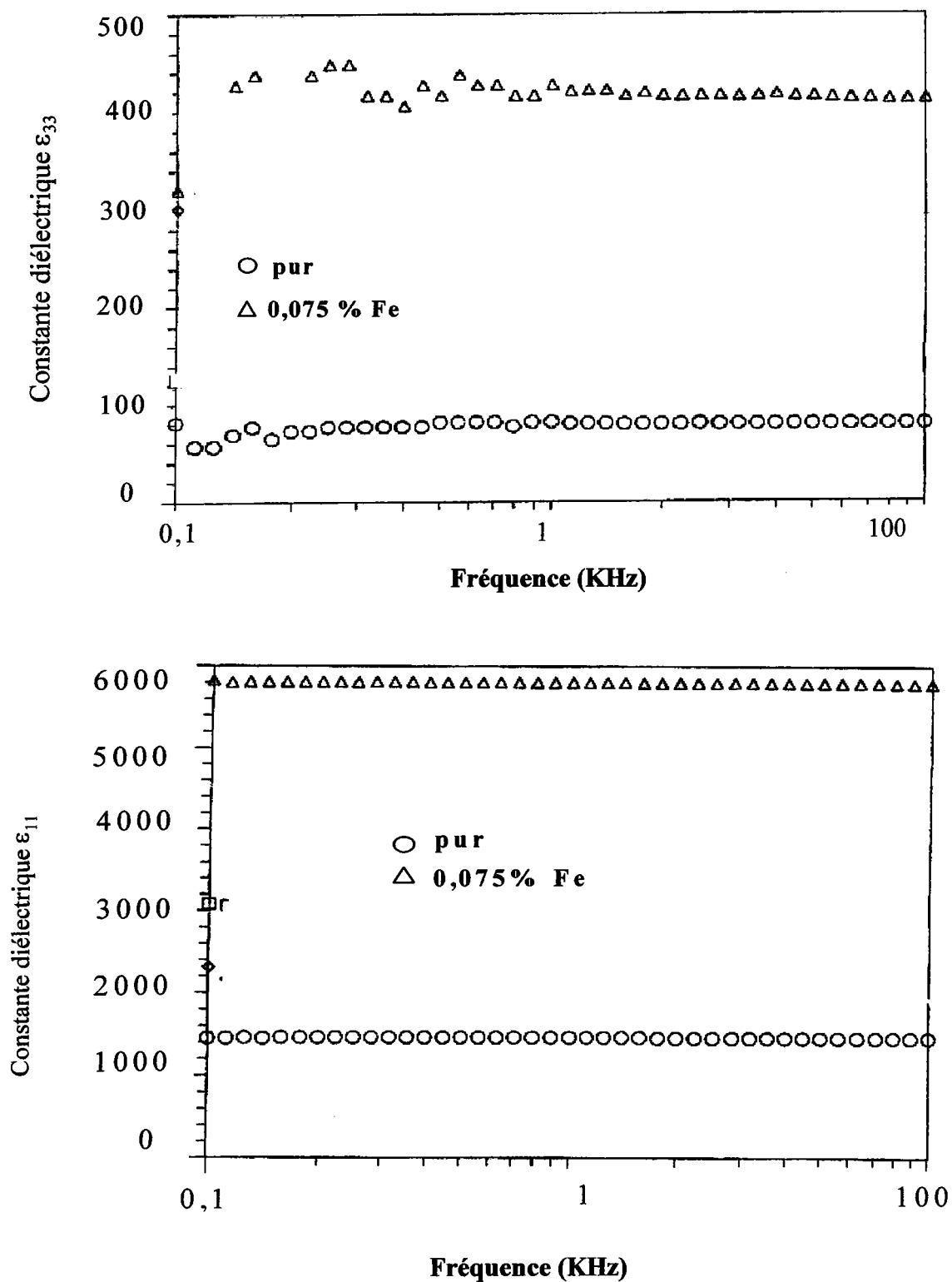


Figure 4. 1: Variation de ϵ_{11}^T et ϵ_{33}^T avec la fréquence et du dopage en fer (d'après Y. Abid [Y. Abid 94])

Remarque

Y.Abid [Y.Abid 94] ne précise pas quelles constantes diélectriques (S ou T) sont mesurées; néanmoins les conditions expérimentales et les valeurs élevés semblent indiquer que les constantes diélectriques sont mesurées à contrainte nulle (T).

4.2.2.3. Influence du dopage en calcium sur BaTiO₃ (BCT)

Le tableau 4.3 résume les valeurs des ϵ pour des cristaux purs et BCT mesurées respectivement par [M.Zgonik 94] et [C. Kuper 97].

	BaTiO ₃ [M. Zgonik. 94]	BCT [C. Kuper 97]
ϵ_{11}^T	4400 ± 400	1120
ϵ_{33}^T	130 ± 5	240

Tableau 4. 3: Constantes diélectriques du BaTiO₃ et du BCT

On remarque que la constante diélectrique ϵ_{33}^T est nettement plus élevée dans le BCT que dans le BaTiO₃ tandis que le ϵ_{11}^T est 4 fois plus fort dans le BaTiO₃ ($\epsilon_{11}^T = 4400$) que dans le BCT ($\epsilon_{11}^T = 1120$). Ceci est lié à l'éloignement de la température de transition dans le cas de BCT.

Ces études donnent un premier aperçu sur les variations des constantes diélectriques pour des cristaux BaTiO₃ purs, dopés fer et calcium. Les valeurs pour BaTiO₃: Rh n'étant pas disponible dans la littérature, nous allons les mesurer dans le paragraphe suivant.

4.2.3. Mesure de la constante diélectrique ϵ_{33}^T de BaTiO₃: Rh

4.2.3.1. Dispositif expérimental

L'étude des propriétés diélectriques des cristaux de BaTiO₃ dopés rhodium, a été faites en collaboration avec l'Institut de Physique de l'Université de Silésie à Katowice en Pologne. Un remerciement bien spécial s'adresse à K. Roleder et I. Franke.

Les mesures des constantes diélectriques sont faites au moyen d'un analyseur d'impédance Hewlett Packard 4192 A, appareil adapté aux études en basses fréquences. Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 4. 2.

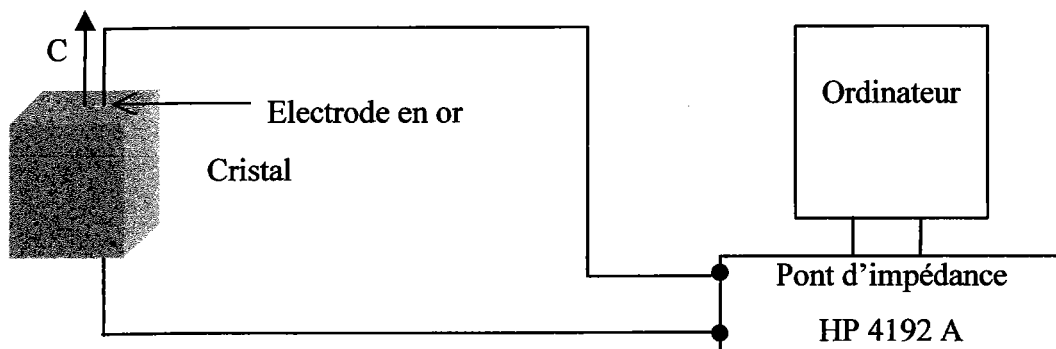


Figure 4. 2 : Dispositif expérimental de mesure de la constante diélectrique

Ce système de mesure comprend :

- une cellule de mesure utilisable dans l'intervalle de température entre 30 °C et 50 °C, à l'intérieur de laquelle se trouve un porte échantillon. Une sonde de platine est placée à proximité du cristal afin de mesurer la température.

- un analyseur d'impédance HP 4192 A fournit des signaux à fréquences variables.

4.2.3.2. Influence du dopage en rhodium

Le cristal, fourni par la société FEE présente des dimensions, le long des axes cristallographiques, de $a = 4\text{mm}$, $b = 1\text{mm}$ et $c = 0,5\text{mm}$. La tension alternative appliquée le long de l'axe Z est d'amplitude 0,2 V à la fréquence de 25 Hz. Des électrodes, obtenues par évaporation d'or, ont été déposées sur les faces Z des échantillons permettant la mesure de la constante diélectrique ϵ_{33} .

Le résultat obtenu à la température ambiante pour un cristal de BaTiO₃: Rh est donné dans le tableau 4.4.

	BaTiO ₃ : Rh
ϵ_{33}^T	135,13

Tableau 4.4 : Coefficient diélectrique ϵ_{33}^T de BaTiO₃:Rh

Ce résultat montre que la valeur de la constante diélectrique ϵ_{33}^T obtenue sur BaTiO₃ : Rh est proche de celle donnée par Zgonik [M. Zgonik 94] ($\epsilon_{33}^T = 130 \pm 5$) pour BaTiO₃ pur. Cela semble indiquer que le dopage en rhodium ne modifie de façon significative la constante diélectrique ϵ_{33}^T .

4.2.3.3. Etude en fonction de la température

L'étude a été faite sur une plage de température comprise entre 20 °C et 50 °C à basse fréquence (25Hz), sur le même cristal, et afin de pouvoir comparer les résultats avec ceux des coefficients électro-optiques et piézoélectriques.

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 4. 3.

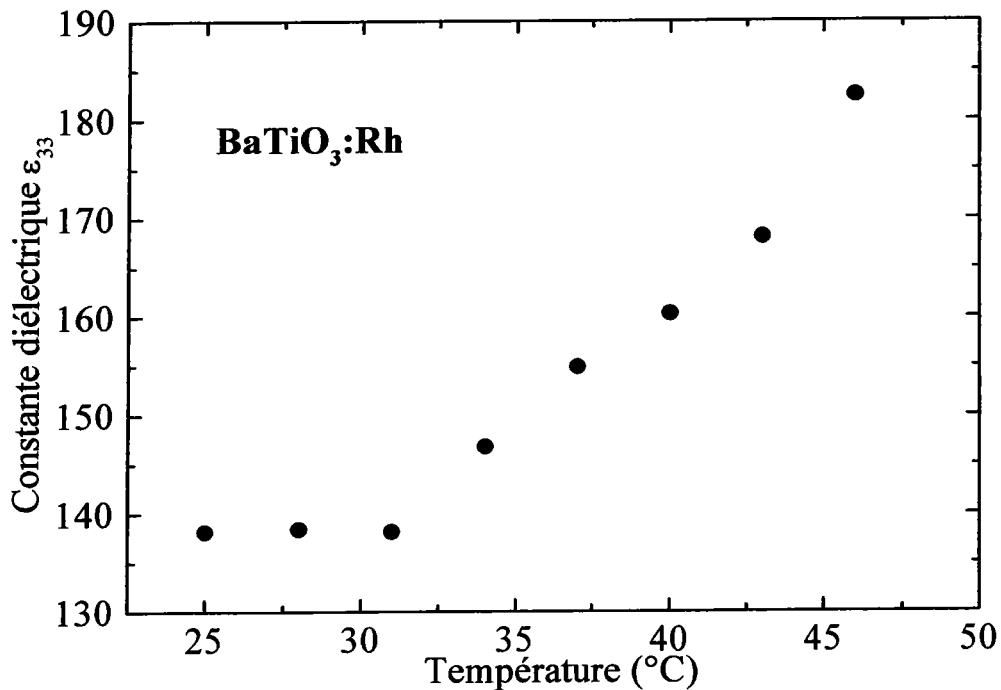


Figure 4. 3: Variation de ϵ_{33} avec la température pour BaTiO₃ : Rh

La figure 4.3 montre que la constante diélectrique ϵ_{33} croît rapidement en fonction de la température à partir de 31 °C. Ce comportement est comparable avec celui des cristaux purs [P.Bernasconi 95] et de cristaux purs et dopés fer [Y. Abid 94]. On en conclut que le rhodium modifie peu le comportement de la constante diélectrique du BaTiO₃.

4.3. Effet piézoélectrique dans BaTiO₃

4.3.1. Tenseur piézoélectrique

Les dimensions d'un cristal piézoélectrique (PE) sont légèrement modifiées par l'application d'un champ électrique : c'est l'effet piézoélectrique inverse. La relation linéaire qui existe entre les composantes du champ électrique dans le cristal et les composantes du tenseur des déformations ΔL_{ij} est donnée par :

$$\Delta L_{ij} = \sum_k^3 d_{ijk} L_{ij} E_k \quad (4.2)$$

L_{ij} : la longueur.

d_{ijk} : le tenseur piézoélectrique.

Les déformations ϵ du cristal sont obtenus à partir de l'équation 4.2 par:

$$\epsilon_{ij} = \frac{\Delta L_{ij}}{L_{ij}} = d_{ijk} E_k \quad (4.3)$$

Le tenseur piézoélectrique d_{ijk} pour la phase quadratique du BaTiO₃ prend, en notation contractée de Voigt, la forme suivante:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} = d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Tableau 4.5: Tenseur piézoélectrique

Seuls les coefficients d_{31} , d_{33} et d_{24} sont non nuls.

Un champ électrique appliqué suivant l'axe OZ, ce qui correspondant à certaines de nos configurations expérimentales, engendre une déformation dans la direction de Z. Un champ électrique appliqué suivant X ou Y va engendrer des déformations de type cisaillement.

4.3.2. Coefficients piézoélectriques à température ambiante de BaTiO₃ pur et dopé

Le coefficient piézoélectrique inverse d_{ijk} a été déterminé par plusieurs auteurs [D. Berlincourt 58], [M.Zgonik 94], [Y.Abid 94] pour BaTiO₃ et [S. Bernhardt 2000] pour BCT. Le tableau 4.6 résume les différents résultats.

		BaTiO ₃		BCT
		M. Zgonik 1994	D. Berlincourt 1958	S. Bernhardt 2000
Constante piézo- électrique (pm.v ⁻¹)	$d_{311} = d_{31}$	- 32.5 ± 2	- 34,5	- 43
	$d_{333} = d_{33}$	90 ± 5	85,6	97
	$d_{113} = d_{15}$ $= d_{24}$	282 ± 20	392	151

Tableau 3. 6: Constantes piézo-électriques du BaTiO₃ et BCT dans la phase tétragonale

En comparant les valeurs du BaTiO₃ pur à celles du BCT, il apparaît que d_{31} et d_{33} sont plus faibles dans BaTiO₃ alors que d_{42} est notablement plus grand.

Dans la mesure, où seul le coefficient d_{31} intervient dans les expériences de détermination des coefficients électro-optiques, on se bornera à l'étude de ce coefficient pour des cristaux dopés rhodium à température ambiante et en fonction de la température.

4.3.3. Mesure du coefficient piézoélectrique d_{31} du BaTiO₃ :Rh

Comme pour les mesures diélectriques, le coefficient piézoélectrique de BaTiO₃ :Rh ont été effectuées en collaboration avec l'équipe K. Roleder et I. Franke de l'Université de Silésie à Katowice en Pologne.

4.3.3.1. Résultats expérimentaux pour BaTiO₃ : Rh

Le cristal utilisé est le même que celui que nous avons utilisé pour la mesure de la constante diélectrique. Le champ électrique alternatif appliqué le long de l'axe Z (axe polaire) est d'amplitude 0,2 V, de fréquence égale à 25 Hz; les électrodes obtenues par évaporation d'or, ont été déposées sur la face Z de l'échantillon.

Le tableau suivant résume nos résultats sur BaTiO₃: Rh

	BaTiO ₃ : Rh
d_{31} (pm/V)	- 30,5 ± 1;52

Tableau 4. 7 : Coefficients piézo-électriques dopé rhodium

Nous constatons que le dopage en rhodium ne modifie pas le coefficient piézoélectrique d_{31} . Cette valeur d_{31} sera utilisée lors des mesures des coefficients électro-optiques r_{13} et r_{33} , dans le chapitre suivant.

4.3.3.2. Etude en fonction de la température

Comme précédemment, la température varie entre 25°C et 50°C. Les résultats obtenus en fonction de la température sont représentés sur la figure (4. 4).

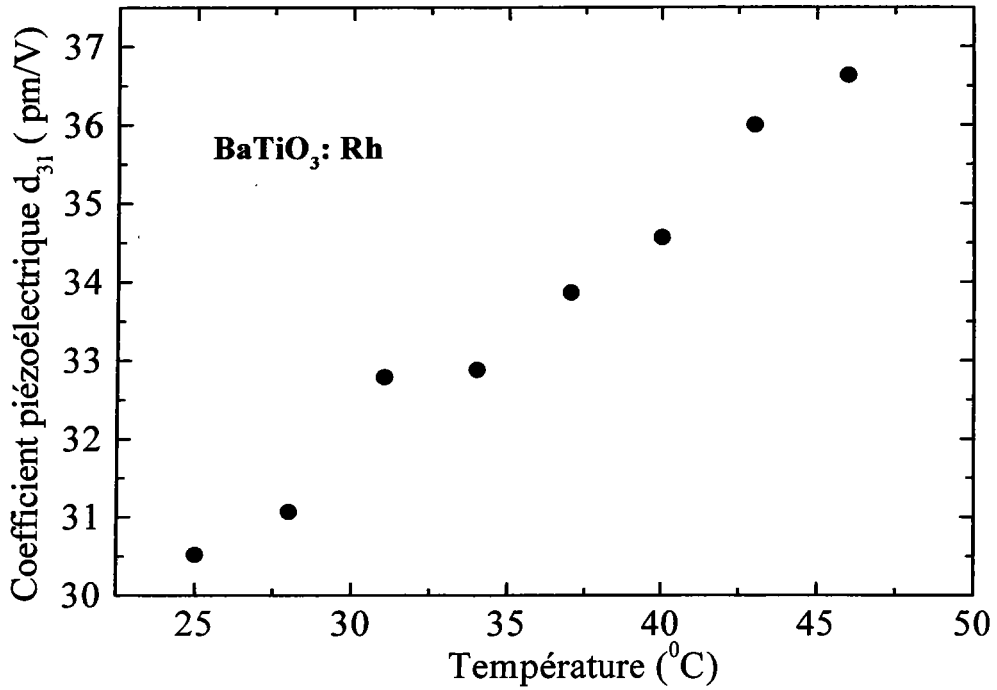


Figure 4. 4: Influence de la température sur le coefficient piézoélectrique de BaTiO₃ : Rh

La courbe ci dessus montre que le coefficient d_{31} croît linéairement quand la température augmente de 25 °C à 50 °C. Ces résultats sont comparables à ceux obtenus pour BaTiO₃ pur. Rappelons que pour BaTiO₃ pur, ce coefficient augmente fortement lorsqu'on s'approche de la transition cubique – quadratique (figure 4. 5) [Y.Abid 94].

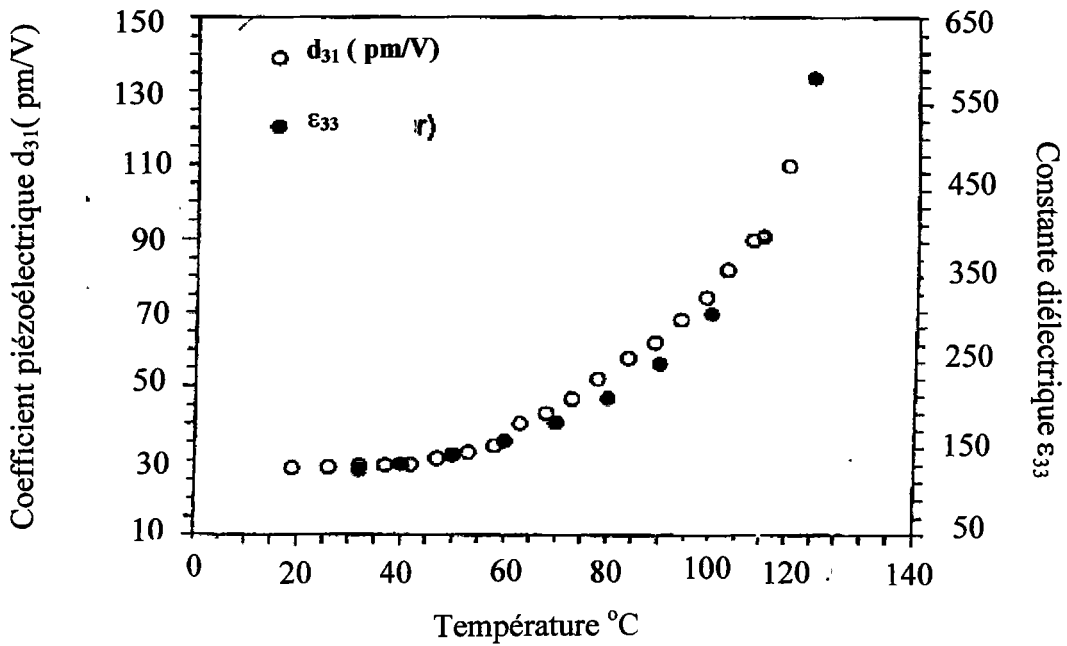


Figure 4. 5 : ϵ_{33} et d_{31} de BaTiO₃ pur, en fonction de la température [Y.Abid 94]

Nous concluons que le dopage rhodium ne modifie ni la constante diélectrique ϵ_{33} , ni le coefficient piézoélectrique d_{31} . Ces coefficients sont sensibles à la température et croissent rapidement à l'approche de la température de transition de phase. Une comparaison de l'évolution en fonction de la température des coefficients d_{31} et ϵ_{33} d'un même échantillon montre que ces coefficients ont le même comportement.

5. Conclusion

Les résultats présentés dans ce chapitre apportent des connaissances supplémentaires sur les nouveaux cristaux BaTiO₃:Rh et BCT:Rh, et mettent en évidence des différences importantes des propriétés linéaires entre le titanate de baryum et son dérivé dopé rhodium.

Nos résultats concernant l'absorption montrent que le rhodium change le profil des spectres d'absorption pour les deux cristaux BaTiO₃ et BCT. Une étude des propriétés optiques linéaires en particulier une cartographie de l'absorption à 633 nm, montre que la répartition du rhodium dans les échantillons n'est pas homogène. Nous avons aussi montré que le rhodium affecte les indices de réfraction. Cette étude faite en fonction de la longueur d'onde, montre la dispersion de ces indices.

Nous avons vu dans la troisième partie que les constantes diélectrique ϵ_{33} et piézoélectrique d_{31} sont peu sensibles au dopage et qu'elles évoluent classiquement avec la température

Ces résultats originaux obtenus, pour la première fois, sur les cristaux BaTiO₃:Rh et BCT:Rh, nous seront utiles pour l'étude des coefficients électro-optiques, détaillée dans le chapitre suivant.

**Chapitre IV : Effet électro-optique des
cristaux photoréfractifs dopés Rh
(BaTiO₃ : Rh et BCT: Rh)**

1. Introduction

L'étude des coefficients électro-optiques est nécessaire pour la compréhension des propriétés photoréfractives. Peu de travaux sur les effets électro-optiques sont disponibles sur les nouveaux cristaux photoréfractifs à base de BaTiO_3 dopé rhodium et BCT dopé calcium.

A l'opposé beaucoup de mesures ont été réalisées sur des cristaux BaTiO_3 et BaTiO_3 dopé fer. On note, à ce sujet, une grande dispersion des résultats en fonction des conditions expérimentales et des échantillons. Récemment, les études des coefficients électro-optiques ont été réalisées sur les cristaux BCT non dopés [C. Kuper 98], [V. Matusevich 2000].

La première partie de ce chapitre est consacrée aux définitions des effets électro-optiques dans le titanate de baryum. Nous expliquons le principe de mesure des différents coefficients et présentons une étude bibliographique. Dans la seconde partie, nous présentons les différents montages expérimentaux utilisés pendant cette étude. Dans la dernière partie, nous donnons les coefficients EO obtenus pour les cristaux dopés rhodium ($\text{BaTiO}_3\text{:Rh}$, BCT: Rh) et leurs variations avec la longueur d'onde laser et la température.

2. Effet électro-optique dans BaTiO_3

2.1. Introduction

Dans cette partie, nous rappelons brièvement, la définition des tenseurs électro-optiques du BaTiO_3 puis, nous expliquons l'effet d'un champ électrique appliqué sur ce matériau et donnons les résultats bibliographiques obtenus sur les cristaux purs et dopés fer et calcium.

2.2. Définition des coefficients électro-optiques

On désigne sous le nom d'effet électro-optique, une variation d'indice de réfraction produite par un champ électrique appliqué sur le cristal, ce qui a pour conséquence une modification de l'ellipsoïde des indices. Les variations linéaires de celle-ci avec le champ appliqué sont décrites par l'effet électro-optique linéaire (EO) dit Pockels qui se traduit par l'équation:

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} = \Delta B_{ij} = \sum_k^3 r_{ij,k} E_k \quad (2.1)$$

Avec :

n : l'indice de réfraction

B_{ij} : l'élément du tenseur d'imperméabilité optique

E_k : la composante du champ électrique appliqué

Les coefficients r_{ijk} sont appelés coefficients électro-optiques linéaires. r_{ijk} est un tenseur d'ordre 3.

A température ambiante, le cristal de BaTiO₃ présente la phase quadratique ferroélectrique de symétrie 4mm (C_{4v}). L'axe ferroélectrique étant l'axe C de symétrie 4, l'effet électro-optique est alors décrit par le tenseur suivant :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{23} = r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{51} = r_{42} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Tableau 2. 1: Tenseur électro-optique du BaTiO₃ en symétrie C_{4v}

Le choix des directions d'application du champ électrique, de propagation et de polarisation de l'onde lumineuse se propageant dans le cristal, sélectionne les coefficients EO intervenant dans le processus EO. Dans notre cas les trois coefficients électro-optiques indépendants r_{13} , r_{33} et r_{42} sont étudiés.

2.3. Influence d'un champ électrique appliqué

Dans le cas de BaTiO₃ en phase quadratique, en présence d'un champ électrique externe \vec{E} de composantes E_1, E_2, E_3 , l'équation de l'ellipsoïde des indices prend la forme générale suivante

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13}E_3\right)X^2 + \left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13}E_3\right)Y^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + r_{33}E_3\right)Z^2 + 2r_{42}XZE_1 + 2r_{42}YZE_2 = 1 \quad (2.2)$$

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

Où n_o et n_e sont respectivement l'indice ordinaire et extraordinaire et où le repère XYZ est le système des axes principaux à champ nul.

On remarque, d'après l'équation précédente, que la composante E_3 du champ électrique appliqué modifie les longueurs des demi-axes de l'ellipsoïde des indices, alors que les composantes E_1 et E_2 déforment l'ellipsoïde des indices et, en première approximation, le font tourner.

Deux cas se présentent selon que le champ appliqué est parallèle ou bien perpendiculaire à l'axe ferroélectrique.

2.3.1. Champ électrique parallèle à l'axe ferroélectrique mesure de r_{13} et r_{33}

Lorsque le champ électrique est appliqué parallèlement à l'axe ferroélectrique (C), l'équation de l'ellipsoïde des indices décrite par l'équation (2. 2) devient :

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13} E_3\right) X^2 + \left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13} E_3\right) Y^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + r_{33} E_3\right) Z^2 = 1 \quad (2.3)$$

Ces axes principaux sont toujours confondus avec les axes cristallographiques. Seules les dimensions de l'ellipsoïde ont changé.

L'intersection de cet ellipsoïde avec le plan d'onde XZ est une ellipse ayant comme équation :

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13} E_3\right) X^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + r_{33} E_3\right) Z^2 = 1 \quad (2.4)$$

On définit les indices de réfraction n_X et n_Z modifiés par le champ électrique E_3 , selon les directions des axes principaux X et Z :

$$\begin{aligned} \frac{1}{n_X^2} &= \frac{1}{n_o^2} + r_{13} E_3 \\ \frac{1}{n_Z^2} &= \frac{1}{n_e^2} + r_{33} E_3 \end{aligned} \quad (2.5)$$

En première approximation, du fait de l'ordre de grandeur des coefficients EO, ces indices s'écrivent sous la forme :

$$\begin{aligned} n_X &= n_Y = n_o - \frac{1}{2} n_o^3 r_{13} E_3 \\ n_Z &= n_e - \frac{1}{2} n_e^3 r_{33} E_3 \end{aligned} \quad (2.6)$$

La détermination des coefficients r_{13} et r_{33} revient donc à la mesure de la déformation de l'ellipsoïde des indices suivant les axes OX et OZ.

Lorsqu'aucun champ n'est appliqué sur le cristal, celui-ci présente une biréfringence naturelle $\Delta n_{xz}(0) = n_e - n_o$. En présence d'un champ électrique appliqué E La variation de biréfringence selon la direction Z devient :

$$\Delta n_{xz}(E) = \Delta n_{xz}(0) + \Delta n_{xz}(E) \quad (2.7)$$

La variation de biréfringence induite par le champ appliqué par effet électro-optique s'écrit :

$$\begin{aligned} \Delta n_{yz}(E) &= \partial n_z(E_3) - \partial n_x(E_3) \\ &= \frac{1}{2} (n_o^3 r_{13} - n_e^3 r_{33}) E_3 \\ &= -\frac{n_e^3}{2} \left(r_{33} - \left(\frac{n_o}{n_e} \right)^3 r_{13} \right) = -\frac{n_e^3}{2} r_c \end{aligned} \quad (2.8)$$

où $r_c = r_{33} - \left(\frac{n_o}{n_e} \right)^3 r_{13}$ est le coefficient effectif qui décrit la réponse à un champ électrique suivant l'axe Z.

2.3.2. Champ électrique perpendiculaire à l'axe C mesure de r_{42}

Dans ce cas, l'ellipsoïde des indices est perturbée par le champ électrique E (0, E₂, 0) et l'équation de l'ellipsoïde des indices devient :

$$\frac{X^2 + Y^2}{n_o^2} + \frac{Z^2}{n_e^2} + 2r_{42}E_2XZ = 1 \quad (2.9)$$

Pour Y = 0 l'équation devient:

$$\frac{X^2}{n_o^2} + \frac{Z^2}{n_e^2} + 2r_{42}E_2XZ = 1 \quad (2.10)$$

Pour exploiter cette équation, on la réécrit dans son système d'axes principaux, en faisant le changement de variable suivant les nouveaux axes principaux X' et Z' :

$$\begin{aligned} X &= X' \cos \alpha - Z' \sin \alpha \\ Z &= Z' \cos \alpha + X' \sin \alpha \end{aligned} \quad (2.11)$$

Si nous remplaçons les relations (2.11) dans l'équation (2.10) nous obtenons :

$$\begin{aligned} X'^2 \left(\frac{\cos^2 \alpha}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \alpha}{n_e^2} + 2r_{42}E_2 \cos \alpha \sin \alpha \right) + \frac{Y'^2}{n_o^2} + Z'^2 \left(\frac{\cos^2 \alpha}{n_e^2} + \frac{\sin^2 \alpha}{n_o^2} - 2r_{42}E_2 \cos \alpha \sin \alpha \right) + \\ 2X'Z' \left(\cos \alpha \sin \alpha \left(\frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) + r_{42}E_2 (\cos^2 \alpha - \sin^2 \alpha) \right) = 1 \end{aligned} \quad (2.12)$$

Les axes X' , $Y'=Y$ et Z' sont les nouveaux axes principaux de l'ellipsoïde des indices, si et seulement si, le terme $\sin 2\alpha \left(\frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right) + r_{42}E_2 \cos 2\alpha$ est nul. Donc, un champ électrique appliqué perpendiculairement, entraîne une rotation de l'ellipsoïde d'un angle α donné par l'expression suivante:

$$\operatorname{tg}(2\alpha) \approx \frac{2r_{42}E_2}{\frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2}} \quad (2.13)$$

La mesure du coefficient électro-optique r_{42} revient donc à mesurer l'angle de rotation dont on a tourné l'ellipsoïde des indices.

Si α est faible, on tire :

$$2\alpha \approx \frac{2r_{42}E_2}{\frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2}} \quad (2.14)$$

Le coefficient électro-optique r_{42} peut être donc déterminé par mesure de l'angle α nécessairement faible.

L'équation de l'ellipse devient alors:

$$\frac{X'^2}{n_x^2} + \frac{Z'^2}{n_z^2} = 1 \quad (2.15)$$

tel que :

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{n'_x}\right)^2 &\approx \frac{\cos^2(\alpha)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\alpha)}{n_e^2} + 2r_{42}E_2 \cos\alpha \sin\alpha \\ \left(\frac{1}{n'_z}\right)^2 &\approx \frac{\cos^2(\alpha)}{n_e^2} + \frac{\sin^2(\alpha)}{n_o^2} - 2r_{42}E_2 \cos\alpha \sin\alpha \end{aligned} \quad (2.16)$$

L'équation (2. 16) devient :

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{n'_x}\right)^2 &\approx \frac{1}{n_{\text{effX}}^2} (1 + 2r_{42}n_{\text{Xeff}}^2 E_2 \cos\alpha \sin\alpha) \\ \left(\frac{1}{n'_z}\right)^2 &\approx \frac{1}{n_{\text{effZ}}^2} (1 - 2r_{42}n_{\text{Zeff}}^2 E_2 \cos\alpha \sin\alpha) \end{aligned} \quad (2.17)$$

où

$$\begin{aligned} \frac{1}{n_{\text{effX}}^2} &= \frac{\cos^2\alpha}{n_o^2} + \frac{\sin^2\alpha}{n_e^2} \\ \frac{1}{n_{\text{effZ}}^2} &= \frac{\cos^2\alpha}{n_e^2} + \frac{\sin^2\alpha}{n_o^2} \end{aligned}$$

En première approximation, du fait de l'ordre de grandeur des coefficients EO (de l'ordre de pm/V), ces équations peuvent s'écrire sous la forme:

$$\begin{aligned} n'_x &\approx n_{\text{Xeff}} \left[1 + r_{42} E_2 n_{\text{Xeff}}^2 \cos\alpha \sin\alpha \right] \\ n'_z &\approx n_{\text{Zeff}} \left[1 - r_{42} E_2 n_{\text{Zeff}}^2 \cos\alpha \sin\alpha \right] \end{aligned} \quad (2.18)$$

La variation d'indice induite par le champ E₂ dans la direction X' et Z', vaut:

$$\begin{aligned} \partial n'_x &\approx r_{42} E_2 n_{\text{Xeff}}^3 \cos\alpha \sin\alpha \\ \partial n'_z &\approx -r_{42} E_2 n_{\text{Zeff}}^3 \cos\alpha \sin\alpha \end{aligned} \quad (2.19)$$

Validité des approximations utilisées: tg(α) ≈ α

Nous avons utilisé précédemment l'approximation

$$2\alpha = \frac{2r_{42}E_2}{\frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2}} \quad (2.20)$$

Compte tenu des faits suivants:

- les indices ordinaire et extraordinaire étant respectivement n_o = 2.41 et n_e = 2.36

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

- les valeurs des coefficients EO sont de l'ordre des pm/V⁻¹ (La plus grande valeur rencontrée est : 1745 pm V⁻¹[F. Abid 96]); les champs appliqués ne dépassent pas 10³ kV/m.

Nous trouvons pour l'angle α :

$\text{tg}(2\alpha) \approx 0,46$, soit une valeur de $\alpha \approx 0,22$ rad et $\text{tg}(\alpha) \approx 0,22$

Nous avons bien $\text{tg}(\alpha) \approx \alpha$ ce qui justifie notre hypothèse.

2.4. Rappels bibliographiques sur les coefficients électro-optiques

2.4.1. Coefficients électro-optiques de BaTiO₃ à température ambiante

Les coefficients électro-optiques ont fait l'objet de plusieurs études, la plupart des mesures étant généralement faites à la température ambiante. Le tableau ci dessous résume les principaux résultats obtenus sur des cristaux de BaTiO₃ non volontairement dopés [A. Johnston. 65], [A. Johnston 71], [A. Maillard 89], [F. Abdi 96] et [M. Zgonik. 94]

λ (nm)	r_{13} (pm/V)	r_{33} (pm/V)	r_c (pm/V)	r_{42} (pm/V)	Auteur
546,1				1640	[A. Johnston 65]
514	15 ± 3	110 ± 20	94		[A. Maillard 89]
632,8			95 ± 6	1745	[F. Abdi 96]
			108		[A. Johnston 71]
	8 ± 3	105 ± 10		1300 ± 100	[M. Zgonik. 94]

Tableau 2. 2: Valeurs bibliographiques des coefficients électro-optiques de BaTiO₃

Ce tableau indique clairement que les valeurs de coefficients mesurés du titanate de baryum diffèrent d'un échantillon à l'autre. Ces écarts peuvent être attribués à la différence entre les conditions de croissance.

2.4.2. Influence du dopage au fer

Le dopage des cristaux de BaTiO₃ est connu pour modifier la valeur des coefficients EO des échantillons. Une des premières mesures relevées, a été réalisée sur une série des cristaux dopés au fer à $\lambda=632,8$ nm[W.Ousi Benomar 86]. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau ci-dessous.

Cristaux	Pur	Dopage en fer			
		0,045%	0,075%	0,125%	0,250%
r_{42} (pm/V)	1000	2900	7530	3700	5180
r_c (pm/V)	20	67	7,52	70	15,1
r_{33}/r_{13}	2,5	3,76	1,06	2,15	1
r_{33} (pm/V)	31	90	87	120	118
r_{13} (pm/V)	11	24	96	60	126

Tableau 2. 3: Influence de la concentration en fer sur les coefficients électro-optiques de BaTiO₃ à $\lambda=632,8$ nm [W.Ousi Benomar 86]

Dans cette expérimentation, les valeurs des coefficients r_{13} et r_{33} n'étaient pas mesurées directement mais déduites des mesures du coefficient r_c et du rapport r_{13} et r_{33} . Ces valeurs présentent une incertitude de 30% et sont donc peu précises. Il est donc difficile de conclure de l'effet de fer sur ces coefficients.

D'autres mesures directes ont été faites par interférométrie pour différents dopages de fer par P. Jullien 92 (tableau 2.4).

Cristaux	Pur	Dopage en fer		
		0,04%	0,07%	0,075%
r_{42} (pm/V)	1252			3524
r_{33} (pm/V)	100	95	110	105
r_{13} (pm/V)	16	12	18	12,3

Tableau 2.4 : Influence de la concentration en fer à $\lambda=514,5$ nm

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

Ce tableau montre que la concentration de dopant ne modifie les coefficients EO r_{13} et r_{33} . Ils mettent en évidence par contre que le coefficient r_{42} en est fortement dépendant.

2.4.3. Influence de la longueur d'onde

a) Résultats des mesures

Le domaine d'application des matériaux photoréfractifs peut s'étendre au domaine du proche infrarouge. Il est donc intéressant de pouvoir disposer des valeurs des coefficients électrooptiques dans ce domaine. Une étude portant sur des échantillons non dopés et dopés au fer a été effectuée par Abid [Y.Abid 94]. Elle a montré que tous les coefficients électro-optiques dépendaient de la longueur d'onde. Comme le montre le tableau 2. 5, les coefficients diminuent d'environ 30% lorsqu'on passe du vert ($\lambda=457$ nm) à l'infrarouge ($\lambda=850$ nm).

$\lambda(\text{nm})$	850	632,8	514,5	457,9
r_{13} (pm/V)	8,9	10,7	12,4	15,3
r_{33} (pm/V)	73	81,9	97,1	106,8
r_{42} (pm/V)	1000	1187,9	1490,8	1770

Tableau 2 5: Influence de la longueur d'onde sur les coefficients électro-optiques de BaTiO₃ [Y. Abid 94]

b) Ajustement par la relation de Sellmeier

L'ajustement par une relation de Sellmeier de type $r_{ij,k} = \frac{a}{\left(1 - \frac{b}{\lambda^2}\right)^2}$ [A.R Johnston 71] des

coefficients électro-optiques expérimentaux permet de calculer les grandeurs a et b de ce modèle [Y. Abid 94] (tableau 2. 6).

Cristaux de BaTiO ₃	r ₁₃		r ₃₃	
	a (pm/V)	b (nm)	a (pm/V)	b (nm)
0% de Fer	16,6	296	67	274
0,0225 de Fer	17,4	291	77	266
0,045 de Fer	18	288	80	264
0,075 de Fer	18,4	283	79	263

Tableau 2. 6: Résultats d’ajustements obtenus pour les coefficients r₁₃ et r₃₃

2.4.4. Influence de la concentration en lacunes d’oxygène

Le tableau suivant montre que les coefficients électro-optiques r₁₃ et r₃₃ ne dépendent que peu de la concentration en lacunes d’oxygène [P. Jullien 90]. Les légères variations observées peuvent être la conséquence des cycles thermiques subis par les échantillons lors des traitements d’oxydation puis de réduction ce qui pu altérer l’état monodomaine. Le coefficient r₄₂ est, par contre, plus sensible à la concentration en lacunes d’oxygène. Tous ces coefficients ont été déterminés expérimentalement par la méthode interférométrique et Sénarmont.

Cristaux	68-2	68-2 réd	68-2 oxyd
r ₄₂ (pm/V)	1260	1340	920
r ₃₃ (pm/V)	93	94	101
r ₁₃ (pm/V)	12	10	11

Tableau 2. 7: Influence de la concentration en lacunes d’oxygène sur les coefficients électro-optiques [P. Jullien 90]

2.4.5. Influence du calcium sur BaTiO₃ (BCT)

Les coefficients électro-optiques ont été déterminés expérimentalement à une longueur d’onde λ=514,5 nm [C. Kuper 98], [V. Matusevich 2000] et [J. Neumann 99]; les résultats correspondants sont présentés dans le tableau 2. 8 ci dessous.

Auteur λ	Kuper 98 (514,5 nm)	V Matusevich (514,5 nm)	J. Neumann 99 (514, 5)
r_{13} (pm/V)	36	32, 5	
r_{33} (pm/V)	140	140	
r_{42} (pm/V)		287	190± 50

Tableau 2. 8: Valeurs bibliographiques des coefficients EO pour BCT

En comparant ces valeurs avec celles de BaTiO₃ pur (tableau 3.2), nous constatons que l’addition de calcium augmente les valeurs des coefficients r_{13} et r_{33} , contrairement à r_{42} qui diminue d’un facteur 6.

2.5. Contribution piézo-optique aux différents coefficients EO

Les coefficients EO basses fréquences r_{ijk}^T incluent toutes les contributions du réseau cristallin : acoustique, ionique et électronique. Les origines de ces différentes contributions sont expliquées avec plus de détail dans l’annexe A.

Ces contributions peuvent être positives, négatives voir nulles.

La contribution acoustique appelée aussi piézo-optique disparaît au-delà des fréquences de résonances piézo-électriques des échantillons, pouvant se situer entre 1 KHz à quelques centaines de MHz suivant les tailles d’échantillon.

Dans ce paragraphe, on se propose de donner les expressions de cette contribution piézo-optique dans le cas des coefficients r_{13} , r_{33} et r_{42} .

La contribution piézo-optique aux coefficients EO, notée désormais r_{ijk}^a , s’exprime par :

$$r_{ij,k}^a = p_{ijmn} d_{mnk} \tag{2.23}$$

Les tenseurs des coefficients piézo-électriques d_{mnk} et photo-élastiques p_{ijmn} dans le cas de la symétrie 4mm sont également donnés dans l’annexe A.

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

A partir des mesures des coefficients piézo-électriques d_{mnk} et photo-élastiques p_{ijlm} donnés par M.Zgonik.[M.Zgonik 94] pour BaTiO₃ et S.Bernhardt [S.Bernhardt. 2001] pour BCT, on peut calculer les contributions piézo-optiques. Ces coefficients sont résumés dans le tableau suivant (tableau 2.8).

	BCT	BaTiO ₃ : pur
$p_{44} d_{42}$ (pm/V)	27	570
$p_{33} d_{33}$ (pm/V)	82	69
$p_{13} d_{31}$ (pm/V)	-9	-6

Tableau 2.8: Contribution piézo-optique aux coefficients EO pour BaTiO₃ et BCT

Ce tableau montre que la contribution piézo-optique r_{42}^a pour BaTiO₃ pur est beaucoup plus élevée que celle de BCT, alors que les contributions à r_{33}^a , r_{13}^a sont plus fortes pour BCT que pour BaTiO₃ pur.

2.6. Conclusion

Cette étude donne un premier aperçu des valeurs des coefficients électro-optiques des cristaux purs et dopés. Nous constatons que le dopage en fer et le taux de lacunes d'oxygène ne modifient pas les coefficients électro-optiques r_{13} et r_{33} alors que la valeur du coefficient r_{42} dépend fortement de ces dopants. Par contre l'adjonction de calcium modifie les trois coefficients électro-optiques : les coefficients r_{13} et r_{33} sont plus élevés dans BCT alors que le r_{42} est plus faible. Cette évolution est probablement due au déplacement de la température de transition.

On note une dispersion des valeurs de ces coefficients à la température ambiante pour des cristaux de BaTiO₃.

3. Montages expérimentaux pour la détermination des coefficients EO de BaTiO₃: Rh et BCT: Rh

3.1. Introduction

Afin de déterminer les coefficients électro-optiques r_{33} et r_{13} de BaTiO₃:Rh et BCT :Rh, nous avons développé un banc de mesure basé sur un montage interférométrique [H. Y. Zhang. 91] permettant de mesurer à $\lambda=632,8$ nm et $\lambda=850$ nm. En effet, nous nous sommes intéressés à la sensibilité du BaTiO₃ dopé rhodium aux longueurs d'onde proche infrarouge.

Par ailleurs, nous avons également utilisé, dans notre investigation un montage à une onde de type Sénarmont, déjà existant au Laboratoire [M. Aillerie 2000]; les coefficients r_{42} et r_c , combinaison linéaires de r_{13} et r_{33} y ont été mesurés.

3.2. Montages expérimentaux de type interférométrique

3.2.1. Généralités

La mesure des coefficients électro-optiques des échantillons étudiés est basée sur la détermination de la variation de phase, et donc du chemin optique δ , engendré par le cristal EO lorsqu'il est soumis à un champ électrique.

Il est connu que l'indice de réfraction (n) et la longueur (L) du cristal dépendent à la fois de la température (T), du champ électrique appliqué (E) et des contraintes extérieures (σ).

La variation du chemin optique δ dans le cristal peut donc s'écrire:

$$d\delta = n dL + L dn = n \left(\frac{\partial L}{\partial T} dT + \frac{\partial L}{\partial E} dE + \frac{\partial L}{\partial \sigma} d\sigma \right) + L \left(\frac{\partial n}{\partial T} dT + \frac{\partial n}{\partial E} dE + \frac{\partial n}{\partial \sigma} d\sigma \right) \quad (3. 1)$$

Les différents effets intervenant dans la variation du chemin optique sont définis dans le tableau qui suit.

Effets liés à L	Effets liés à n
$\frac{\partial L}{\partial T}$: Dilatation thermique	$\frac{\partial n}{\partial T}$: Thermo-optique
$\frac{\partial L}{\partial E}$: Piézo-électrique inverse	$\frac{\partial n}{\partial E}$: Electro-optique
$\frac{\partial L}{\partial \sigma}$: Elasticité	$\frac{\partial n}{\partial \sigma}$: Elasto-optique

Tableau 3. 1 : Effets engendrant une variation de chemin optique dans le cristal

L'application d'un champ électrique au cristal induit ainsi une variation : d'indice Δn (effet EO) et de longueur ΔL (effet piézo-électrique inverse) qui s'exprime de la façon suivante:

$$\Delta n = -\frac{1}{2} n^3 r \frac{V}{e}$$
$$\Delta L = dL \frac{V}{e}$$
(3. 2)

où V est la tension appliquée entre les électrodes, au cristal d'épaisseur e ; d est le coefficient piézo-électrique inverse, r le coefficient EO et L la longueur du matériau.

3.2.2. Description de l'interféromètre de Michelson adapté aux mesures de r_{13} et r_{33} , réglages et mesures

3.2.2.1. Dispositif expérimental

Le schéma de la figure 3.1 illustre le dispositif expérimental de type interférométrique mis au point pour mesurer r_{13} et r_{33} . L'ensemble du banc de mesure est divisé en plusieurs parties :

- un dispositif anti-vibration
- un interféromètre de Michelson
- un ensemble de détection et d'amplification
- des sources de tension et de commande
- un ensemble d'acquisition et de traitement de données

L' interféromètre est composé des éléments suivants :

- une diode laser proche infrarouge ($\lambda=850$ nm) monomode de puissance 100 mW et polarisée rectilignement.
- un laser He-Ne ($\lambda=632,8$ nm) de puissance 10 mW continu, monomode et polarisé rectilignement.

Le diamètre du faisceau est agrandi à l'aide d'un système afocal comprenant un objectif de microscope (L1), un trou calibré et une lentille (L2) permettant d'obtenir un faisceau de lumière parallèle et homogène à l'entrée de l'interféromètre.

Les deux miroirs sont légèrement inclinés de façon à réaliser un coin d'air; le faisceau laser se propage dans les deux bras de l'interféromètre contenant chacun un cristal électro-optique .

Un modulateur EO constitué de deux cristaux de phosphate d'ammonium dihydrogéné (ADP) croisés pour compenser l'effet thermo-optique, est inséré dans un bras de l'interféromètre. Il est connecté à un générateur de tension continue et alternative permettant d'une part d'ajuster la longueur du chemin optique et d'autre part de moduler le faisceau laser.

Le cristal EO à étudier est soumis à une tension uniquement continue.

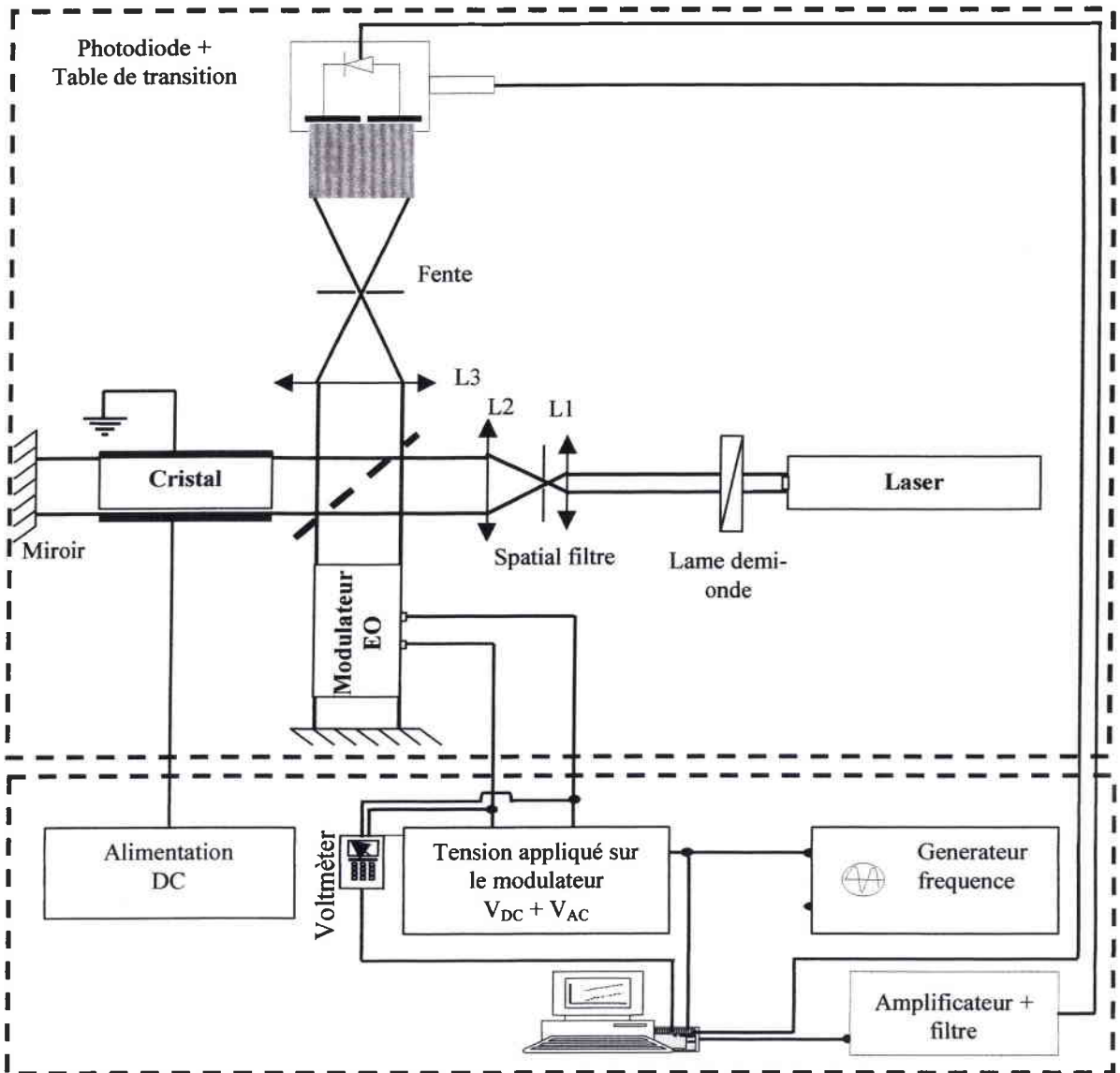


Figure 3. 1 : Représentation générale du banc d'interférométrie

En sortie de l'interféromètre, l'image est agrandie par une lentille (L3) qui est disposée de manière à envoyer l'image des franges d'interférence sur la photodiode. L'image globale contient des interférences parasites provenant essentiellement des réflexions sur les faces des cristaux EO.

Les deux fronts d'ondes réfléchis par les miroirs interfèrent pour donner un système de franges rectilignes et verticales. Dans le cas du laser à $\lambda=632,8$ nm, le travail est fait sur des franges en forme d'anneaux car le cristal est très absorbant à cette longueur d'onde, la fente est alors remplacé par un trou circulaire.

L'image est d'abord filtrée par un diaphragme pour éliminer les réflexions parasites puis agrandie. Une photodiode, placée derrière une fente verticale(ou trou circulaire), permet de relever l'intensité des franges et convertit celle-ci en une variation de courant.

L'acquisition du signal, des points de mesures et la commande du modulateur EO sont effectuées de façon automatique à l'aide d'un ordinateur.

3.2.2.2. Réglage du cristal

Le cristal est placé entre deux électrodes en laque d'argent permettant d'appliquer le champ électrique parallèlement à l'axe C, donc dans le même sens que la polarisation spontanée du cristal (la détermination du sens est faite par une méthode pyroélectrique, voir paragraphe suivant) ceci afin d'éviter le basculement des domaines et de maintenir l'état monodomaine de l'échantillon.

On règle la position du cristal de façon à ce que sa face d'entrée soit perpendiculaire au faisceau lumineux. Il est alors possible d'aligner les axes du cristal par rapport à la polarisation du laser en plaçant le cristal entre polariseur et analyseur croisés et en recherchant l'extinction.

Dans un cristal photoréfractif, il est connu que les charges photo-excitées se déplacent vers les électrodes, sous l'action des champs interne ou externe, elles sont alors piégées dans les zones sombres du cristal par des défauts, créant ainsi un champ de charges d'espace s'opposant au champ appliqué.

Pour s'affranchir de ce problème, nous avons installé un éclairage homogène du cristal par une lampe en lumière blanche de puissance 20 W, collimatée et placée au dessus du cristal.

3.2.2.3. Effet pyroélectrique pour déterminer le sens de l'axe C

La détermination du sens de la polarisation d'un cristal est possible à partir de la connaissance du sens du courant pyroélectrique engendré par le chauffage de l'échantillon (figure 3. 2).

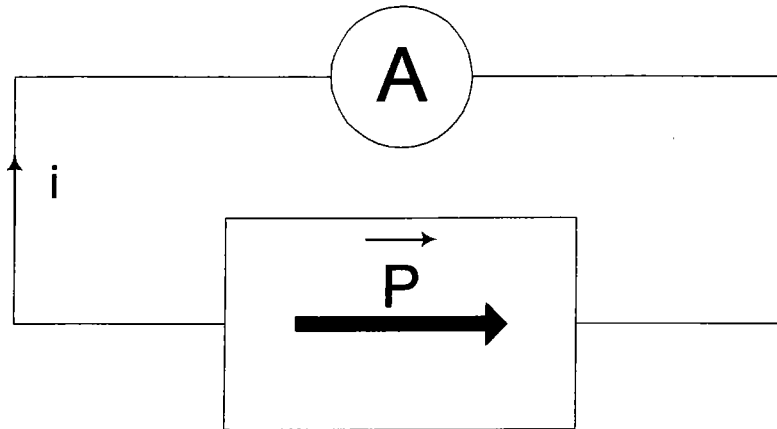


Figure 3. 2: Montage permettant la détection du sens de la polarisation d'un cristal

Un ampèremètre de très faible résistance d'entrée est connecté aux deux faces opposées de l'échantillon, préalablement recouvertes de laque d'argent. Lorsque la température croît ($\frac{dT}{dt} > 0$), la polarisation décroît $\frac{dP}{dT} < 0$ et le courant, proportionnel à $\frac{dP}{dt} = \frac{dP}{dT} \cdot \frac{dT}{dt}$, est donc négatif (figure 3. 3).

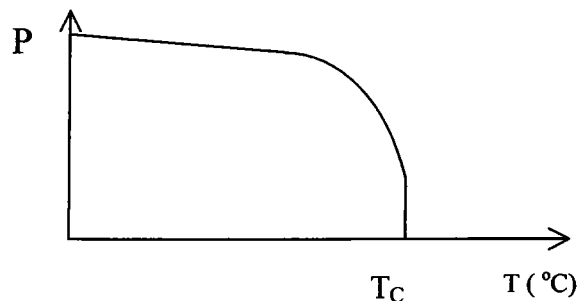


Figure 3. 3: Polarisation en fonction de la température

3.2.2.4. Automatisation du système et visualisation

Nous avons automatisé le banc de mesure à l'aide du logiciel LABVIEW, ce qui nous permet de visualiser, en temps réel, le signal issu du préamplificateur ainsi que sa transformée de Fourier. Labview nous permet aussi :

- de réaliser l'acquisition des tensions appliquées au modulateur,
- d'assurer la commande de la haute tension appliquée au cristal EO,
- de déplacer la platine supportant la fente.

Par ailleurs, une caméra reliée à une carte d'acquisition vidéo permet d'aligner le laser infrarouge et de visualiser les franges.

3.2.2.5. Fonction de transfert de l'interféromètre de Michelson

Dans le cas particulier où les intensités des faisceaux dans les deux bras sont identiques, le contraste entre les franges est égal à 1 et la transmittance s'écrit:

$$T = \frac{I_s}{I_0} = 4 \cos^2\left(\frac{\Phi}{2}\right) = 4 \cos^2\left(\frac{\pi\Delta}{\lambda}\right) \tag{3.3}$$

où I_s et I_0 sont respectivement les intensités en sortie et dans le bras de l'interféromètre, $\Phi = \frac{2\pi\Delta}{\lambda}$ est la différence de phase et Δ est la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre.

La fonction de transfert est visualisé en déplaçant la fente et la photodiode le long du système de franges. La figure 3.4 représente l'intensité du système d'interférence en fonction du déphasage entre les deux bras de l'interféromètre.

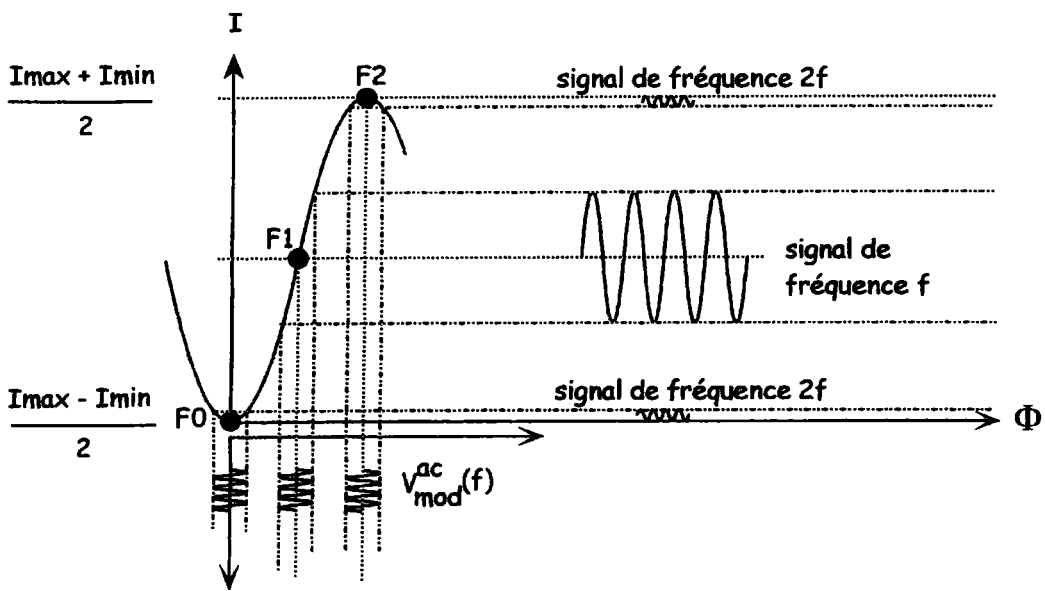


Figure 3. 4: Variation de l'intensité du système d'interférence en fonction du déphasage

Cette courbe présente des points de fonctionnement caractéristiques comme F_0 et F_2 qui correspondent respectivement à une frange sombre et brillante. La différence de marche entre ces deux franges est égale à $\frac{\lambda}{2}$. Le point F_1 se rapporte à la zone linéaire.

Il existe plusieurs moyens de se déplacer sur la fonction de transfert:

- par translation mécanique de la fente et de la photodiode le long du système de franges.

- par déplacement du système de franges en appliquant une tension continue V_{dc} sur le modulateur EO ou sur le cristal EO.

Le positionnement de la fente et de la photodiode sur une frange sombre représente le point de départ de toutes les mesures. Il est donc nécessaire de disposer d'une méthode très précise de détection du point F0.

L'application d'une tension alternative au modulateur EO modifie son indice de réfraction par effet EO. Le chemin optique est alors périodiquement modulé si bien que le système de franges se met à vibrer autour de sa position d'équilibre. Pour un signal alternatif de fréquence f , le signal détecté va dépendre de la position de la fente et du détecteur par rapport au système des franges. En F1, le signal de sortie possède la même fréquence f alors qu'en F0 ou F2 il est à la fréquence double ($2f$).

Par conséquent, l'observation d'un signal au doublement de fréquence sur un oscilloscope permet un positionnement très précis du système fente + détecteur sur une frange sombre ou brillante.

La mesure est réalisée au point du doublement de fréquence. La première étape consiste à obtenir des franges d'interférences par réglage des miroirs, sans appliquer de champ électrique aux différents éléments. Dans ce cas, le système des franges est immobile et la différence de marche est donnée par l'équation :

$$\Delta_0 = 2[\varepsilon + L_m(n_m - 1) - L(n - 1)] \quad (3.4)$$

où n_m , n , L_m et L sont, respectivement, les indices de réfraction et les longueurs du modulateur et du cristal à étudier ; ε est la différence de marche entre deux bras de l'interféromètre sans cristaux.

Une tension continue appliquée sur le modulateur permet le positionnement des franges par rapport à la fente. L'application d'une tension continue modifie l'indice et la longueur via les effets EO et PE inverse. Elle permet d'ajuster la longueur du chemin optique dans le bras jusqu'à atteindre une frange sombre, visualisée par le signal à la fréquence double sur l'oscilloscope.

Une tension continue V_m^i , appliquée sur le modulateur permet de régler le point de fonctionnement au doublement de fréquence et la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre est donné par l'équation suivante :

$$\Delta_i = 2[\varepsilon + L_m(n_m - 1) + \Delta L_m(n_m - 1) + L_m \Delta n_m(E_m^i) - L(n - 1)] \quad (3.5)$$

Une tension V_c est alors appliquée sur le cristal étudié, ce qui déplace le point de fonctionnement et enfin une tension V_m^f est appliquée sur le modulateur pour compenser le déphasage induit par V_c . Le chemin optique final est:

$$\Delta_f = 2\left[\varepsilon + L_m(n_m - 1) + L_m\Delta n_m(E_m^f) + \Delta L_m(E_m^f)(n_m - 1) - L(n - 1) - L\Delta n(E) - \Delta L(E)(n - 1)\right] \quad (3. 6)$$

Les états caractérisés par Δ_i et Δ_f sont identiques car ils correspondent à la même frange sombre et à la même différence de marche. En les identifiant on trouve :

$$V_m^f - V_m^i = \frac{-\frac{1}{2}n^3rL\frac{V}{e} + (n - 1)dL\frac{V}{e}}{\frac{1}{2}n_m^3r_mL_m\frac{V}{e_m} + (n_m - 1)d_mL_m\frac{V}{e_m}} \quad (3. 7)$$

Le dénominateur de cette fraction est une constante attachée au modulateur, noté C_m (Annexe C).

La valeur du coefficient EO du cristal est alors obtenue via l'équation :

$$r = r^* + r' = -\frac{e}{n^3LV}C_m(V_m^f - V_m^i) + 2\frac{(n - 1)d}{n^3} \quad (3. 8)$$

Le premier terme de cette égalité (r^*) sera appelé coefficient EO apparent, alors que le second (r') correspond à un facteur correctif provenant de l'effet piézo-électrique.

3.2.3. Montage à une onde de type Sénarmont

3.2.3.1. Description du montage

Le montage utilisé pour mesurer expérimentalement les coefficients r_{42} et r_c est le montage Sénarmont, c'est à dire un montage à une onde à polarisation linéaire. Le cristal étudié est inséré dans un système optique dont la fonction de transfert permet une modulation de phase ou d'amplitude du faisceau incident.

Le schéma de principe de la partie optique est représenté sur la figure 3 5. Un schéma plus détaillé de l'installation telle qu'elle existe au laboratoire est donné en figure 3.6.

La partie optique du banc est composée d'un polariseur linéaire orienté à un angle $\alpha = \frac{\pi}{4} \pm k\pi$

par rapport aux axes de référence et du cristal électro-optique à étudier. A la sortie du cristal, le rayon subit un retard de phase Γ . Il traverse ensuite une lame quart d'onde placée entre l'échantillon et l'analyseur dont les axes principaux sont à 45° des axes de référence (X,Z).

L'ensemble des appareils (générateur, oscilloscope, multimètre, amplificateur de courant, commandes des moteurs) est relié à un ordinateur au moyen d'une carte d'acquisition, pouvant saisir les signaux. L'ordinateur contrôle tous les paramètres : la tension appliquée à

l'échantillon (amplitude, fréquence,...), les positions des polariseurs du montage, et récupère également les données nécessaires à l'analyse des résultats.

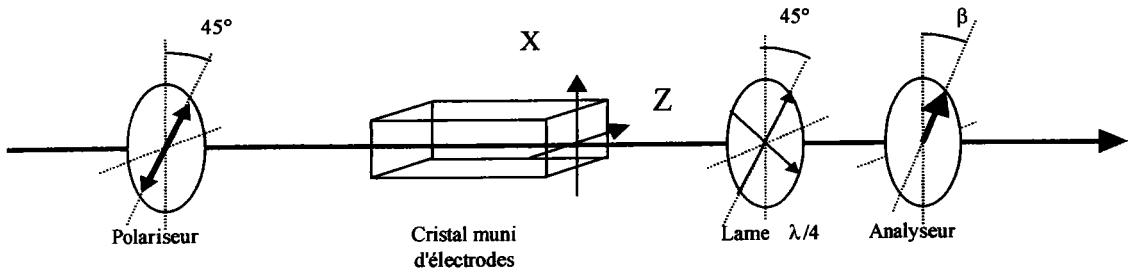


Figure 3. 5: Schéma de principe du montage Sénarmont, sans les appareils de mesure

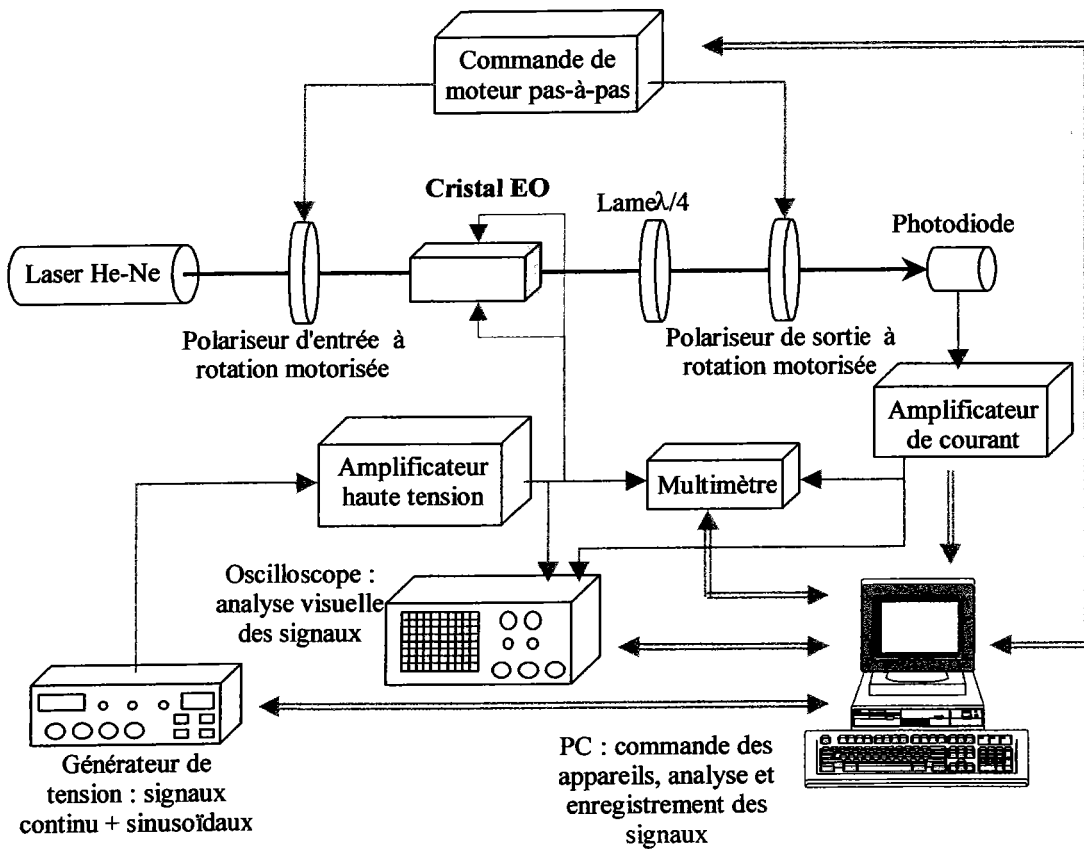


Figure 3. 6: Schéma détaillé du banc électro-optique présent au laboratoire

3.2.3.2. Fonction de transfert du système

La fonction de transfert d'un tel montage est donnée par [M. Aillerie 2000]:

$$T = \frac{I}{I_0} = 1/2[1 - \sin(\Gamma - 2\beta)] \quad (3.9)$$

où I_0 et I sont respectivement les intensités incidentes sur l'échantillon et en sortie du montage, Γ le retard induit dans le cristal entre les composantes de la polarisation du faisceau

lumineux. Par ajustement de l'angle β on peut choisir le point de fonctionnement correspondant à des valeurs particulières de la transmission et donc de l'intensité transmise. La figure 3.7 décrivant l'équation 3.9 montre la courbe représentative de la fonction de transfert T en fonction du déphasage et/ou de la tension appliquée. Deux points de fonctionnement présentent de l'importance pour le choix de la méthode de mesure des coefficients EO. Il s'agit du point de minimum de transmission représenté par M_0 sur la courbe, et le point M_1 qui correspond à 50% de l'intensité transmise.

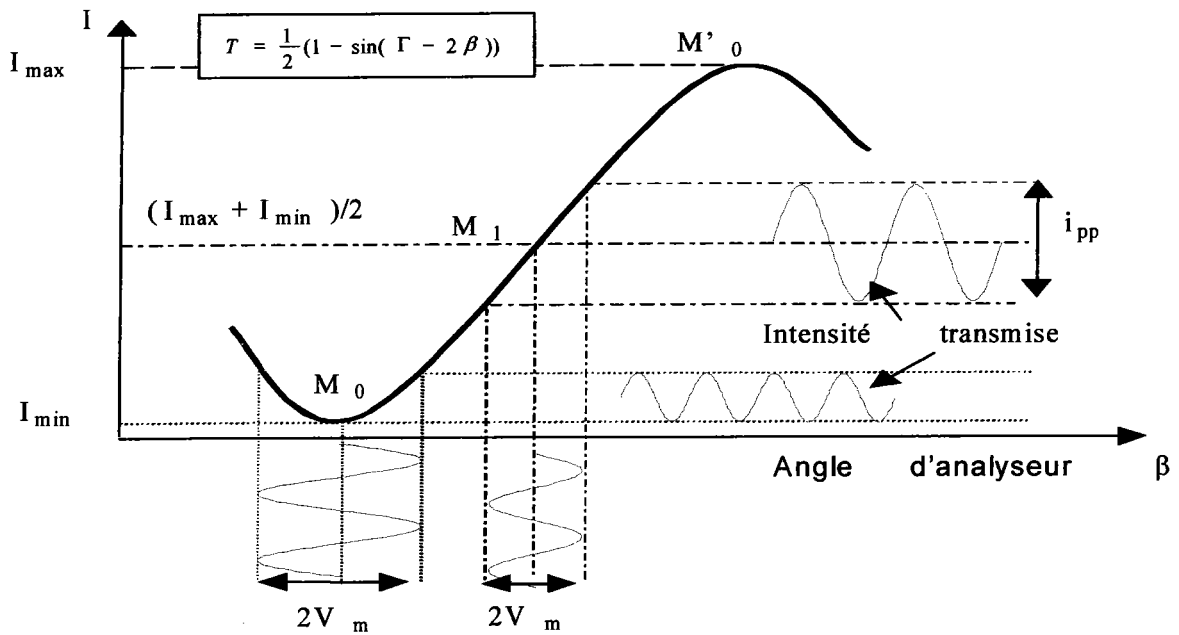


Figure 3. 7: Courbe représentative de la transmission optique du montage Sénarmont en fonction de la tension DC appliquée et de l'angle de l'analyseur β

L'insertion de la lame quart d'onde dans ce montage assure une relation linéaire entre le déphasage Γ et la position angulaire de l'analyseur. Ainsi, par simple rotation de ce dernier, il est possible de compenser (et donc de mesurer) les variations du déphasage.

3.2.3.3. Réglages et principes

Le principe de mesure des coefficients EO est basé sur la mesure du coefficient n^3_r . La méthode utilisée consiste à mesurer la profondeur de modulation dite $2J_\omega$.

Les opérations de réglage et de mesure sont exécutées dans l'ordre suivant :

- par rotation de l'analyseur, on cherche l'intensité minimale transmise, correspondant à M_0 .

On note I_{min} la valeur de cette intensité et β_0 la position angulaire de l'analyseur.

- en plaçant l'analyseur à la position angulaire $\beta_0 + 90^\circ$, on se place sur la courbe de réponse au point M'_0 , maximum d'intensité transmise. Cette valeur est notée I_{\max} .

- on se place ensuite au point M_1 , point de réponse en phase. L'analyseur est pour cela placé à la position $\beta_0 + 45^\circ$. Dans cette configuration, on note V_m l'amplitude crête à crête de la modulation électrique appliquée à l'échantillon. L'amplitude alternative crête à crête de l'intensité modulée est notée $2 J_\omega$.

Le déphasage crête à crête induit par ce champ est donné par :

$$\Gamma = \text{Arcsin}\left(\frac{2J_\omega}{I_{\max} - I_{\min}}\right) \quad (3.10)$$

Ce déphasage s'écrit aussi :

$$\Gamma = \frac{2\pi L \Delta n}{\lambda} \quad (3.11)$$

Compte tenu du fait que $\Delta n(E) = \Delta n_0 - \frac{1}{2} n^3 r_{\text{eff}} \frac{V_m}{e}$, l'expression du coefficient $n^3 r_{\text{eff}}$ en fonction de l'amplitude crête à crête du signal modulé est la suivante [L. Guilbert 99]:

$$n^3 r_{\text{eff}} = \frac{2\lambda}{\pi L_{\text{eff}}} \frac{e}{V_m} \text{Arcsin}\left(\frac{i_{\text{pp}}}{I_{\max} - I_{\min}}\right) \quad (3.12)$$

avec λ la longueur d'onde, V_m l'amplitude crête à crête de la tension appliquée sur le cristal et e l'épaisseur entre les électrodes, L la longueur de cristal qui dépend de la direction de propagation.

3.3. Conclusion

Dans cette partie, nous avons expliqué le principe de mesure de deux montages expérimentaux utilisées:

- un montage interférométrique en lumière polarisée qui rend accessibles les coefficients r_{13} et r_{33} indépendamment.
- un montage à une onde de type Sénarmont qui permet d'accéder au coefficient r_c une combinaison linéaire des coefficients r_{13} et r_{33} et le coefficient r_{42} .

Ces deux techniques sont suffisantes pour mesurer ces coefficients EO en fonction de la longueur d'onde et la température de l'échantillon. Les résultats obtenus pour les cristaux dopés rhodium (BaTiO₃ : Rh et BCT : Rh) en fonction de ces paramètres physiques feront l'objet de la partie suivante de ce chapitre.

4. Résultats expérimentaux des coefficients EO pour BaTiO₃:Rh et BCT:Rh

4.1. Introduction

Dans un premier temps, nous présentons les conditions expérimentales utilisées pour réaliser les mesures des coefficients électro-optiques. Nous donnons ensuite les résultats expérimentaux obtenus en fonction des longueurs d'onde et de la température sur des cristaux dopés rhodium (BaTiO₃: Rh et BCT : Rh).

4.2. Etude des coefficients EO du BaTiO₃ dopés rhodium

Les mesures ont été réalisées sur des cristaux dopés au rhodium (BaTiO₃ : Rh) à 1000 ppm. Deux échantillons de dimensions différentes ont été utilisés lors de la mesure de ces coefficients (tableau 4. 1).

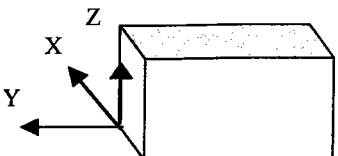
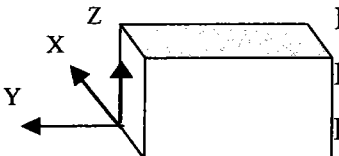
Ref : X 19-8 / 4(N° 1)	Ref : X 45- 15 / 2 (N°2)
 <p> $L_X = 4,4 \text{ mm}$ $L_Y = 6,2 \text{ mm}$ $L_Z = 4,1 \text{ mm}$ </p>	 <p> $L_X = 4,4 \text{ mm}$ $L_Y = 5,6 \text{ mm}$ $L_Z = 5,1 \text{ mm}$ </p>

Tableau 4. 1 : Caractéristiques des cristaux BaTiO₃ : Rh utilisés lors des mesures des coefficients EO

4.2.1. Mesures des coefficients EO déterminés par la méthode interférométrique (r_{13} et r_{33})

L'utilisation des tenseurs EO et PE de BaTiO₃ permet de déterminer les variations des indices de réfraction (Δn_i) et les variations de longueur (ΔL_p) pour des directions particulières du champ électrique appliqué, de la propagation de et de la polarisation la lumière. Par conséquent, il faut définir les configurations expérimentales permettant d'accéder aux coefficients et de préciser les coefficients PE à considérer (tableau 4. 2).

Champ E _k	Propagation L _p	Polarisation P _i	Variation d'indice Δn _i	Variation de la longueur ΔL _p
k = Z	X	Y	$\Delta n_2 = -1/2 n^3_o r_{13} E_3$	$\Delta L_x = d_{31} L_x E_3$
	Y	X	$\Delta n_1 = -1/2 n^3_o r_{13} E_3$	$\Delta L_y = d_{31} L_y E_3$
k = Z	X	Z	$\Delta n_3 = -1/2 n^3_e r_{33} E_3$	$\Delta L_x = d_{31} L_x E_3$
	Y	Z	$\Delta n_3 = -1/2 n^3_e r_{33} E_3$	$\Delta L_y = d_{31} L_y E_3$

Tableau 4. 2: Expressions des variations d'indice (Δn_i) et de la longueur(ΔL_p) de BaTiO₃ intervenant dans la mesure de r₁₃ et r₃₃

Ce tableau montre que l'on peut déterminer les coefficients pour deux directions différentes de propagation et de polarisation. Nous avons opté pour une polarisation selon Y et une propagation selon X pour mesurer r₁₃. Pour r₃₃, nous avons choisi une propagation selon Y, et une direction de polarisation selon Z.

Comme il a été mentionné dans le paragraphe 3.2.2.5 (équation 3.7), la tension appliquée au modulateur (ΔV_m), pour compenser la variation du chemin optique induite par l'application d'un champ électrique au cristal, permet de remonter au coefficient EO apparent r^{*}. Cette tension est obtenue en calculant la différence entre les deux droites qui approchent au mieux les mesures expérimentales de Vⁱ_m et V^f_m.

Notons qu'il faut tenir compte de l'erreur systématique due à l'effet PE inverse (variation de la longueur) pour calculer les coefficients EO. Cette contribution PE correspond au coefficient correctif r' donné par l'expression suivante :

$$r' = 2 \frac{(n-1)d}{n^3} \tag{4.1}$$

Le tableau (4.3) résume les différentes valeurs de cette contribution pour les deux longueurs d'onde, en considérant les résultats du chapitre 3 (indices de réfraction et coefficient piézo-électrique).

EO (pm/V)	r_{13}	r_{33}
$\lambda= 632,8$ (nm)	6,3	6,1
$\lambda= 850$ (nm)	6,4	6,4

Tableau 4. 3 : Valeurs des coefficients correctifs r se rapportant à l'effet PE inverse

4.2.1.1. Résultats expérimentaux à 632, 8nm

a) Mesure de r_{13}

La figure 4.1 présente un exemple d'enregistrement en fonction du temps, obtenu sur le cristal de référence N°1, la tension appliquée suivant Z est de 85V.

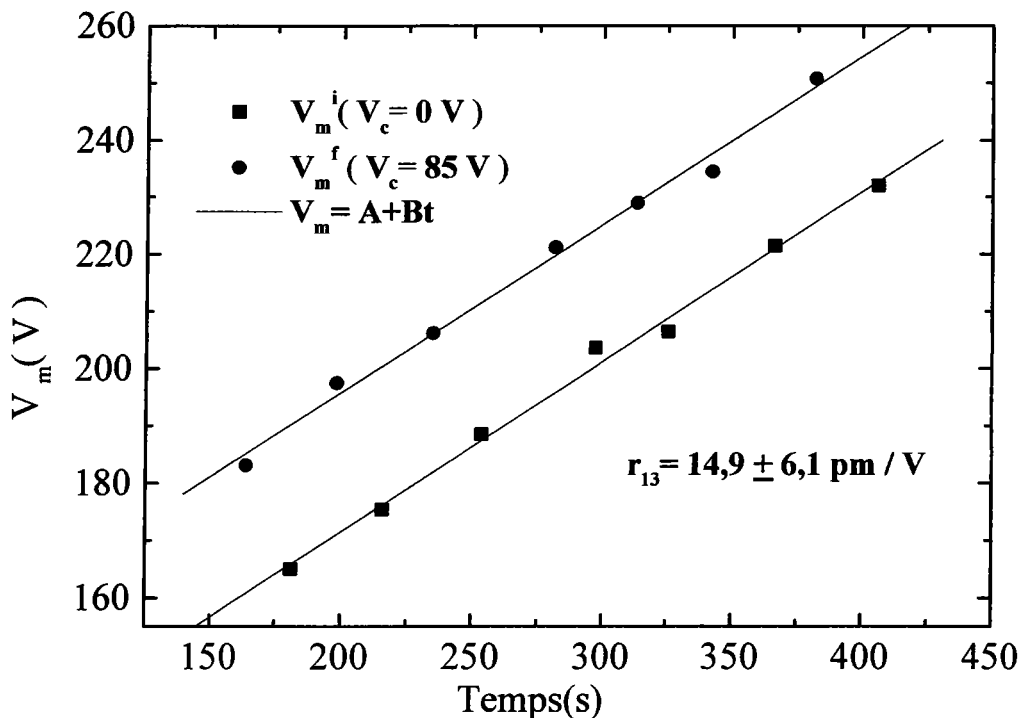


Figure 4. 1: Exemple d'enregistrement lors de la mesure de r_{13} ($\equiv r_{23}$) à $\lambda=632.8$ nm

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

La tension V_m^i représente la tension appliquée au modulateur qui permet de se placer sur une frange sombre lorsque le cristal EO n'est soumis à aucun champ électrique ($V_c = 0$ V).

L'application d'une tension continue de 85 V au cristal de BaTiO₃ :Rh modifie, par effet EO et PE, la longueur du chemin optique entraînant ainsi une translation du système des franges. La position initiale est alors retrouvée par ajustement du chemin optique par application d'une nouvelle tension au modulateur V_m^f .

La différence entre les deux droites obtenues par régression linéaire, est la tension appliquée au modulateur pour compenser la variation du chemin optique induite par l'application d'un champ électrique au cristal, Dans cet exemple, on obtient :

$$24,1V \leq \Delta V_m \leq 25,7V$$

Ce résultat montre qu'il existe également une variation de la valeur de la tension appliquée sur le modulateur entre le début et la fin de l'expérience provenant du fait que les droites (V_m^i et V_m^f) présentent des pentes légèrement différentes. La dérive du signal n'est pas gênante car seul l'écart entre les droites est utilisé. Cette variation du chemin optique dans les bras de l'interféromètre peut s'expliquer par les effets de la température sur les échantillons étudiés.

Le coefficient EO $r_{13} = r_{23}$ est calculé à partir de l'équation:

$$r_{13} = r_{13}^* + r_{13}' = \frac{-e_z}{n_o^3 L_x V_z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_o - 1)}{n_o^3} d_{31}$$

En tenant compte de $d_{31} = -30,5$ pm/V et $n_o = 2,4$ (données dans chapitre 3) on obtient :

$$r_{13} = r_{13}^* + r_{13}' = 14,9 \pm 6,1 \text{ pm/V}$$

b) Mesure de r_{33}

La figure 4.2 correspond à un exemple d'enregistrement de tension du modulateur en fonction du temps obtenue sur le cristal N°1 sous une tension appliquée de 42V suivant Z.

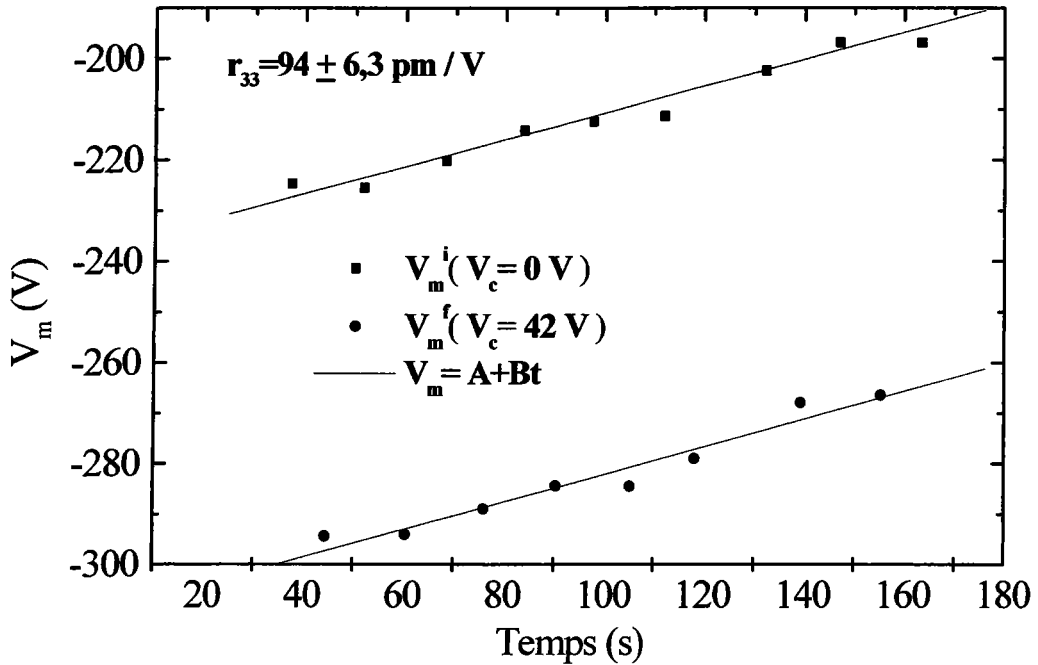


Figure 4. 2: Enregistrement lors de la mesure de r_{33} à $\lambda=632.8\text{nm}$

La différence entre les deux droites dans cet exemple est :

$$-72,4\text{V} \leq \Delta V_m \leq -71,3\text{V}$$

Le coefficient r_{33} est calculé à partir de l'équation :

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = -\frac{e_z}{n_e^3 L_y V_z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_e - 1)}{n_e^3} d_{32}$$

En tenant compte des contributions piézo-électriques (données du tableau 4.3), la valeur totale de r_{33} , dans cette configuration est :

$$r_{33} = 94 \pm 6,1\text{pm/V}$$

La figure 4.3 représente les résultats obtenus sur le cristal N°2, en appliquant une tension $V_c = 87\text{V}$.

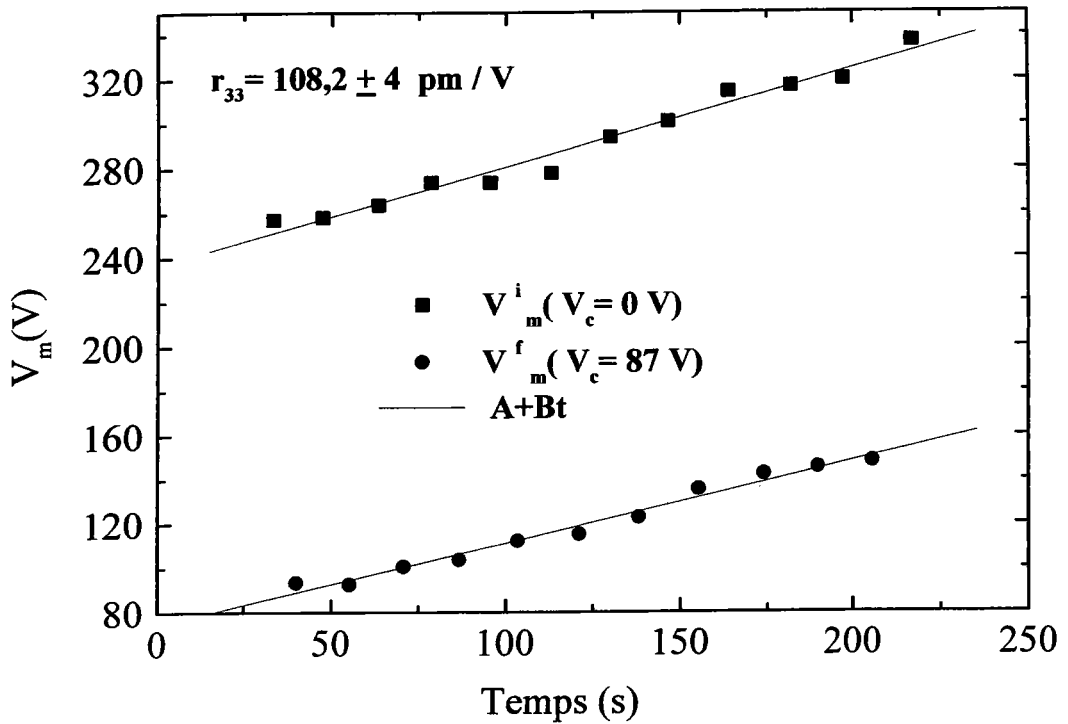


Figure 4. 3: Mesure de r_{33} pour le N°2

De nombreuses mesures ont été effectuées pour diverses tensions appliquées, elles ont montré que ces coefficients ne dépendent pas de l'amplitude du champ électrique appliqué. Pour les différents résultats présentés, l'incertitude expérimentale est estimée à 10%. Le tableau suivant résume les coefficients EO à $\lambda=632,8$ nm pour les deux échantillons BaTiO₃ : Rh.

Coefficient EO (pm / V)	BaTiO ₃ : Rh	
	X 19 – 8 / 4	X 45 – 15 / 2
r_{33} (pm / V)	108(10%) ± 6,3	94 (10%)± 6,3
r_{13} (pm / V)	15, 4 (10%)± 6,1	14,9 (10%)± 6,1

Tableau 4. 4: Résumé des résultats obtenus à $\lambda=632.8$ nm

4.2.1.2. Influence de la température

a) Etude de r_{33} en fonction de la température

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO_3 et BCT)

Afin de déterminer le comportement en température du coefficient r_{33} , nous avons équipé le dispositif expérimental d'un four (figure 4.4) muni d'un porte-échantillon métallique. Un thermocouple est placé sur le support à proximité du cristal pour mesurer sa température avec précision. Un régulateur de température électronique permet de stabiliser la température et de la faire varier de l'ambiante à 50°C .

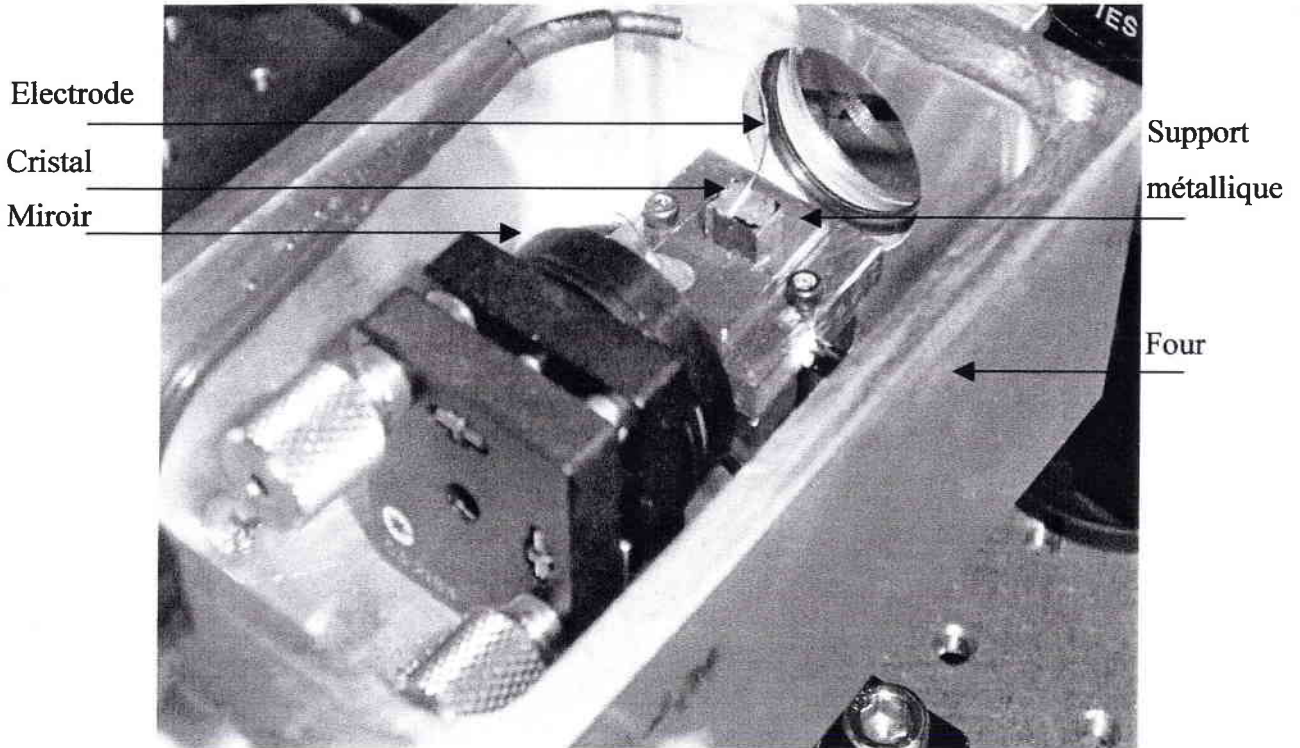


Figure 4.4 : Photo du four utilisé pour mesurer le coefficient r_{33} en fonction de température

Les résultats obtenus par la méthode précédemment mise en œuvre, sont présentés sur la figure 4.5, en considérant une barre d'erreurs de 10% sans tenir compte des corrections dues à l'effet piézo-électrique.

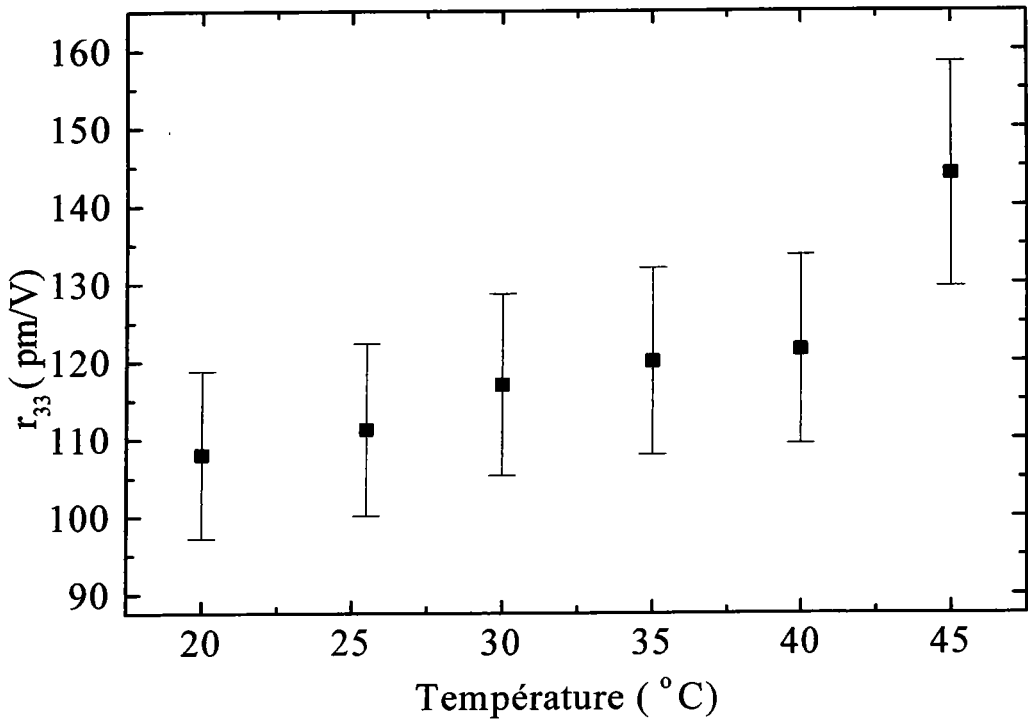


Figure 4. 5 : Variation du coefficient r_{33} en fonction de la température

On observe que le coefficient r_{33} augmente progressivement avec la température. Ce comportement est comparable à celui obtenu pour BaTiO₃ pur [P. Bernasconi 95] et [Y. Abid 94]. Rappelons que dans le cas du titanate de baryum pur, ce coefficient augmente fortement lorsque la température s'approche de la transition de phase cubique–quadratique qui est de 134 °C [Y. Abid 94].

b) Comparaison de l'évolution de la constante diélectrique ϵ_{33} avec r_{33} en fonction de la température

Sur la figure 4.6, nous représentons une comparaison des coefficients r_{33} et ϵ_{33} . On observe qu'ils évoluent de la même façon.

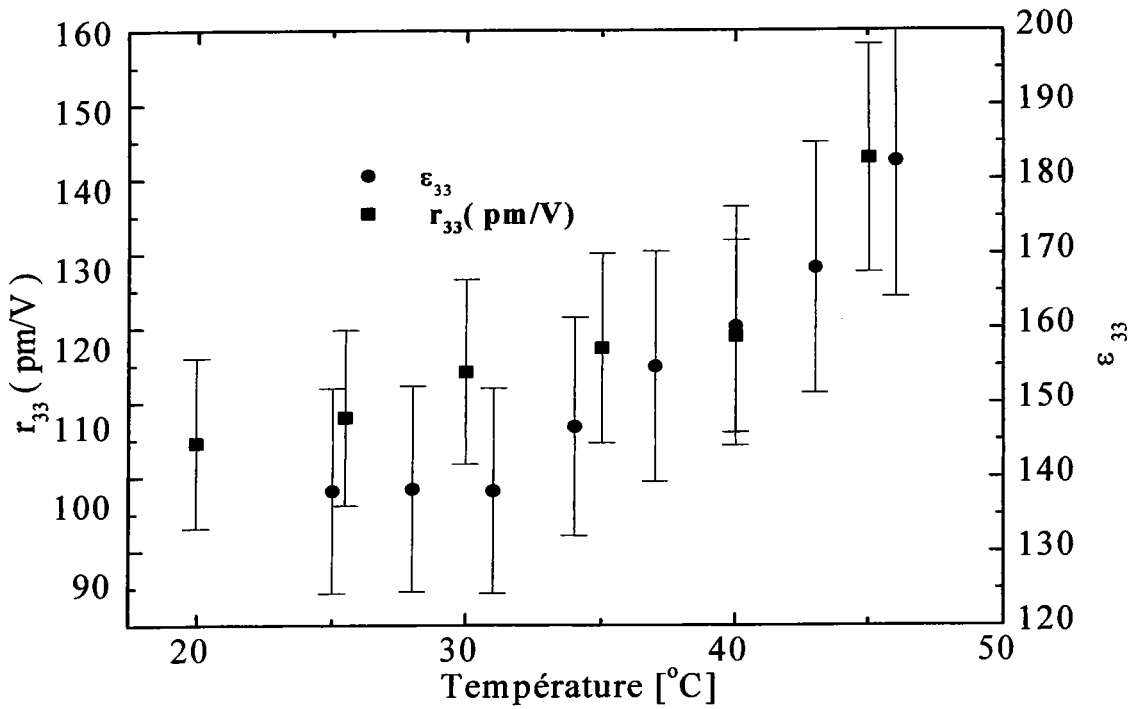


Figure 4. 6 : Evolution de ϵ_{33} et r_{33} en fonction de la température

Didomenico et ses collaborateurs [M. Didomenico 68] ont proposé une expression théorique qui relie les coefficients EO linéaires aux coefficients quadratiques de polarisation optique g_{mn} des oxydes pérovskites et des constantes diélectriques. Dans ce modèle l'effet linéaire est interprété comme un prolongement dans la phase ferroélectrique de l'effet EO quadratique de la phase cubique qui serait induit par la polarisation spontanée P_s pour les coefficients EO. Dans le cas du coefficient r_{33} cette relation est donnée par l'expression suivante :

$$r_{33} = 2g_{11}\epsilon_o(\epsilon_{33} - 1)P_s$$

avec: g_{mn} , le coefficient EO quadratique de la structure pérovskite.

Dans ce modèle les coefficients quadratiques de polarisation optique g_{mn} sont supposés constants pour un grand nombre d'oxydes.

Ce modèle montre que les coefficients électro-optiques sont proportionnels aux constantes diélectriques et à la polarisation spontanée. Cette étude théorique vérifie les résultats expérimentaux obtenus, en considérant que P_s est constant dans cette plage de température.

4.2.1.3. Résultats expérimentaux à λ=850nm

Afin de compléter cette étude, nous avons mesuré les coefficients EO à λ=850 nm. Nous présentons ici les résultats obtenus sur les deux échantillons étudiés auparavant.

a) Mesure de r₁₃

Sur la figure 4.7 on présente un enregistrement typique obtenu sur le cristal de référence N°1 sous un champ appliqué de 143V.

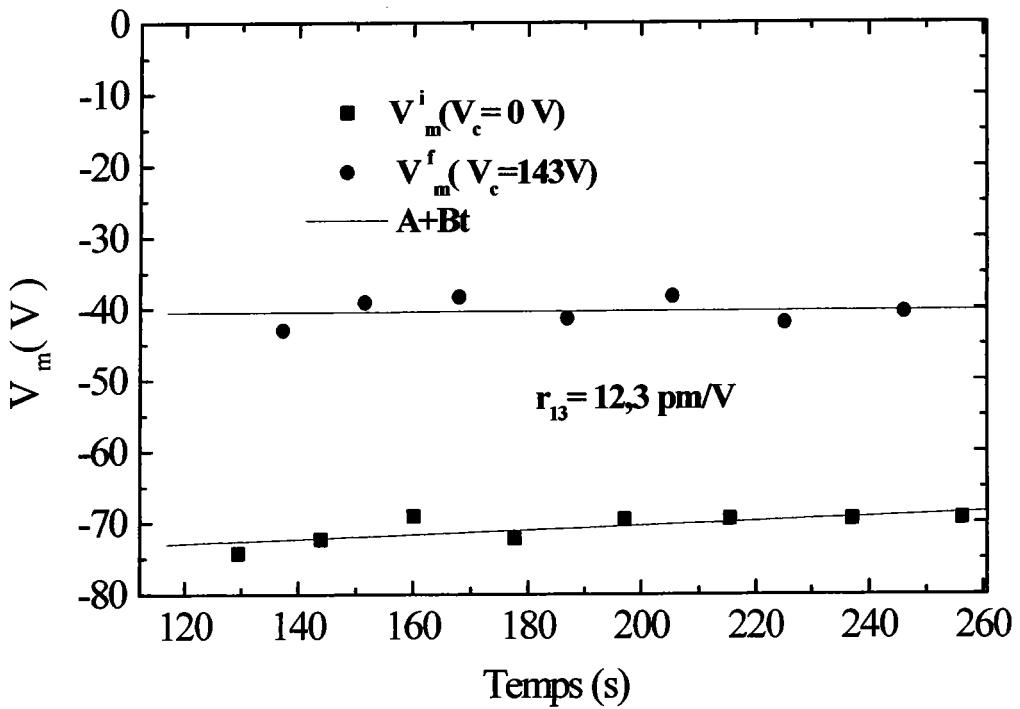


Figure 4. 7 : Mesure de r₁₃ pour l'échantillon N°1

L'écart obtenu entre les deux droites est de :

$$-45V \leq \Delta V_m \leq -42V$$

Le-coefficient EO r₁₃ = r₂₃ est calculé à partir de l'équation :

$$r_{13} = r_{13}^* + r_{13}^i = \frac{-e_z}{n_o^3 L_x V_z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_o - 1)}{n_o^3} d_{31}$$

Sans tenir compte de l'effet piézo-électrique, ce coefficient aurait une valeur de :

$$r_{13}^* = 12,3 \text{ pm / V.}$$

En tenant compte des coefficients piézo-électriques $d_{31} = -30,4 \text{ pm/V}$ (chapitre 2) et $n_o = 2,33$ on trouve :

$$r_{13} = r_{13}^* + r_{13}' = 12,3 \pm 6,4 \text{ pm/V}$$

La figure 4.8 représente les résultats obtenus sur le cristal N°2, en appliquant un champ $V_c = 197 \text{ V}$.

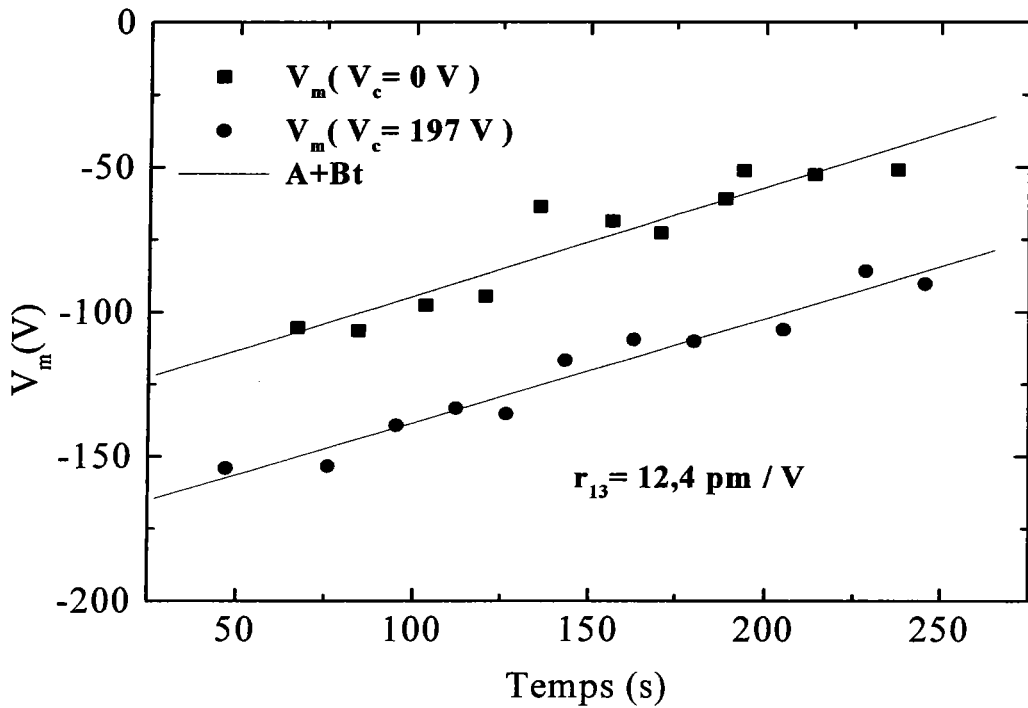


Figure 4.8: Mesure de r_{13} pour BaTiO₃ : Rh (N°2)

La différence de tension appliquée au modulateur dans ce cas est :

$$-35,9\text{V} \leq \Delta V_m \leq -32,2\text{V}$$

La valeur de ce coefficient est:

$$r_{13} = 12,4 + 6,4 \text{ pm/V}$$

b) Mesure de r_{33}

Un exemple d'enregistrement obtenu sur le cristal de référence N°1 sous une tension de 245 V est représenté sur la figure 4.9

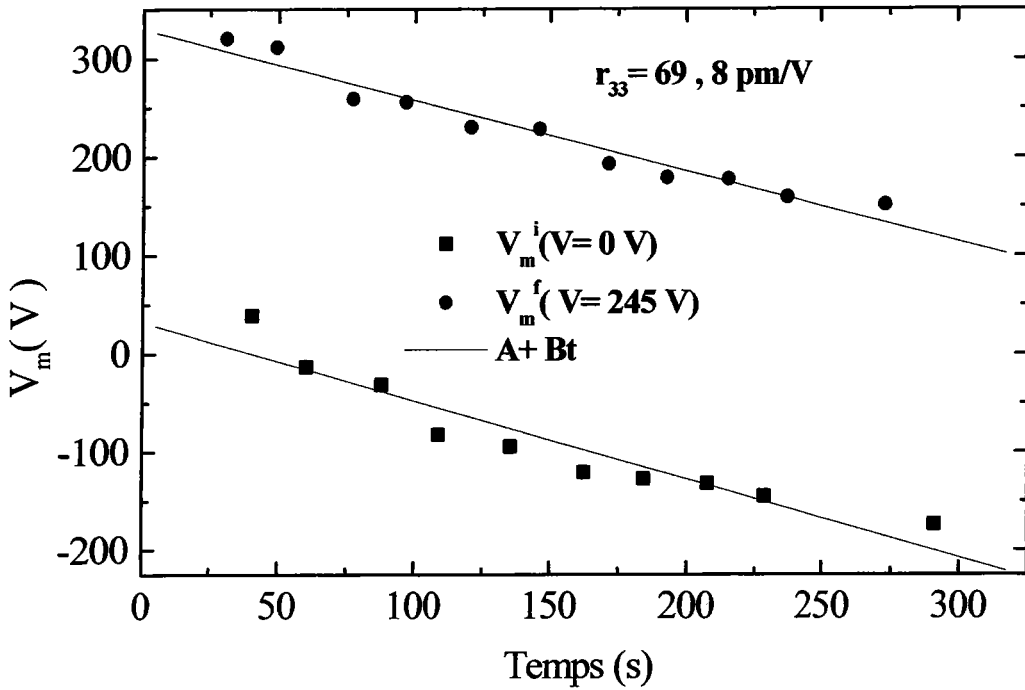


Figure 4. 9 : Exemple d'enregistrement lors de la mesure de r_{33} à $\lambda=850\text{nm}$

La différence ΔV_m obtenue dans ce cas est de :

$$297\text{V} \leq \Delta V_m < 317\text{V}$$

Le coefficient EO r_{33} est calculé à partir de l'équation :

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = \frac{-e_z}{n_e^3 L_x V_Z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_e - 1)}{n_e^3} d_{31}$$

La valeur totale du coefficient EO:

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = 69,8 \pm 6,4 \text{ pm/V}$$

Cette même étude a été faite également sur un autre échantillon N°2 (figure 4. 10), la valeur trouvée est :

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = 65,2 \pm 6,4 \text{ pm/V}$$

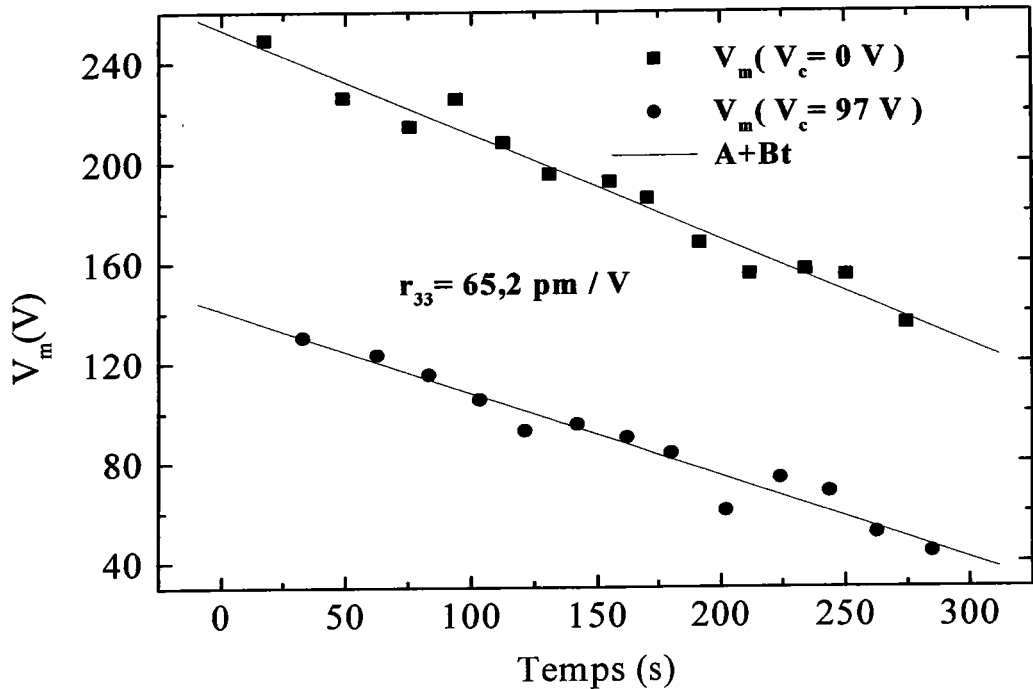


Figure 4. 10 : Exemple d'enregistrement lors de la mesure de r_{33} à $\lambda=850$ nm

4.2.1.4. Comparaison des coefficients EO en fonction de la longueur d'onde

Le tableau 4.5 donne les valeurs des coefficients EO r_{13} et r_{33} mesurés à la température ambiante et pour les deux longueurs d'ondes $\lambda=632,8$ nm et $\lambda=850$ nm., en tenant compte de l'effet piézo-électrique.

Coefficients EO (pm / V)	X 45 – 15 / 2		X 19 – 8 / 4	
	850 nm	632,8 nm	850 nm	632,8 nm
r_{33} (pm / V)	$69,8 \pm 6,4$	$94 \pm 6,3$	$65,2 \pm 6,4$	$108 \pm 6,3$
r_{13} (pm / V)	$12,3 \pm 6,4$	$14,9 \pm 6,1$	$12,4 \pm 6,4$	$15,4 \pm 6,1$

Tableau 4. 5 : Résumé des résultats r_{13} et r_{33} à $\lambda=850$ nm et $\lambda=632,8$ nm

L'analyse de ce tableau montre que les valeurs des coefficients EO restent équivalentes pour les deux cristaux BaTiO₃ : Rh (N°1, N°2) et qu'elles diminuent lorsque la longueur d'onde augmente.

Nos mesures permettent de vérifier que les coefficients EO ne dépendent pas du champ électrique appliqué

4.2.1.5. Problèmes rencontrés en appliquant le champ électrique statique dans les cristaux photoréfractifs et les solutions proposés

Les résultats obtenus sont très perturbés par les effets photoréfractifs. En effet, l'éclairage du cristal par un faisceau laser permet d'exciter les charges, elles se déplacent vers les électrodes créant un champ de charges d'espace s'opposant au champ appliqué.

Pour s'affranchir de ce problème, nous avons installé un éclairage homogène du cristal par une lampe blanche de puissance 20W, collimaté et placé au dessus du cristal.

La figure suivante présente les séries de mesure qui ont été effectuées sur r_{33} sous différentes conditions d'éclairage:

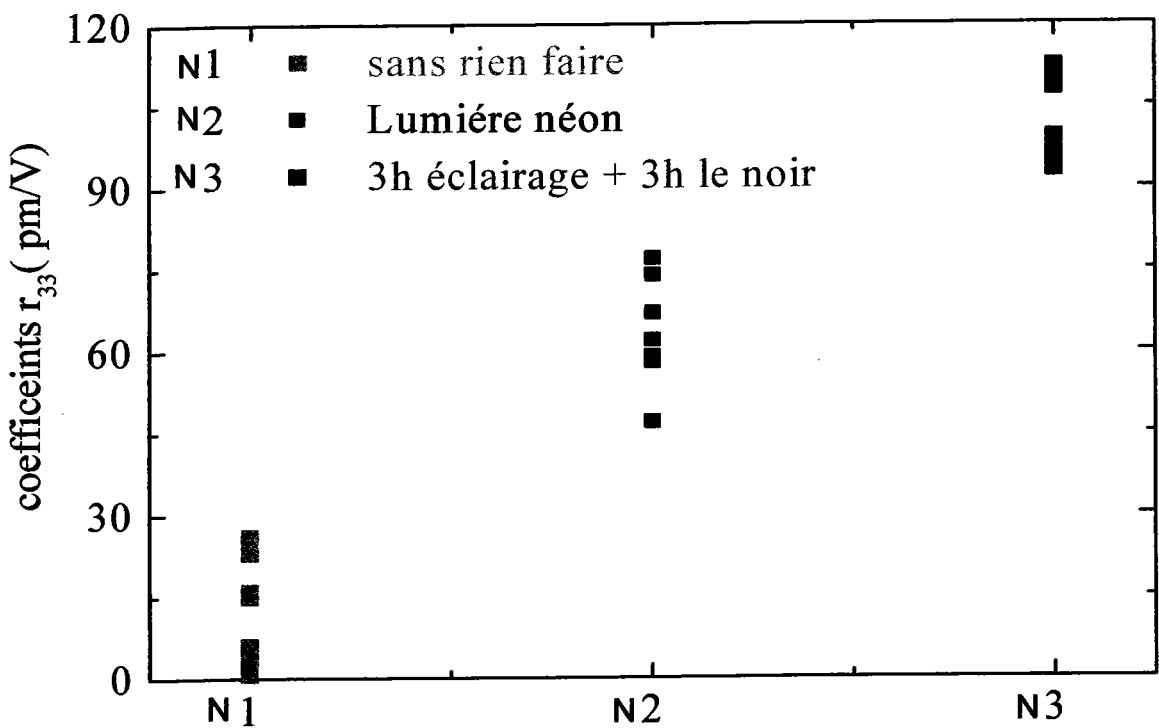


Figure 4.11: Traitement lumineux pour régénérer les cristaux photoréfractifs

N₁ donne les valeurs des coefficients r_{33} sans aucun traitement

N₂ présente les résultats lorsqu'on a laissé le cristal avec la lumière néon allumée

N₃ présente les résultats lorsqu'on a totalement éclairé le cristal par une lampe blanche homogène de 20 W et laissé par la suite le cristal dans le noir. Le but étant de stabiliser les charges.

On remarque que les coefficients obtenus dans ce dernier cas sont plus élevés par rapport aux autres cas.

Nous notons aussi que les valeurs obtenues dans ce cas sont reproductibles et les variations relevées rentrent dans la gamme d'incertitude qui est de 10 %. Ce qui n'est pas le cas avant de procéder à cette régénération des échantillons.

4.2.1.6. Validation de la technique par le cristal LiNbO₃

Ce nouveau banc de caractérisation a été testé sur un cristal de niobate de lithium (LiNbO₃). Afin de valider le protocole de mesure, les coefficients EO sont comparés avec ceux obtenus par d'autres techniques ainsi qu'avec les valeurs relevées dans la littérature.

Les coefficients EO sont mesurés à température ambiante ($\approx 18^\circ\text{C}$) par application d'un champ électrique statique sur des échantillons dont deux surfaces ont été recouvertes de 100 nm d'or afin de réaliser des électrodes.

La figure suivante représente un exemple d'enregistrement pour un cristal de niobate de lithium de dimensions ($L_x \times L_y \times L_z = 5,37 \times 9,75 \times 5,44 \text{ mm}$).

Les conditions expérimentales sont les suivantes:

- Tension de 900V appliquée suivant Z, soit un champ de 165 V/mm
- Propagation suivant X
- Polarisation selon Z

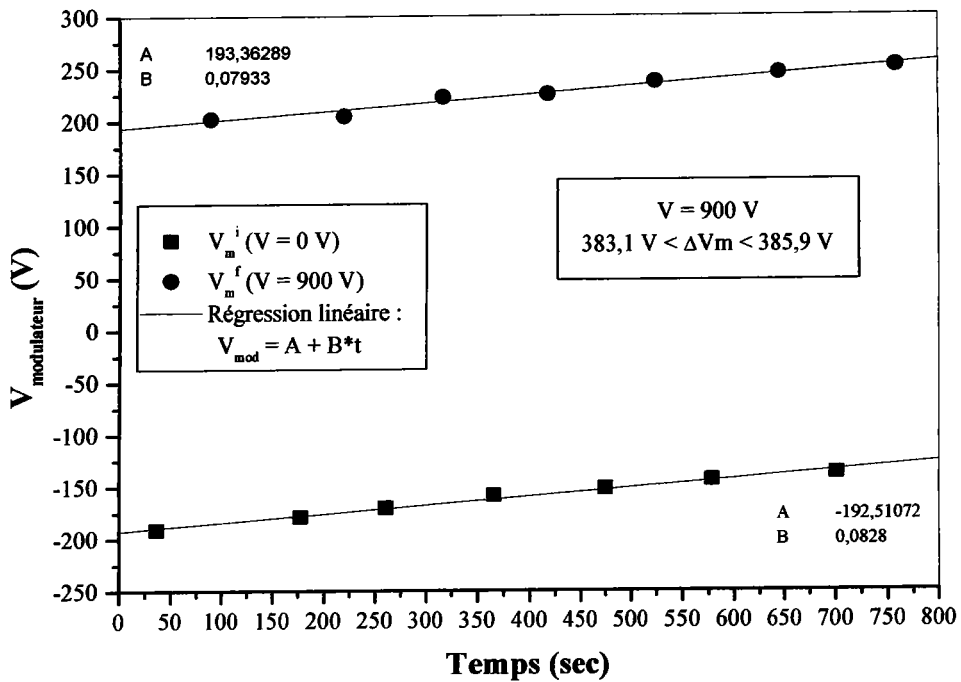


Figure 4.12: exemple d'enregistrement obtenu lors de la mesure r_{33} de LiNbO₃

t = 0 sec.		t = 800 sec.	
$r_{33}^* = 31,17 \text{ pm/V}$	$\Delta r_{33}^* = 0,43 \text{ pm/V} (\approx 1.4\%)$	$r_{33}^* = 30,96 \text{ pm/V}$	$\Delta r_{33}^* = 0,39 \text{ pm/V} (\approx 1.3\%)$
$r_{33}' = 0,19 \text{ pm/V}$	$\Delta r_{33}' = 0,02 \text{ pm/V} (\approx 10\%)$	$r_{33}' = 0,19 \text{ pm/V}$	$\Delta r_{33}' = 0,02 \text{ pm/V} (\approx 10\%)$

Tableau 4. 6: Résultats expérimentaux de mesure de r_{33} de LiNbO₃ obtenus à partir de l'enregistrement de la Figure 4.12

Ces résultats montrent qu'il existe une variation de la valeur de r_{33} entre le début et la fin de l'expérience provenant du fait que les droites (V_m^i et V_m^f) présentent des pentes légèrement différentes.

Il existe une dispersion des valeurs du coefficient EO apparent, ce qui nécessite de définir une incertitude statistique ou expérimentale qui est ici de l'ordre de 1.5%:

$$r_{33}^* = 31,5 \pm 0,5 \text{ pm/V}$$

Le coefficient r_{13} a également été mesuré pour le même cristal de LiNbO₃. Le tableau suivant résume les différentes valeurs obtenus comparées à celles de la littérature.

Coefficients EO	Nos mesures	[Hulme, 1969]	[Moses, 1978]
r_{13} (pm/V)	9,5	9,6	9,6
r_{33} (pm/V)	31,3	30,9	31

Tableau 4. 7: Résultats bibliographiques des coefficients EO du LiNbO₃

Ces comparaisons permettent de constater que nos mesures sont en bon accord avec les valeurs relevées dans la littérature.

La technique interférométrique de mesures de coefficients EO est donc validée sur les coefficients r_{13} et r_{33} de LiNbO₃.

Lors de toutes les expériences, il existe une dérive du signal au doublement de fréquence traduisant un déplacement du système d'interférences. Même si ce phénomène influe peu sur le résultat des mesures, il est intéressant d'en étudier l'origine.

4.2.1.7. Origine de la dérive des points expérimentaux

Ce phénomène, induit par les variations de chemins optiques dans les bras de l'interféromètre, peut s'expliquer par les effets de température sur les échantillons étudiés et le modulateur ainsi que sur l'air.

Concernant les cristaux EO, certains peuvent présenter des caractéristiques thermo-optiques importantes. La dépendance en température de leurs indices de réfraction peut alors être une des causes de cette dérive.

Lorsque l'interféromètre ne comporte que le modulateur EO, il est également possible d'observer ce phénomène. La figure suivante obtenus par P. Ney [P. Ney 98] retrace le suivi automatique du doublement de fréquence par compensation du modulateur EO.

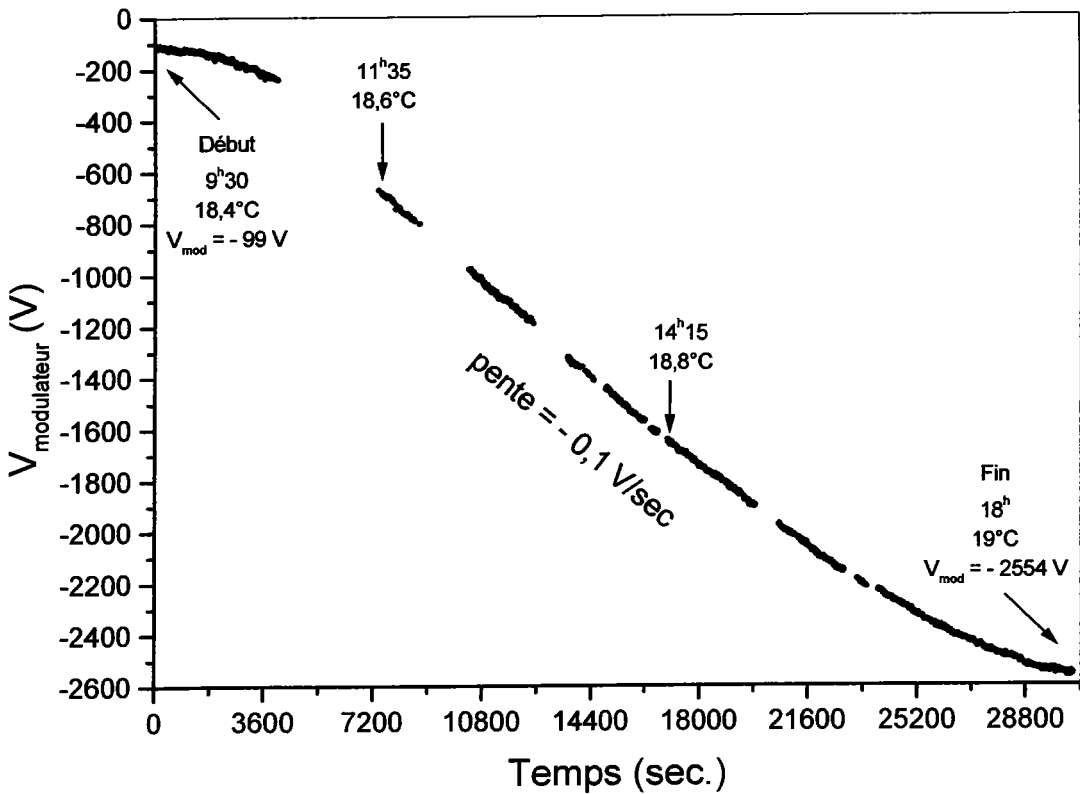


Figure 4. 13: Suivi de la dérive du système de franges en fonction du temps

Durant les 8 heures et demi de l'expérience, la température mesurée au voisinage du modulateur a variée de 0,6 °C. La compensation de la dérive du signal a nécessité une tension continue totale de 2450 V sur le modulateur.

Sachant que 400 V appliqués au modulateur entraîne une variation du chemin optique de $\frac{\lambda}{2}$, il est possible d'en déduire que sans compensation, la modification du chemin optique aurait été de l'ordre de 2 μm , soit une évolution de 3,3 μm par degré Celcius.

Cette dérive en fonction du temps peut être due à l'effet thermo-optique (Tableau 3. 1 paragraphe 3.2) dans le cristal (modulateur ou cristal étudié) ou bien à la déformation des miroirs sous l'effet de la chaleur

Cette mesure prouve également que la technique utilisée permet de stabiliser un interféromètre de Michelson. En effet, la compensation continue de la variation de chemin optique permet de maintenir le système sur une même position pendant toute la journée.

L'addition du four dans le montage interférométrique nous permet de stabiliser la température du cristal étudié mais pas du reste de l'interféromètre donc cette dérive continuera à être observée.

4.2.2. Mesure des coefficients EO r_{42} et r_c à partir du banc Sénarmont

4.2.2.1. Mesure de r_c

Pour mesurer le coefficient EO r_c , nous déposons des électrodes en laque d'argent sur les faces Z de l'échantillon à étudier. L'application d'un seul champ électrique alternatif d'amplitude élevée est « dangereuse » pour l'échantillon. En effet, ce champ peut faciliter l'apparition de domaines à 90° ou 180°, dont la présence est préjudiciable à la mesure des coefficients électro-optiques. Pour réduire le risque de « polydomainisation » on doit maintenir la polarisation spontanée dans le même sens et la même direction en superposant une tension continue V_{dc} à une tension alternative V_{ac} d'amplitude 200 V crête à crête et de fréquence 1KHz aux bornes de l'échantillon. Le montage optique est réglé pour travailler au point de fonctionnement correspondant au minimum de transmission (figure 3.6). A ce point de fonctionnement, le signal optique de sortie visualisé sur l'écran (signal modulé) a une fréquence double par rapport au signal électrique appliqué au cristal (signal modulant).

Il est à noter que la moindre variation de température [M. Aillerie 1991], se traduit par un déplacement du point de fonctionnement et donc par une dissymétrie du signal modulé. Une température stable de l'échantillon correspond donc à une stabilité et à une parfaite symétrie des alternances du signal modulé.

La méthode Sénarmont consiste à relever l'amplitude crête à crête du signal modulé i_{pp} ($2J_\omega$) et l'intensité ($I_{max} - I_{min}$) au point de fonctionnement M_1 (figure 3. 6) en fonction de l'angle de l'analyseur et de la tension V_{pp} appliquée.

Une propagation suivant l'axe Y et un champ appliqué suivant Z (montage r_c indiqué sur la figure 4. 11) permet de mesurer $r_{eff} = r_c$.

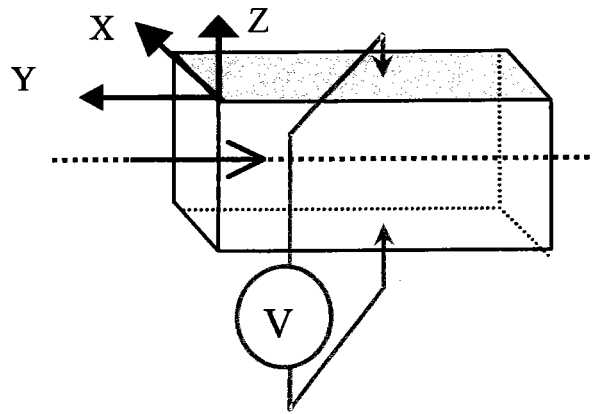


Figure 4. 14 : Configuration adoptée pour mesurer le coefficient r_c

a) Résultats de r_c à $\lambda=632,8$ nm

Nous présentons sur la figure 4.12 le relevé de l'intensité crête à crête $i_{pp}(2J_\omega)$ et celui de l'intensité statique en fonction de l'angle de l'analyseur pour une fréquence du champ électrique appliqué égale à 1 KHz.

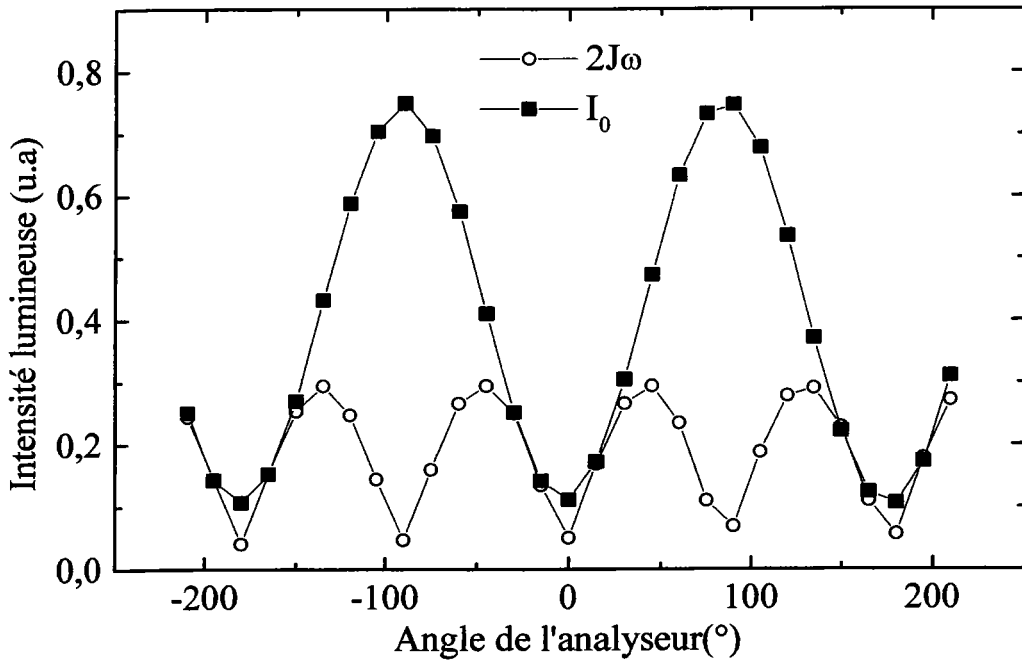


Figure 4. 15 : Mesure de r_c à $\lambda=632,8$ nm pour BaTiO₃ : Rh

On remarque une parfaite symétrie des alternances du signal modulé témoin de la stabilité de température pendant la mesure. D'après l'équation (3. 12), on trouve une valeur de r_c égale à :

$$r_c = 90 \text{ pm / V}$$

b) Résultats à $\lambda=850 \text{ nm}$

En utilisant la même méthode, nous déterminons r_c à $\lambda = 850 \text{ nm}$ (figure 4.13). En mesurant I_{\max} , I_{\min} du signal I_0 et de tension crête à crête de signal modulé $2J_0$. On trouve :

$$r_c = 42 \text{ pm/V}$$

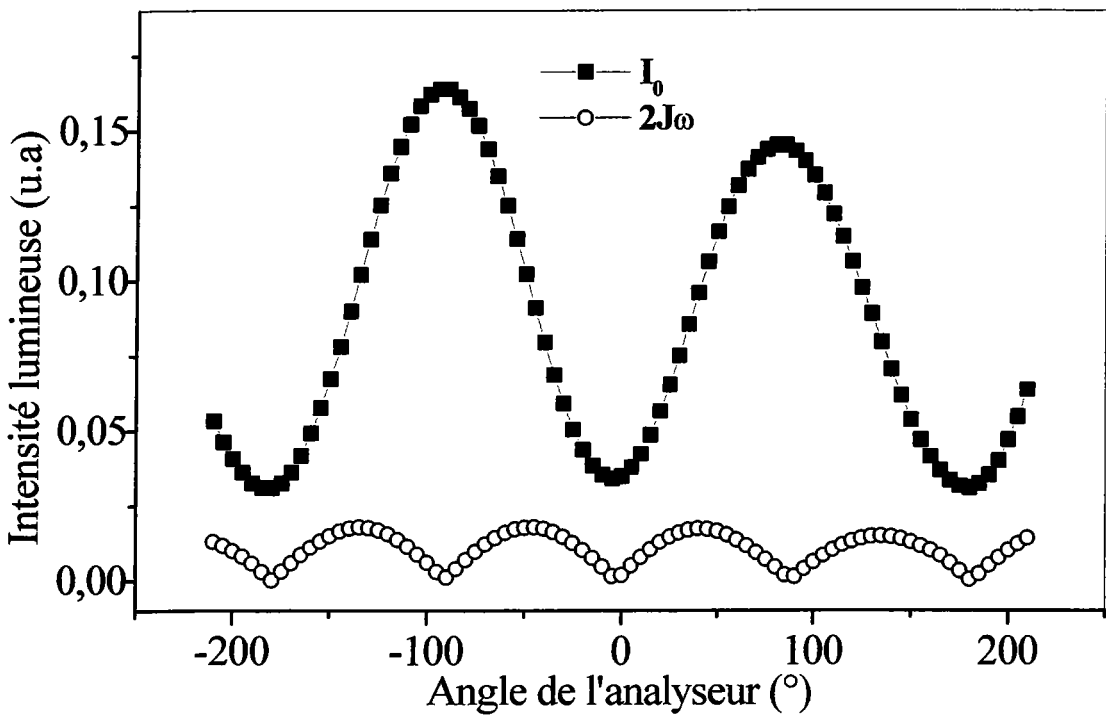


Figure 4. 16 : Mesure de r_c pour BaTiO₃: Rh

On remarque une diminution de ce coefficient r_c lorsque l'on passe de $\lambda=632, 8 \text{ nm}$ ($r_c = 90 \text{ pm/V}$) à $\lambda=850 \text{ nm}$ ($r_c = 42,5 \text{ pm/V}$).

4.2.2.2. Mesure de r_{42}

a) Conditions expérimentales

Le champ appliqué, suivant la direction X, est la superposition aux bornes de l'échantillon, d'une tension continue V_{dc} et d'une tension alternative V_{ac} d'amplitude 200 V crête à crête et de fréquence 1 kHz. L'application d'un champ dans cette direction perpendiculaire à la

direction de polarisation peut facilement modifier l'état monodomaine du cristal par apparition de domaine à 90°. L'échantillon utilisé est resté monodomaine à la suite de ces mesures. Le faisceau laser se propage dans le plan (Y Z), à un angle θ de direction Z (montage r_{42} indiqué sur la figure 4. 14).

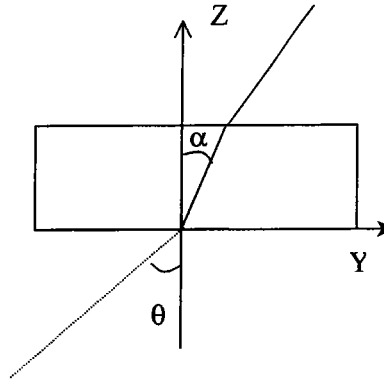


Figure 4. 17 : Configuration utilisée pour mesurer le coefficient r_{42}

Le coefficient effectif est déduit à partir de l'équation (3.12 page 94) ceci pour chaque angle θ . L'angle interne α est déterminé à partir de l'angle θ extérieur selon les lois de Descartes :

$$\sin(\theta) = n_{\text{eff}} \sin(\alpha)$$

où

$$\frac{1}{n_{\text{eff}}^2} = \frac{1}{n_{yz}^2} = \frac{\cos^2 \alpha}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \alpha}{n_e^2}$$

Lors d'application d'un champ électrique suivant x ou y la biréfringence induite vaut :

$$\Delta n(E) = -1/2 n_{\text{eff}}^3 r_{\text{eff}} E_y$$

avec :

$$n_{\text{eff}}^3 r_{\text{eff}} = n_{yz}^3(\alpha) r_{42} \sin 2\alpha$$

b) Résultats expérimentaux

Par la mesure des intensités maximales de la fonction de transfert I_{max} et I_{min} et de l'intensité du faisceau transmis i_{pp} au point de fonctionnement M_1 (figure 3. 6), nous déduisons un coefficient effectif r_{eff} donné par l'équation (3.5) pour chaque angle interne α dans le plan

(Y,Z) puis nous traçons la courbe r_{eff} en fonction de $\sin(2\alpha)$. La figure 4.15 illustre le résultat obtenu. La variation de r_{eff} avec $\sin(2\alpha)$ est linéaire et la pente de la droite est proportionnelle au coefficient électro-optique r_{42} , sa valeur vaut :

$$r_{42} = 732 \pm 85 \text{ pm/V}$$

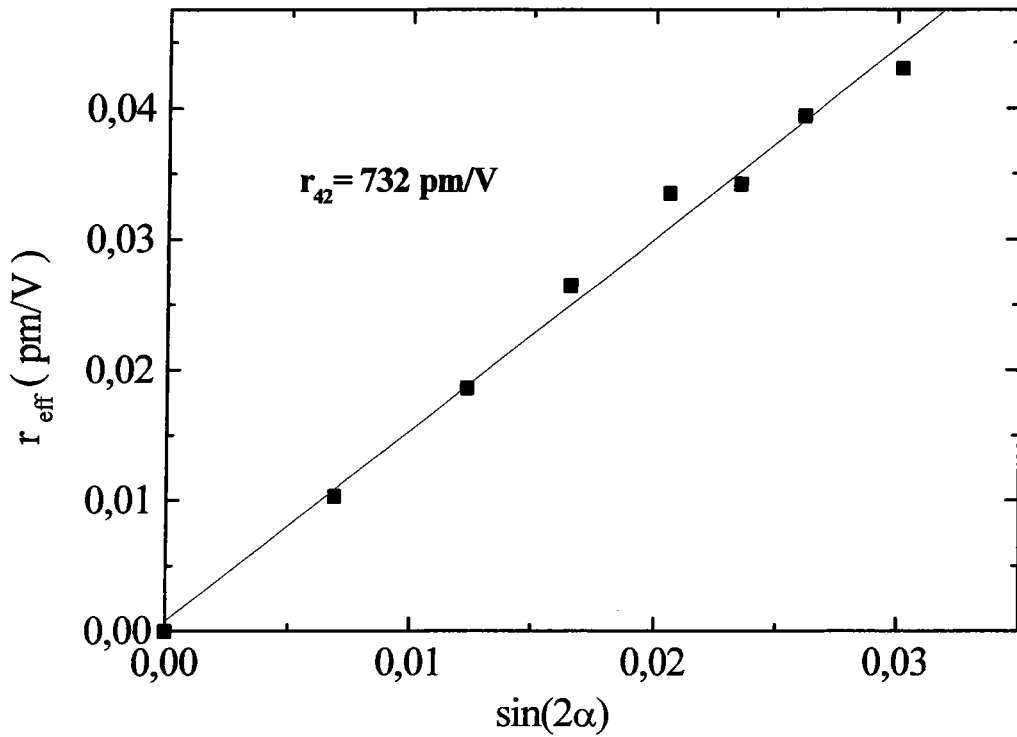


Figure 4. 18: Mesure de r_{42}

Ce résultat montre que le coefficient r_{42} est plus faible dans le cas de BaTiO₃ : Rh par rapport aux valeurs publiées pour le BaTiO₃ pur ($r_{42} = 1000 \text{ pm/V}$) à $\lambda = 632,8 \text{ nm}$.

4.2.3. Analyse et discussion des résultats

4.2.3.1. Comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes

A partir des valeurs de r_{13} et r_{33} obtenus par la méthode interférométrique, il est possible de calculer r_c selon l'équation (2.20) et de le comparer avec la valeur r_c mesuré par le montage de Sénarmont à 1 KHz. L'ensemble des résultats est rappelé dans le tableau (4.6).

	r_{33} (pm /V)	r_{13} (pm /V)	r_c calculé (pm /V)	r_c mesuré (pm /V)
$\lambda=633$ nm	108	15,4	91,9	90
$\lambda=850$ nm	65,2	12,4	52	42

Tableau 4. 8: Comparaison entre les coefficients r_c obtenus par les deux méthodes pour BaTiO₃ : Rh

On peut constater qu'il n'existe pas de dispersion aux basses fréquences. En effet les résultats obtenus avec la technique statique (montage interférométrique) ou dynamique à la fréquence 1 kHz (montage Sénarmont) sont identiques (en tout cas l'écart entre les valeurs est compris dans l'incertitude de mesure). Ces résultats confirment la faible valeur obtenue pour r_c mesurés par montage Sénarmont et permet de considérer que les valeurs de r_{13} et r_{33} mesurées par interférométrie sont correctes. Ceci tend à démontrer la qualité de nos échantillons et la maîtrise des procédures de mesures. En effet, l'automatisation complète du banc de mesure permet des mesures rapides et donc de s'affranchir des erreurs dues à des champs de charges d'espace qui s'installent dans le cristal, ainsi que des erreurs dues à des variations de paramètres physiques durant la mesure comme par exemple la température.

4.2.3.2. Tableau récapitulatif

Le tableau suivant résume l'ensemble des résultats des mesures pour BaTiO₃: Rh (N°1) ainsi que celles provenant de la littérature pour BaTiO₃ pur.

Coefficient EO (pm / V)	BaTiO ₃ : Rh (nos mesures)		BaTiO ₃ : pur (Valeurs reportés de la littérature)	
	632,8 nm	850nm	632,8 nm	850 nm
r_{33} (pm /V)	94 ± 9,4	69,8 ± 7	105 ± 10 [M. Zgonik 94]	73 [P. Jullien 92]
r_{13} (pm / V)	14,9 ± 1,5	12,3 ± 1,2	8 ± 2 [M. Zgonik 94]	8,9 [P. Jullien 92]
r_c (pm/V) (mesurés)	90 ± 9	42 ± 4,2	90 [F. Abid 92]	
r_{42} (pm/V)	712 ± 71	230 ± 23	1300 ± 100 [F. Abid 92]	1000 [P. Jullien 92]

Tableau 4. 9: Valeurs des coefficients EO mesurées pour BaTiO₃ :Rh et BaTiO₃ pur à des longueurs d'onde 632,8 nm et 850 nm

Les coefficients électro-optiques r_{13} , r_{33} et r_c du BaTiO₃ :Rh restent comparables à ceux du titanate de baryum pur publiées antérieurement [M. Zgonik 94], [F. Abid 94] et [P. Jullien 92] à deux longueurs d'onde. Les écarts avec les cristaux ne sont pas significatifs en ce concerne les trois premiers coefficients électro-optiques. Les écarts remarquables peuvent être dus à de nombreux facteurs tels que la préparation des échantillons, cristallogénèse. A l'opposé, le coefficient r_{42} est deux fois plus élevé dans BaTiO₃ que dans BaTiO₃:Rh dans le visible et 4 fois plus fort dans BaTiO₃ que dans BaTiO₃ : Rh dans l'infrarouge

4.2.3.3. Analyse du comportement en fréquence du coefficient EO r_{42}

Pour mesurer le coefficient EO en fonction de la fréquence à la longueur d'onde $\lambda=632,8$ nm, nous avons fait un balayage en fréquence du signal de modulation de 1 kHz à 1MHz correspondant à la limite des appareils de mesure à notre dispositions.

La Figure 4.16 rapporte le comportement du coefficient r_{42} en fonction de la fréquence de modulation. On remarque que ce coefficient est pratiquement constant jusqu'à 200 kHz ; au delà, on observe des pics correspondant aux résonances piézo-électriques. Le coefficient électro-optique mesuré r_{42} entre 1 kHz et 200 Hz est donc un coefficient libre r_{ijk}^T .

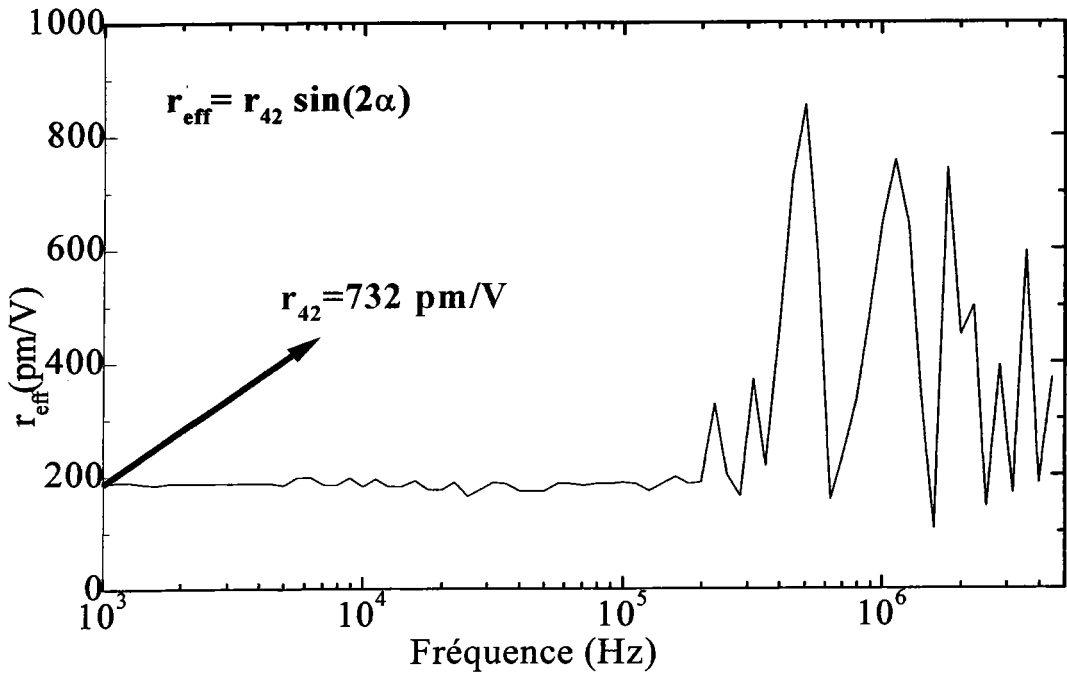


Figure 4. 19 : Mesure de r_{42} en fonction de la fréquence

4.3. Mesure des coefficients EO de BCT: Rh

Nous avons étudié le cristal du BCT dopé à 1000 ppm de rhodium. Le BCT : Rh appartenant au même groupe ponctuel que le BaTiO₃, ses tenseurs EO et PE sont donc les mêmes.

Les caractéristiques géométriques du cristal utilisé pour la mesure des coefficients r_{13} et r_{33} sont présentés ci-dessous.

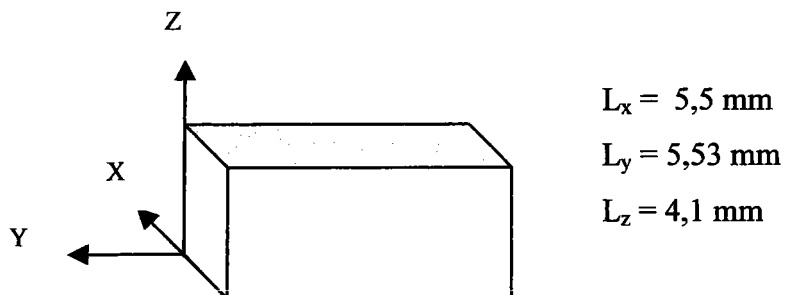


Figure 4. 20 : Caractéristiques des cristaux BCT : Rh utilisés lors des mesures des coefficients EO

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

Les différentes configurations expérimentales susceptibles d'être utilisées pour obtenir les coefficients EO r_{13} et r_{33} sont les mêmes que celles du BaTiO₃ : Rh.

Comme pour le cristal dopé rhodium, nous avons réalisé des mesures à différentes longueurs d'onde (632,8 nm et 850 nm).

Le tableau (4.8) résume les différentes valeurs de la contribution piézo-électrique pour les deux longueurs d'onde, en considérant les résultats du chapitre 3 (indices de réfraction et coefficient piézo-électrique pour BCT).

EO (pm/V)	r_{13}	r_{33}
$\lambda=632,8$ (nm)	8,75	8,94
$\lambda=850$ (nm)	8,99	9,18

Tableau 4. 10: Valeurs des coefficients correctifs r' se rapportant à l'effet PE inverse

4.3.1. Résultats expérimentaux à $\lambda=632,8$ nm

a) Mesure r_{13}

Les conditions expérimentales permettant de mesurer r_{13} ($\equiv r_{23}$) sont :

- Tension de 247 V appliquée suivant Z
- Propagation du faisceau laser suivant X
- Polarisation selon Y

La figure 4.18 représente les courbes obtenus sur le cristal de référence BCT :Rh (N°3).

Le coefficient r_{13} déterminé par cette expression est :

$$r_{13} = r_{13}^* + r'_{13} = \frac{-e_z}{n_o^3 L_x V_z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_o - 1)}{n_o^3} d_{31}$$

L'écart de tension appliquée sur le modulateur (figure 4.18) :

$$73,2V \leq V_m^f - V_m^i \leq 73,4V$$

La valeur moyenne obtenue de ce coefficient est égale à :

$$r_{13}^* = 21,8 \pm 8,75 \text{ pm / V}$$

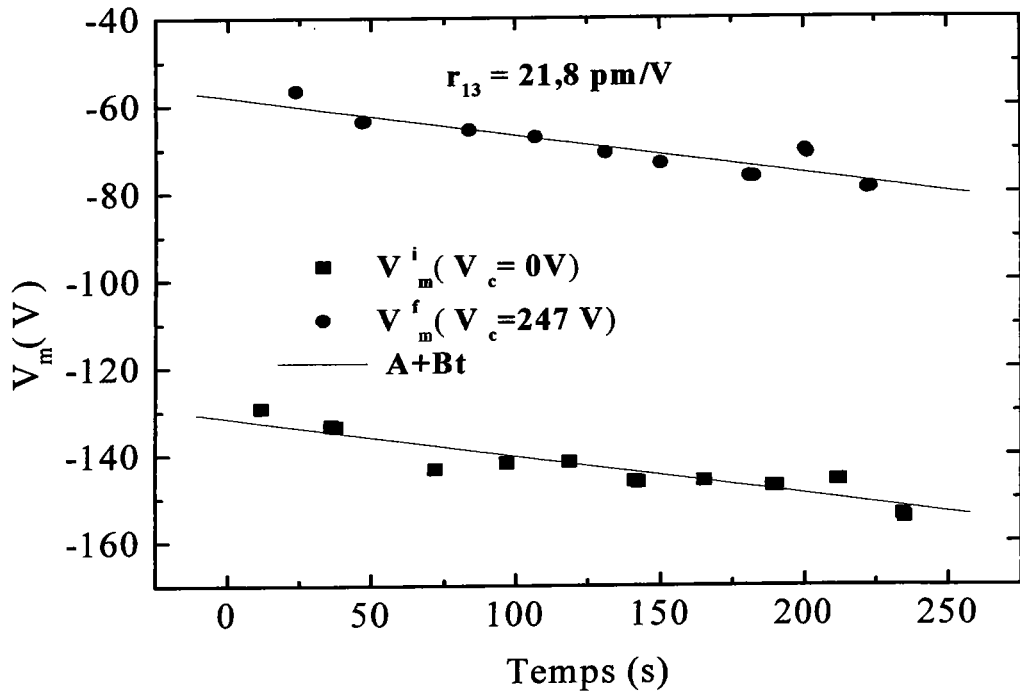


Figure 4. 21 : Mesure r_{13}

b) Mesure r_{33}

La Figure 4.19 représente les courbes obtenus pour mesurer le coefficient r_{33} . Les conditions expérimentales pour cette configuration sont :

- tension de 247 V appliquée suivant Z
- propagation du faisceau laser suivant X
- polarisation selon Y

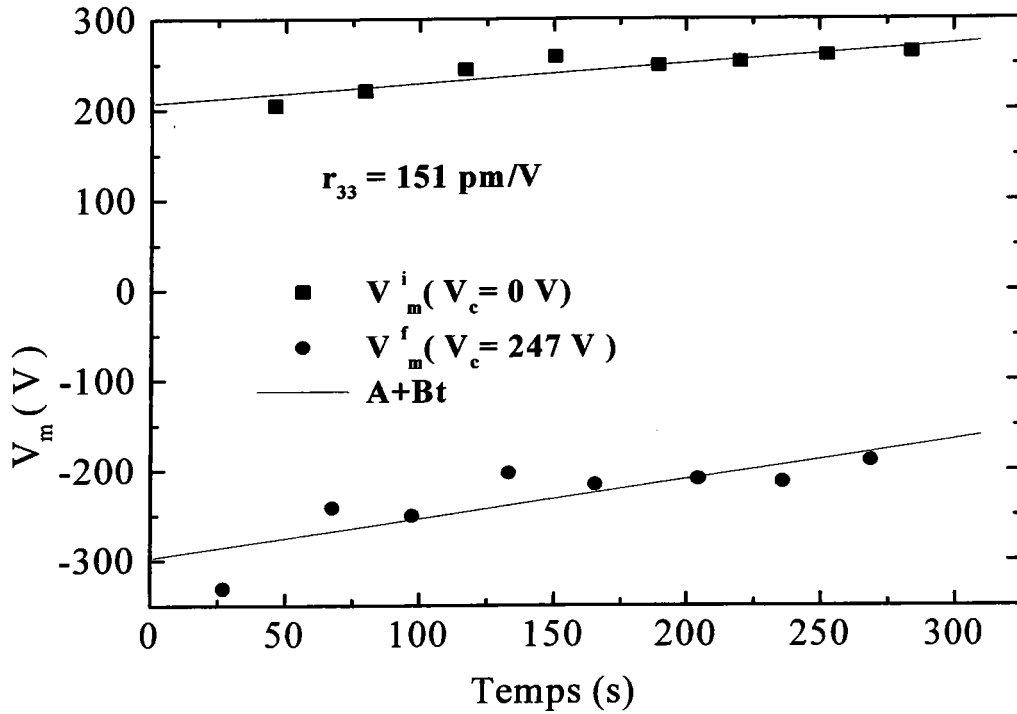


Figure 4. 22: Mesure r_{33} pour BCT : Rh

Le coefficient r_{33} déterminé par cette expression est :

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = \frac{-e_z}{n_e^3 L_x V_z} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n_e - 1)}{n_e^3} d_{31}$$

La figure 4.19 représente l'écart de tension appliquée sur le modulateur :

$$-504\text{V} \leq V_m^f - V_m^i \leq -451\text{V}$$

La valeur moyenne obtenue de ce coefficient est égale à :

$$r_{33}^* = 151\text{pm/V}$$

En tenant compte de $d_{31} = -43$ et $n_e = 2,35$ (données de chapitre 3 pour le BCT), le coefficient totale est :

$$r_{33} = r_{33}^* + r_{33}' = 151 \pm 8,9\text{pm/V}$$

4.3.2. Résultats expérimentaux à $\lambda=850 \text{ nm}$

a) Mesure de r_{13}

La figure 4.20 correspond à un exemple d'enregistrement obtenu sur le cristal de référence BCT: Rh (N°3).

Les conditions expérimentales permettant de mesurer r_{13} ($\equiv r_{23}$) sont :

- Tension de 356 V appliquée suivant Z
- Propagation du faisceau laser suivant X
- Polarisation selon Y

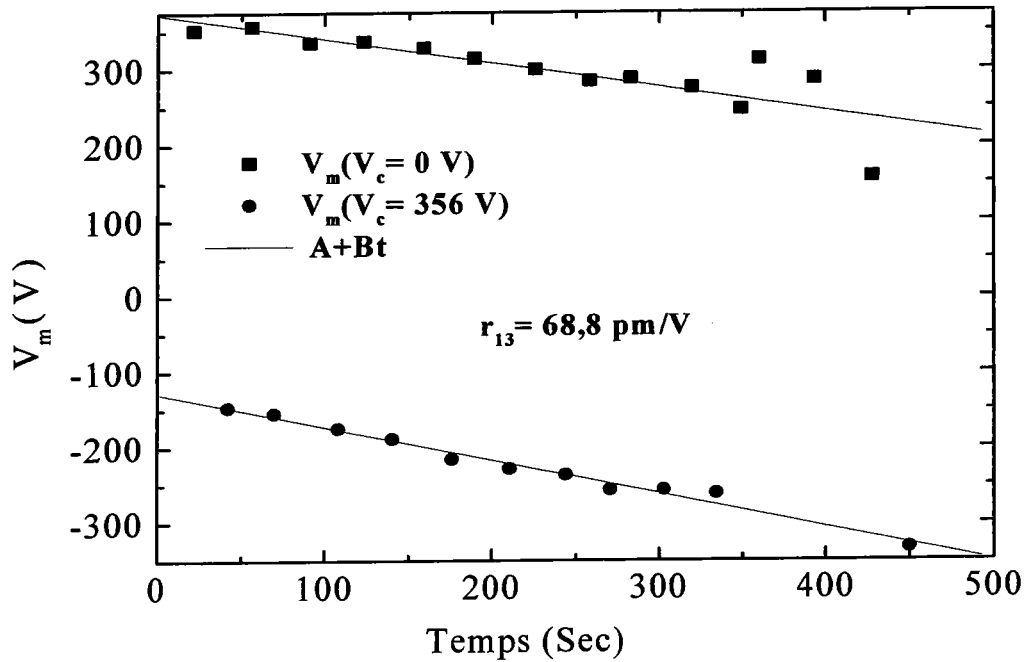


Figure 4. 23 : Mesure de r_{13} pour BCT :Rh

La figure 4. 20 représente l'écart de tension appliquée sur le modulateur :

$$-501V \leq V_m^f - V_m^i \leq -550V$$

La valeur moyenne obtenue de ce coefficient est égale à :

$$r_{13}^* = 68,8 \pm 8,99 \text{ pm/V}$$

b) Mesure de r_{33}

La figure 4. 21 correspond à un exemple d'enregistrement obtenu sur le cristal de référence BCT :Rh (N°3). Les conditions expérimentales permettant de mesurer r_{33} sont :

- tension de 237 V appliquée suivant Z
- propagation du faisceau laser suivant X
- polarisation selon Y

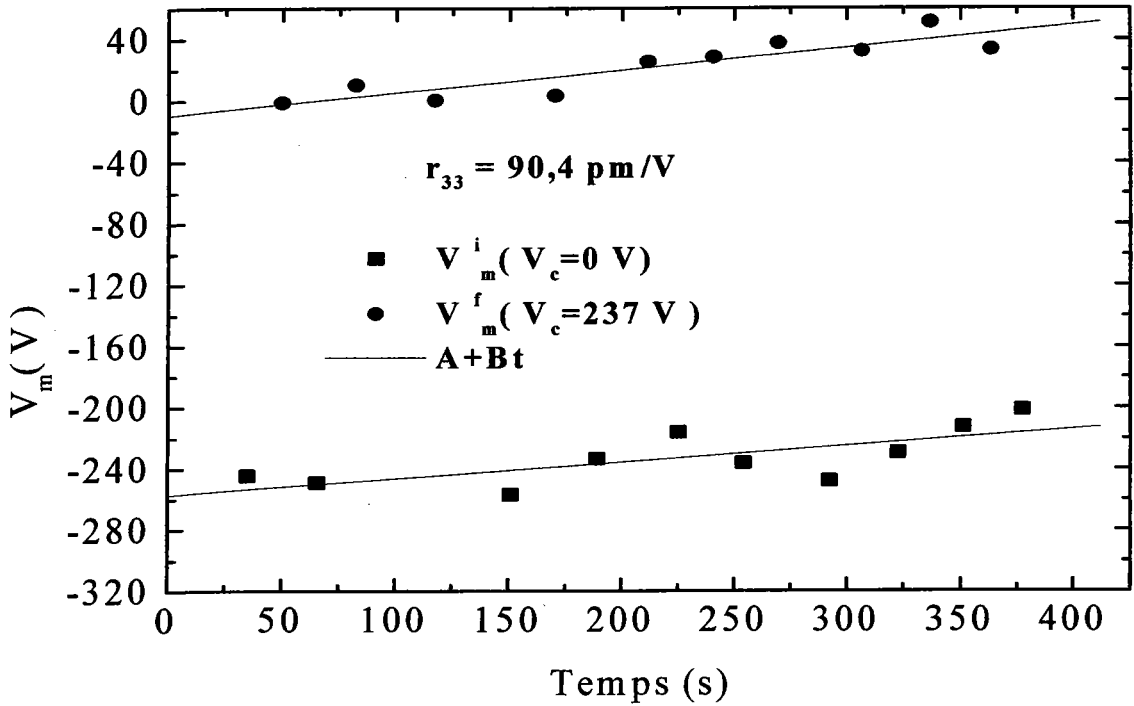


Figure 4. 24: Mesure de r_{33}

L'écart de tension appliquée sur le modulateur est:

$$-261,7\text{V} \leq V_m^f - V_m^i \leq -247,6\text{V}$$

La valeur moyenne obtenue de ce coefficient est égale à :

$$r_{33} = 90,4 \pm 9,1 \text{ pm/V}$$

4.3.3. Tableau récapitulatif

Le tableau 4.9 récapitule les valeurs des coefficients EO obtenus pour les deux longueurs d'onde pour BCT dopé rhodium ainsi que les valeurs de BCT données par Kuper [C. Kuper 98] à $\lambda=514,5 \text{ nm}$

Coefficients EO (pm / V)	BCT : Rh		BaTiO ₃ : Rh		BCT
	(nos mesures)		(nos mesures)		C. Kuper (98)
	850 nm	632,8 nm	850 nm	632,8 nm	514,5 nm
r ₃₃ (pm / V)	90,4	151	69,8	94	140
r ₁₃ (pm / V)	68,8	21,5	12,3	14,9	36

Tableau 4. 11 : Valeurs des coefficients EO mesurées pour BCT: Rh comparées avec BCT reportés dans la littérature

On conclut que les coefficients r₁₃ et r₃₃ obtenus pour BCT : Rh sont très élevés comparés à ceux obtenus pour BaTiO₃ : Rh et BCT pur.

La valeur du coefficient r₁₃ dans BCT : Rh à λ=632,8 nm paraît faible, notamment compte tenu de la dispersion attendue des coefficients EO. Néanmoins cette valeur n'est pas en contradiction avec les résultats de Kuper qui donne sur BCT une valeur de 36 pm/V à λ=514,5 nm.

5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons utilisé deux méthodes de caractérisation différentes (interférométrie et Sénarmont) pour mesurer séparément les coefficients électro-optiques r₁₃, r₃₃, r_c et r₄₂ et étudier leurs variations avec la longueur d'onde du laser, la température et la fréquence du champ électrique appliqué (dans le cas de r₄₂).

Ces résultats sont intéressants à deux titres, d'une part, ils ont permis de mettre en évidence les différences qui existent entre le BaTiO₃ et son dérivé ; d'autre part, ils apportent, pour la première fois, les valeurs des coefficients EO pour les cristaux dopés rhodium (BaTiO₃ : Rh et BCT: Rh). les points suivants sont à noter:

- Le dopage en rhodium ne semble pas affecter les coefficients r₁₃, r₃₃ et r_c de manière notable. Par contre la valeur du coefficient r₄₂ se trouve considérablement diminuée d'un facteur 2 dans le visible et d'un facteur 4 dans l'infrarouge.
- Le coefficient r₃₃ est fortement dépendant de la température. Cette variation est comparable à l'évolution de la constante diélectrique ε₃₃ en fonction de la température.

Chapitre IV: Effet électro-optique des cristaux photoréfractifs dopés Rh (BaTiO₃ et BCT)

- Les coefficients EO r_{13} et r_{33} pour BCT dopé rhodium (BCT : Rh) sont élevés par rapport au BaTiO₃, BaTiO₃ : Rh et BCT pur. En effet, nous avons montré que les deux premiers coefficients EO r_{13} et r_{33} sont élevés dans le BCT: Rh ($r_{13} = 21$ pm/V, $r_{33} = 151$ pm/V à $\lambda=632,8$ nm et $r_{13} = 68,8$ pm/V, $r_{33} = 90,4$ pm/V à $\lambda=850$ nm).

Conclusion générale

Conclusion générale

Ce travail de thèse fournit des résultats nouveaux concernant l'influence du rhodium sur les propriétés linéaires (absorption, indice de réfraction et constantes diélectriques) et les effets électro-optiques des cristaux BaTiO₃ et BCT obtenus par la méthode de croissance TSSG.

L'étude expérimentale de ces cristaux dopés rhodium apporte des données précises sur l'influence de ce dopant. Nous avons pu, par comparaison de nos résultats avec ceux reportés dans la littérature sur des cristaux purs, tirer les conclusions suivantes:

- Le dopage au rhodium influence fortement le profil des spectres d'absorption. En effet, une bande d'absorption bien marquée et large apparaît dans le visible ($\lambda=652$ nm), pour les spectres des cristaux dopés; on note aussi une anisotropie significative d'absorption entre les coefficient d'absorption ordinaire (α_o) et extraordinaire (α_e).

- L'étude cartographique de l'absorption à $\lambda=632,8$ nm montre que la concentration de dopant n'est pas homogène, ou bien que l'état de valence du rhodium n'est pas homogène.

- La mesure des coefficients de réflexion en fonction de l'angle d'incidence nous a permis de déterminer les indices de réfraction de nos échantillons: nous avons pu constater que le rhodium affecte les valeurs des indices ordinaire et extraordinaire et la biréfringence pour BaTiO₃ dopés rhodium par rapport au BaTiO₃ pur. Nous avons aussi relevé une diminution de ces indices lorsque la longueur d'onde augmente.

Dans la partie dédiée à la caractérisation piézo-électrique et électro-optique des échantillons, nous avons déterminé le coefficient piézo-électrique d_{31} et les coefficients électro-optiques:

- r_{13} et r_{33} en utilisant un montage interférométrique.

- r_c et r_{42} en utilisant un montage Sénarmont.

Les résultats les plus marquants sont les suivants:

- Le dopage en rhodium ne modifie pas les coefficients électro-optiques r_{13} , r_{33} et la combinaison de r_{13} et r_{33} appelée r_c , par contre la valeur du coefficient r_{42} dépend fortement du dopant.

- Les coefficients électro-optiques dépendent de la longueur d'onde, leurs valeurs décroissent lorsque l'on passe du visible à $\lambda=632,8$ nm au proche infrarouge à $\lambda=850$ nm.

Conclusion générale

- Les coefficients d_{31} et r_{33} augmentent avec la température et les courbes obtenues ont la même allure que celles de la constante diélectrique ϵ_{33} . Un modèle simple nous a permis d'expliquer qualitativement ces similitudes.
- La valeur du coefficient r_c obtenue par les deux méthodes confirme la fiabilité des procédures de mesure pour ces cristaux photoréfractifs.

En ce qui concerne les échantillons de BCT dopés rhodium, les valeurs obtenues sont supérieures à celles obtenues pour BaTiO_3 pur. En effet, nous avons montré que les coefficients électro-optiques r_{13} et r_{33} sont plus élevés dans le BCT : Rh à $\lambda=850$ nm ($r_{13} = 68,8$ pm/V, $r_{33} = 90,4$ pm/V) que dans le BaTiO_3 pur ($r_{13} = 8,9$ pm/V, $r_{33} = 73$ pm/V). Les valeurs trouvées en infrarouge sont largement suffisantes pour permettre des applications intéressantes et efficaces dans l'infrarouge

Notre étude a montré que les propriétés optiques dépendent fortement de la nature et de la qualité des échantillons utilisés (taux et type de dopage). En conséquence, on peut, par un choix du matériau, de la température et de la longueur d'onde lumineuse, optimiser les coefficients électro-optiques intervenant directement dans l'effet photoréfractif qu'on souhaite mettre en application.

Pour les applications de type gyroscope à fibre optique à miroir à conjugaison de phase où les matériaux doivent être actifs dans le domaine infrarouge, le BaTiO_3 dopés rhodium est un bon candidat. Cependant ce matériau présentant une transition de phase à 10°C , le rendant inexploitable pour des utilisations industrielles visés, le dopage au calcium permet de déplacer cette transition de phase vers les températures plus basses. Le dopage au calcium n'empêche pas (au contraire) la potentialité d'utilisation du matériau. Il nous paraît donc important d'étudier, dans l'avenir, les variations des coefficients EO pour BCT: Rh en fonction de la température plus basse, en fonction de la fréquence et pour les autres configurations.

Références bibliographiques

- [**A. Ashkin 66**] : A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein and K. Nassau, (Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3) Applied. Physics. Letters. 9, pp 72-74 (1966).
- [**A. Maillard 89**] : A. Maillard (Préparation après croissance d'échantillons monodomains de BaTiO_3 en vue d'utilisation optique. Mesures holographiques sous champ électrique appliqué) Thèse 1998 de Dijon.
- [**A. R. Johnston 65**] : A.R. Johnston, J.M. Weingart, (Determination of the low- frequency lineaire electro-optique), J. Opt. Soc. Am. 55,pp 828- (1965).
- [**A. R. Johnston 71**] : A. R. Johnston, (Dispersion of Electro-optic Effect in BaTiO_3), Applied physics. 42, pp 3501-3505 (1971).
- [**A. Yariv 84**] : A. Yariv, (Optical waves in crystals. Propagation and control of laser radiation. Wiley series in pure and applied optics) Wiely- Interscience, Stanford University (1984).
- [**B. A. Wechsler 94**] : B.A. Wechsler, M. B. Klein, C. C. Nelson, and R. N. Schwartz, (Spectroscopic and photorefractive properties of infrared-sensitive rhodium-doped barium titanate) Optics Letters. 19, pp 536-538 (1994).
- [**A. J. Moses 78**] : A. J. Moses, "the practising scientist'shandbook", Van Nosttrand Reinhold, London, (1978).
- [**C. Kuper 97**] : Ch. Kuper, R. Pankrath, H. Hesse, (Growth and dielectric properties of congruently melting $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x \text{TiO}_3$ crystals), Appl. Phys. A.65, 301, 1997.
- [**C. Kuper 98**] : C. Kuper, K. Buse, U.Van Stevendaal, M. Weber, T. Leidlo, H. Hesse, E. Krätzig, (Electrooptic and photorefractive properties of ferroelectric barium-calcium titanate crystals), Ferroelectrics. 208-209, pp 213-223 (1998).
- [**C. N. Berglund 67**] : C. N. Berglund, H. J. Braun, (Optical absorption in single- domaine ferroelectric barium titanate), Physical Review. 164, pp 790- 799 (1967).
- [**D. Berlincourt 58**] : D. Berlincourt, H. Jaffe, (Elastic and piezoelectric coefficients of signle-crystal Barium titanate) Physical Review. 111, pp 143-148 (1958).
- [**D. L. Staebler 72**] : D. L. Staebler, J. J. Amodei, (Coupled-wave analysis of Holographic storage in LiNbO_3), Journal of applied physics. 43, pp 1042-1049 (1972).
- [**D. Rytz 90**] : D. Rytz, B. A. Wechsler, M. H. Garrett, C.C. Nelson, R. N. Schwarytz (Photorefractive properties of $\text{BaTiO}_3 : \text{Co}$), J. Opt. Soc. Am. B. 7, pp 2245-2254 (1990).
- [**D. Von der Linde 75**] : D. Von der Linde, A. M. Glass, (Photorefractive effects for reversible holographic storage of information), Applied physics. 8, pp 85-100 (1975).

- [**F. Abdi 92**]: F. Abdi, (Etude des proprietes electro-optiques de materiaux ferroelectriques (KDP, BaTiO₃, PbTiO₃), en fonction de la température et de la frequence de modulation), thèse l'université de Metz (1992).
- [**F. Abdi 96**]: F. Abdi, M. Aillerie, M.D. Fontana (Accurate Measurement of the Electro-optic Properties of Iron doped and pur BaTiO₃ single crystals) *Nonlinear optics*. 16, pp 65-78 (1996).
- [**H. Kröse 95**] : H. Kröse, R. Scharfschwerdt, O. F. Schirmer and H. Hesse, (Light-induced charge transport in BaTiO₃ via three charge states of rhodium), *Appl. Phys. B* 61, pp (1995).
- [**H. Song 00**] : H. Song, S.X. Dou, M. chi, Y. Zhu, and P. Ye (Studies of impurity levels in Rh-doped and Ce-doped photorefractive BaTiO₃) *Applied. Physics. B*, 70, pp 543-548 (2000).
- [**H. Veenhuis 00**] : H. Veenhuis, T. Börger, K. Buse, C.Kuper, H. Hesse, E. Krätzig, (Light - induced charge – transport properties of photorefractive barium- calcium titanate crystals doped with iron) *J. Applied. Physics*. 88; pp 1042- (2000).
- [**H. Y. Zhang 91**]: H. Y. Zhang, X. H. He, Y. H. Shih, (Anew method for measuring the electro-optic coefficients with higher sensitivity and higher accuracy), *Optics Communications*. 86 pp 509-512 (1991).
- [**J. Feinberg 82**] : J. Feinberg, (Self-pumped, continuous-wave phase conjugator using internal reflection) *Optics letters*. 7, pp 486-488 (1982).
- [**J. Neumann 99**]: J. Neumann, M. Röwe, H. Veenhuis, R. Pankrath, E. Krätzig (Linear electrooptic coefficient r_{42} of tetragonal Potassium-Tantalate-Niobate and Barium-Calcium-titanate), *Physica status solidi (b)*. 215, pp R9- R11 (1999).
- [**K. Blotekjaer 77**]: K. Blotekjaer (Theory of hologram formation in photorefractive media), *Journal of applied physics*. 48, pp 2495-2501 (1977).
- [**K. Buse 93**]: K. Buse, S. Riehemann, S. Loheide, H. Hesse, F. Mersch, and E. Krätzig (Refractive indices of single domain BaTiO₃ for Different Wavelengths and temperatures), *J. Physica. Status. Solidi (a)*. 135, pp K 87-K 89 (1993).
- [**K.F. Hulme 69**]: K.F. Hulme, P.H. Davies, V.M. Cound, *J.Phys. C2*, pp 855-857 (1969)
- [**L. B. Barbosa 2001**] : L.B. Barbosa, D. Reyes Ardila, J.P. Andreeta, (Crystal growth of congruent barium calcium titanate by LHPG) *Journal of crystal growth*. 231, pp 488-492 (2001).
- [**L. Guilbert 99**]: L. Guilbert, J.P. Salvestrini, H. Hassan, M. D. Fontana, (Combined effects due to phase, Intensity, and contrast in electrooptic modulation: Application to ferroelectric materials), *IEEE Journal of quantum electronics*. 35, pp 273-280 (1999).

- [**M. Aillerie 2000**]: M. Aillerie, N. Théofanous, M.D. Fontana, (Measurement of electro-optic coefficients : description and comparaison of the experimental techniques), Applied. Physics. B. 70, pp 317-334 (2000).
- [**M. Didomenico 68**]: M. Didomenico, J. R. , S. H. Wemple, (Optical properties of perovskite oxides in their ferroelectric phases), Physical Review. 166, pp 565-576 (1968).
- [**M. Didomenico 68**]: M. Didomenico, S.H. Wemple (Oxygen-octahedra Ferroelectrics. I. Theory of Electro-optical and Non linear optical Effects) J. Applied. Physics. 40, pp 720-734, (1968).
- [**M. H. Garrett 92-1**]: M. H. Garrett, J. Y. Chang, H. P. Jenssen, C. Warde (High photorefractive sensitivity in an n- type 45° - cut BaTiO_3 crystal) Optics Letters. 17, pp 103-105, (1992).
- [**M. H. Garrett 92-2**]: M. H. Garrett, J. Y. Chang, H. P. Jenssen, C. Warde (High beam-coupling gain and deep- and Shallow-trap effects in cobalt- doped barium titanate, $\text{BaTiO}_3 : \text{Co}$) J. Opt. Soc. Am.B. 9, pp 1407-1415 (1992).
- [**M. Kaczmarek 95-1**]: M. Kaczmarek and R. W. Eason (very- high-gain single pass two-beam coupling in blue Rh: BaTiO_3) J. Optics. Letters. 20, pp 1850-1852 (1995).
- [**M. Kaczmarek 95-2**]: M. Kaczmarek, G. W. Ross, P.M. Jeffrey, R. W. Eason, P. Hribek, M.J. Damzen, R. Ramos-Garcia, R. Troth, M. H. Garrett, D. Rytz (Dual wavelength characterisation of shallow traps in ‘ bleu’ BaTiO_3), Optical Materials. 4, pp 158-162 (1995).
- [**M. Kaczmarek 97**]: M. Kaczmarek, P. Hribek, R. W. Eason (Near- infrared incoherent coupling and photorefractive reponse time of ‘ blue’ Rh : BaTiO_3), Optics Communications. 136, pp 277-282 (1997).
- [**M. Simon 97**]: M. Simon, F. Mersch, C. Kuper, S. Mendricks, S. Wevering, J. Imbrock, and E. Krätzig (Refractive Indices of Photorefractive Bismuth Titanate, Barium-Calcium Titanate, Bismuth Germanium Oxide, and Lead Germanate) J. Phys. Stat. Sol. (a). 159, pp 559-562 (1997).
- [**M. Zgonig 94**]: M. Zgonik, P. Bernosconi, M. Duelli, R. Schlessler, P. Günter, M. H. Garret, D. Rytz, Y. Zhu, X. Wu (Dielectric, elastic, piezo-électric, electro-optic and elasto-optic tensors of BaTiO_3 crystals) Physical Review B. 50, pp 5941-5949 (1994).
- [**M. Zgonik 95**]: M. Zgonik, K. Nakagawa, P. Günter (Electro-optic and dielectric properties of photorefractive BaTiO_3 and KNbO_3), J. Opt. Soc. Am. B. 12, pp 1416-1421 (1995).
- [**M.C. Bachow. 94**]: M. C. Bashaw, M. Jeganathan and L. Hesseilink, (Theory of two-center transport in photorefractive media for low intensity, continuous wave illumination in the quasi-steady-state limit), J.Opt. Soc. Am. B 11 (1994).

- [**Mc Michael 87**] : Mc Michael, P. Beckwith, and P. Yeh (Phase-conjugate multimode fibre gyro), *Optics letters*. 12, pp 1023-1025 (1987).
- [**M. P. Petrov 89**]: M. P. Petrov, S.L. Sochava, S. I. Steponav (Double phase-conjugate mirror using a photorefractive $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ crystals, *Opt. Lettre*, 284 (1989)
- [**N. Huot 97-1**]: N. Huot, J. M. C. Jonathan, G. Roosen (Validity of the three-charge-state model in photorefractive $\text{BaTiO}_3 : \text{Rh}$ at $1.06 \mu\text{m}$ in the cw regime) *J. Applied Physics B* 65, 489-493 (1997).
- [**N. Huot 97-2**]: N. Huot, J.M.C. Jonathan, G. Pauliat, D. Rytz, G. Roosen,(Charaterization of a photorefractive rhodium doped barium titanate at $1,06 \mu\text{m}$) *Optics Communications*. 135 pp 133-137 (1997).
- [**N. Huot 97-3**]: N. Huot, J.M.C. Jonathan, G. Roosen, D. Rytz (Two- wave mixing in photorefractive $\text{BaTiO}_3 : \text{Rh}$ at $1,06 \mu\text{m}$ in the nanosecond regime) *Optics letters*. 22, pp 976-978 (1997).
- [**N. Huot 99**]: N. Huot (Etude de $\text{BaTiO}_3 : \text{Rh}$ photoréfractif à $1, 06 \mu\text{m}$ et applications à la correction dynamique de front d'onde par conjugaison de phase), Thèse 1999 de IOTA.
- [**N. V. Kukhtarev 79**]: N. V. Kukhtarev, V.B. Markov, S.G. Odulov, M. S. Soskin and V. L. Vinetskii, (Holographic storage in electrooptic crystals. II. Beam coupling-light amplification), *Ferroelectrics*. 22, pp. 961-964 (1979).
- [**N.V. Kukhtarev 76**] : N.V. Kukhtarev, (Kinetics of hologram recording and erasure in electrooptic crystals) *Sov. Tech. Phys. Lett.* 2,pp 438 (1976).
- [**P. Bernasconi 95**]: P. Bernasconi, M. Zgonik, P. Günter (Température dependance and dispersion of électro-optic and elasto-optic effect in perovskite crystals) *J. Applied. Physics*. 78, 2651-2658 (1995).
- [**P. Günter 91**]: P. Günter, M. Zgonik, (Clamped-unclamped electro-optic coefficient dilemma in photorefractive phenomena), *Optics letters*. 16, pp 1826-1828 (1991).
- [**P. Jullien 90**]: P. Jullien, A. Lahlafi, A. Maillard, G. Ormancey (Influence of oxygen vacancies on the photorefractive effect in barium titanate single crystals), *Ferroelectrics*. 108, pp 147-152 (1990).
- [**P. Jullien 92**] : P. Jullien, (Etude des effets électrooptiques et photoréfractifs du titante de baryum pur et dopé au fer), Thèse 1992 de Bourgogne.
- [**P. Morrti 81**] : P. Moretti, G. Godefray, J. M. Bilbault, (Optical and electrical properties of Nb doped BaTiO_3 single crystals grown either by the KF flux of the pulling method), *Ferroelectrics*. 37, pp 721-724 (1981).

- [**P. Tayebati 91**] : P. Tayebati, 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, pp 1053-1064 (1991).
- [**P. Yez 93**] : P. Yeh, (Introduction to photorefractive nonlinear optics), 1993.
- [**P. Ney 86**]: P. Ney (Etude de l'origine des propriétés électro-optiques et optiques et optiques non linéaire d'un composé de la famille des Borate: le métaborate de baryum (β -BBO) thèse 1986 à Metz
- [**R.C.Devries 55**]: R.C.Devries, R. Roy (Phase equilibria in the system BaTiO_3 - CaTiO_3), Journal of the American Ceramic Society. 38, pp 142-146 (1955).
- [**S. Bernhardt 2000**]: S. Bernhardt, Ph. Delaye, H. Veenhuis, D. Rytz, G. Roosen, (Photorefractive two-beam coupling characterization of a barium-calcium titanate crystal) Applied Physics Lasers and Optics B. (2000).
- [**S. Bernhardt 2001-1**] : S. Bernhardt, H. Veenhuis, P. Delaye, G. Roosen (Effect of rhodium doping on the photorefractive properties of BCT crystals). Optical Materials. 18, pp 13-16, (2001).
- [**G.W. Ross 93**]: G.W. Ross, R. W. Eason,(Double-conjugate mirror with six fold gain in photorefractive BaTiO_3 at near-infrared wavelength), Optics. Lettres, Vol 18 (1993)
- [**S. Bernhardt 2001-2**] : S. Bernhardt, (Gyromètre à fibre à double conjugaison de phase : - étude d'un nouveau matériau photorefractif et réalisation d'une démonstration). Thèse 2001 de IOTA.
- [**S. Ducharme 86**] : S. Ducharme, J. Feinberg, (Altering the photorefractive properties of BaTiO_3 by réduction and oxidation at 650 °C), J. Opt. Soc. Am. B. 3, pp 283-292 (1986).
- [**S. H. Wemple 70**] : S.H. Wemple (Polarization fluctuations and the optical- absorption edge in BaTiO_3), Physical Review B. 2, pp 2679 – 2689 (1970).
- [**S. Shumate 66**]: Michael S.Shumate (Interferometric Measurement of large Indices of Refraction) J. Applied Optics. 5, pp 327-331 (1966).
- [**S. Weiss 87**] : S. Weiss, S. Sternklar, and B. Fischer (Double phase-conjugate miroir: analysis, demonstration, and applications), Optics letters. 12, pp 114-116 (1987).
- [**U. Schlarb 92**]: U. Schlarb, K. Betzler (Interferometric measurement of refractive indices of LiNbO_3) Ferroelectrics. 26, pp 39-44 (1992).
- [**V. Matusevich 2000**] : V. Matusevich, A. Kiessling, R. Kowarschik (Experimental determination of the electro-optic coefficients in $\text{Ba}_{0,77}\text{Ca}_{0,23}\text{TiO}_3$) Applied. Physics. B 71, pp 533-538 (2000).
- [**W. Ousi Benomar 86**]: W. Ousi Benomar (Propriétés électro-optiques du titanate de baryum pur ou dopé Fer), thèse, 6 juin 1986, l'université de Dijon.

[Y. Abid 94]: Y. Abid (Etude des effets électrooptiques du titanate de baryum pur et dopés au fer: Influence de la longueur d'onde et de la température), thèse de Bourgogne, 1994.

[Y. Fainman 86]: Y. Fainman, E. Klancnik, S.H. Lee, (Optimal coherent image amplification by two-wave coupling in photorefractive BaTiO₃), Optical Engineering. 25, pp 228-234 (1986).

[Y. M. Semanou 87] : Y. M. Semanou (Etude des propriétés électrooptiques de BaTiO₃ dopé au fer), Thèse 1987 de Bourgogne.

Annexe A : Différentes contributions à l'effets photoréfractif

Cet annexe présente en détail les différentes contributions aux effets photoréfractives et électrooptiques ainsi que les valeurs des ces différents phénomènes obtenus dans la littérature pour le BaTiO₃

A.1. Coefficients électro-optiques

Les propriétés optiques des cristaux peuvent être définies à partir de l'ellipsoïde des indices ou indicatrice optique:

$$B_{ij}^0 X_i X_j = 1 \quad (\text{A. 1})$$

avec B_{ij}^0 le tenseur d'imperméabilité pour un cristal sans champ appliqué et i, j, k les indices de trois coordonnées cartésiennes (x, y, z). Sous l'action d'un champ électrique, il peut avoir à la fois, en général, une variation de l'amplitude et de la direction des axes principaux du tenseur. Les effets EO décrivant la relation entre cette perturbation de l'ellipsoïde des indices ΔB_{ij} et le champ électrique appliqué, elle s'écrit :

$$\Delta B_{ij} = B_{ij} - B_{ij}^0(0) = r_{ij,k} E_k + R_{ij,kl} E_k E_l \quad (\text{A. 2})$$

Avec : $i, j, k, l = 1, 2, 3$.

B_{ij} : le tenseur d'imperméabilité en présence d'un champ électrique.

E_k : $k^{\text{ème}}$ composante du champ électrique appliqué.

$r_{ij,k}$: coefficient EO linéaires.

$R_{ij,kl}$: coefficient EO quadratiques.

A.2. Coefficient élasto-optique ou photo-élastique

L'effet élasto-optique est défini comme étant la variation des B_{ij} sous l'effet d'une déformation mécanique S . Pour les cristaux, cet effet s'écrit sous la forme :

$$\Delta B_{ij} = p_{ijkl} S_{kl} \quad (\text{A. 3})$$

où $p_{ij,kl}$ est le coefficient du tenseur photo-élastique et S_{kl} le coefficient du tenseur déformations. Pour tout $(i,j,k) \in \{1,\dots,3\}$ et $(m,n) \in \{1,\dots,6\}$ on a : $P_{ijkl} = P_{mn}$

On définit également les constantes piézooptique Π_{ijkl} :

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \Pi_{ijkl} T_{kl} \quad (\text{A. 4})$$

où T_{ijkl} sont les composantes de la contrainte appliquée.

D'après la loi de Hooke généralisée [J.F. Nye 66] (pour les cristaux non piézo-électriques) on a :

$$T_{kl} = C_{ijkl} S_{kl} \quad (\text{A. 5})$$

où C_{ijkl} sont les composantes du tenseur de rigidité-élastique.

Le tenseur d'élasticité à champ électrique constant [S^E_{ijkl}] en notations contractées et le tenseur des constantes élastiques à champ électrique constant [C^E_{ijkl}] relie les déformations [S_{kl}] aux contraintes [T_{ij}] par les relations suivantes :

$$T_{ij} = C^E_{ijkl} S_{kl} \quad \text{et} \quad S_{ij} = S^E_{ijkl} T_{kl} \quad (\text{loi de Hooke}) \quad (\text{A. 6})$$

Rappelons que [T_{ij}] et [S_{kl}] sont symétriques.

A.4. Propriétés tensorielles

Les tenseurs traduisant les différents effets physiques sont exprimés dans des systèmes d'axes trirectangles (x,y,z) qui sont déduits à partir des axes cristallographiques. Le tableau suivant rappelle les formes des tenseurs. Ces tenseurs sont habituellement représentés par des matrices dans lesquelles les couples d'indice ij se contractent suivant la convention :

$$11 \cong xx \rightarrow 1$$

$$22 \cong xy \rightarrow 2$$

$$33 \cong zz \rightarrow 3$$

$$32 \cong 23 \cong yz \cong zy \rightarrow 4$$

$$31 \cong 13 \cong xz \cong zx \rightarrow 5$$

$$12 \cong 21 \cong xy \cong yx \rightarrow 6$$

Ces tenseurs pour un symétrie 4 mm sont présentés au tableau suivant :

<p>Electrooptique ($r_{ij,k}$)</p> $\begin{bmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{42} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	<p>Elasto- optique (P_{mn})</p> $\begin{bmatrix} P_{11} & P_{12} & P_{13} & 0 & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{11} & P_{13} & 0 & 0 & 0 \\ P_{31} & P_{31} & P_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & P_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & P_{66} \end{bmatrix}$
<p>Tenseur d'élasticité à champ électrique constant [$S_{ijk,l}^E$]</p> $\begin{bmatrix} S_{11}^E & S_{12}^E & S_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ S_{12}^E & S_{11}^E & S_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ S_{13}^E & S_{13}^E & S_{33}^E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44}^E & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44}^E & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{66}^E \end{bmatrix}$	<p>Tenseur des constantes élastiques à champ électrique constant [$C_{ijk,l}^E$]</p> $\begin{bmatrix} C_{11}^E & C_{12}^E & C_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ C_{12}^E & C_{11}^E & C_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ C_{13}^E & C_{13}^E & C_{33}^E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44}^E & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44}^E & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66}^E \end{bmatrix}$
<p>Piézoélectrique inverse [d_{klm}]</p> $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	<p>Piézoélectriques de contrainte [e_{kij}]</p> $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$

Tableau A. 1: Les différents tenseurs pour BaTiO₃

A.5. Différentes contributions au coefficient électro-optique

Les propriétés EO dépendent, en général, des paramètres physiques externes auxquels le matériau est soumis; nous avons représenté dans la figure suivante les différentes contributions, supposés de même signe, au coefficient EO linéaire r en fonction des

fréquences de modulation du champ électrique. Deux cas sont à considérer dans l'étude des propriétés EO des cristaux :

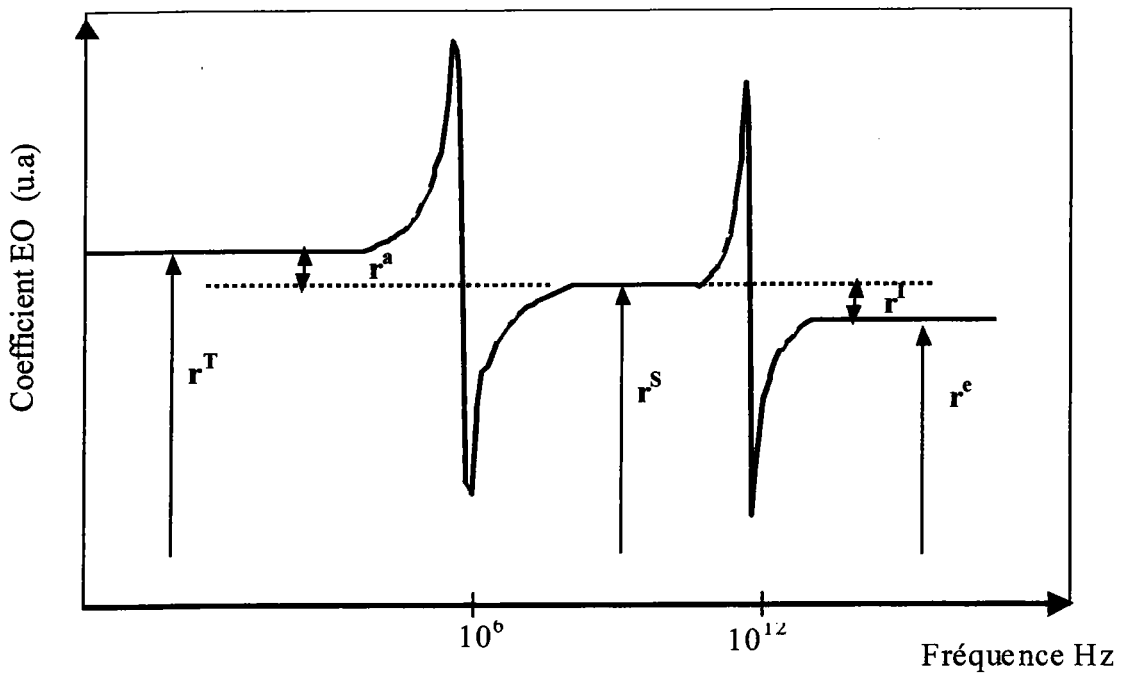


Figure A. 1: Différentes contributions, supposé de même signe à l'effet EO linéaire.

a) Etat libre

Lorsque les contraintes mécaniques sont nulles ou lorsque le champ électrique appliqué est basse fréquence, le cristal est libre de se déformer par effet piézo-électrique inverse ; les coefficients EO correspondants sont les coefficients correspondants r^T et R^T . Il est important de noter que les mesures EO sont généralement effectuées en présence d'un champ électrique statique ou basse fréquence. Par conséquent, les coefficients mesurés sont alors r^T et R^T et ils intègrent les différentes contributions présentées ci-dessus. L'application d'un champ électrique à un cristal a pour conséquence une modification de son ellipsoïde des indices; les variations linéaires de celle-ci avec le champ appliqué sont décrites par l'effet EO linéaire qui se traduit par l'équation :

$$\partial\left(\frac{1}{n^2}\right)_{ij} \approx \partial(B_{ij}) \approx \sum_{k=1}^3 r^T_{ij,k} E_k \tag{A. 8}$$

$r_{ij,k}^T$: le coefficient EO total (obtenu à basse fréquence). Dans ce cas le cristal est libre de se déformer. Si S_{lm} est la déformation du cristal dans la direction lm , l'équation (A. 8) peut s'écrire sous la forme :

$$r_{ij,k}^T(\omega_L, \omega_m) \approx \frac{dB_{ij}(\omega_L)}{dE_k(\omega_m)} \approx \left. \frac{\partial B_{ij}(\omega_L)}{\partial S_{lm}} \right|_{E_k} \frac{\partial S_{lm}}{\partial E_k} + \left. \frac{dB_{ij}(\omega_L)}{dE_k(\omega_m)} \right|_{S_{lm}} \quad (\text{A. 9})$$

$r_{ij,k}^T(\omega_L, \omega_m)$: est appelé coefficient EO libre ou à contrainte constante.

Le terme $\left. \frac{\partial B_{ij}(\omega_L)}{\partial S_{lm}} \right|_{E_k}$ correspondant à l'effet élasto-optique ou photo élastique à champ

constant, c'est à dire à une variation de l'indice de réfraction due à la déformation du cristal. Cet effet est représenté par la constante élasto-optique à champ électrique constant, notée $p_{ij,lm}$

Le facteur $\frac{\partial S_{lm}}{\partial E_k}$ correspond à l'effet piézo-électriques, c'est à dire à la variation de longueur

du cristal sous l'effet d'un champ électrique. Ce terme mesuré à basse fréquence est noté $d_{lm,k}$

L'expression $\left. \frac{dB_{ij}(\omega_L)}{dE_k(\omega_m)} \right|_{S_{lm}}$ caractérise l'effet EO du cristal dit bloqué ou à déformation

constante, cette contribution, notée $r_{ij,k}^s(\omega_L, \omega_m)$ est mesurée pour des fréquences supérieures à celles des résonances acoustiques.

$$r_{ij,k}^T(\omega_L, \omega_m) \approx r_{ij,k}^s(\omega_L, \omega_m) \pm \sum_{l,m=1}^3 p_{ij,lm} d_{lmk} \quad (\text{A. 10})$$

où $p_{ij,lm}$ tenseur photo élastiques et d_{lmk} tenseur piézo-électrique.

La deuxième terme correspondant à la contribution acoustiques r_{ijk}^a des coefficients EO ($r_{ij,k}^T$)

b) Etat contraint

Lorsque le cristal est mécaniquement comprimé ou bien lorsque le champ électrique appliqué est à haute fréquence (au delà des résonances piézo-électriques), le cristal ne peut pas se

déformer. On notera les coefficients correspondants r^s et R^s .

Par un raisonnement similaire, le coefficient r^s peut être écrit sous la forme :

$$r_{ijk}^s = r_{ijk}^i + r_{ijk}^e \quad (\text{A. 11})$$

Le premier terme de l'équation (A. 11) correspond à la contribution ionique r^i et le second terme correspond à la contribution électronique r^e

Les différences $r^a = (r^T - r^S)$, $R^a = (R^T - R^S)$ sont respectivement les contributions acoustiques linéaires et quadratique du réseau ; ces contributions disparaissent au delà des fréquences de résonances piézo-électriques des échantillons qui peuvent se situer entre quelques dizaines de kHz à quelques MHz suivant les géométries. Le tableau ci dessous présente les valeurs de ces tenseurs pour BaTiO₃ utiles pour calculer la modulation d'indice de réfraction. Ces coefficients ont été mesurés par Zgonik et collaborateurs [Zgonik 94].

Tenseur des constantes élastiques à champ électrique constant	Tenseur élasto-optique	Tenseur piézoélectrique de contrainte	Tenseur électro-optique à déformation nulle	Constantes diélectrique à déformation nulle
C^E_{ijkl} en 10^{10} Nm^{-2}	P_{ijkl}	E_{kij} en C.m^{-2}	r^s_{ijk} en pm.V^{-1}	ϵ^s_{ij}
$C^E_{1111}=24,24$	$P_{1111}=0,49$	$e_{311}=-4,07$	$r^s_{113} = 7$	$\epsilon^s_{11} = 2174 \pm 108$
$C^E_{1122}=12,80$	$P_{2211}=0,105$	$e_{333} = 1,87$	$r^s_{333} = 33$	$\epsilon^s_{33} = 56 \pm 3$
$C^E_{1133}=12,23$	$P_{3311}=0,069$	$e_{131} = 35,53$	$r^s_{42} = 600$	
$C^E_{3333}=14,77$	$P_{3232}=0,73$			
$C^E_{1313}=5,49$	$P_{3333}=0,87$			
$C^E_{1212}=12,01$	$P_{1133}=0,095$			

Tableau A. 2: Tenseurs du BaTiO₃ utiles pour calculer la modulation d'indices

Annexe B : Protocole de mesure des indices de réfraction

Le présent annexe décrit le montage permettant la mesure des coefficients de réflexion en fonction de l'angle d'incidence à partir de la théorie de Fresnel et appliquée sur les cristaux uniaxes négatifs.

B.1. Dispositif expérimental, réglage et mesure

B.1.1. Banc expérimental

Le banc expérimental que nous avons utilisé est représenté sur la figure B. 1.

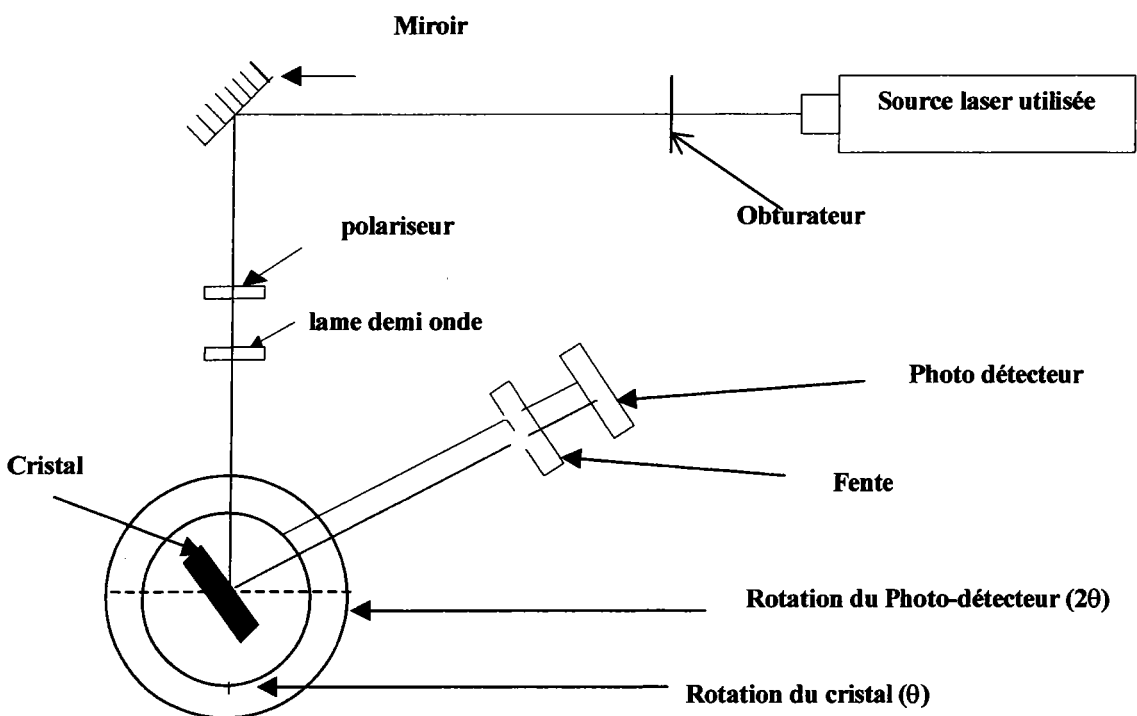


Figure B. 1: Dispositif expérimental de la technique de mesure du coefficient de réflexion

Ce montage se compose des éléments suivants :

- Une source laser (532 nm, 632,8 nm et 850 nm)

- Un polariseur et une lame demi onde pour orienter la polarisation aux différentes configurations des coefficients de réflexion.
- Un micro trou et un photo-détecteur placé sur un bras angulairement orientales avec un moteur pas à pas pour la positionner dans la direction exacte du faisceau et d'éliminer les intensités parasites du cristal.

Le cristal est placé sur une tête goniométrique. Un système de 3 translations permet de régler le cristal de façon optimale quel que soit son positionnement dans le support. En pratique, l'échantillon doit être placé de façon à faire coïncider le faisceau laser et le centre des trois rotations du support (détails et explication plus loin). La rotation du cristal est commandée par un moteur et permet de mesurer l'angle d'incidence θ_i . Par ailleurs, il est indispensable d'effectuer un réglage des trois axes aussi précisément que possible: l'axe permettant la rotation de l'échantillon, l'axe de rotation du bras de mesure portant la photodiode, et enfin l'axe matérialisé par le faisceau laser.

Les deux premiers axes coïncident par construction même de l'ensemble mécanique. Pour que l'axe matérialisé par le faisceau laser rencontre l'axe précédent, il faut positionner le laser avant d'utiliser l'échantillon. En pratique, on utilise un micro trou placé à l'extrémité du bras de mesure, on règle la position du laser de façon à ce qu'il traverse ce micro trou au centre de gravité du porte échantillon, puis après rotation exacte de 180° du bras de mesure, qu'il traverse cette fois ci le cristal, si le laser traverse le micro trou dans les deux cas, sans modifier la direction du cristal, le faisceau est considéré comme étant parfaitement au centre de rotation des systèmes.

B.1.2. Positionnement de l'échantillon

L'orientation du cristal doit être ajustée de façon à ce que la face d'entrée du cristal reste verticale lors de la rotation du porte échantillon. L'intérêt de ce réglage consiste à conserver l'ensemble du faisceau réfléchi dans le plan horizontal pendant la rotation de l'échantillon autour de l'axe de rotation du système. Ce réglage peut être effectué grâce à l'intensité réfléchie. Il suffit d'ajuster le cristal de façon à obtenir le faisceau réfléchi dans le même plan horizontal. Lorsque le réglage est terminé, on affine la position de la face d'entrée de l'échantillon à l'aide des translations x, y, pour faire coïncider l'axe de rotation et la face d'entrée du cristal. Le réglage de la translation x est particulièrement important, car il faut que ce dernier soit situé sur l'axe de rotation du système pour ne pas modifier le point d'incidence

sur le cristal. La façon la plus simple de s'en assurer, consiste à faire tourner le porte échantillon d'un angle θ et de vérifier que la mesure angulaire du faisceau réfléchi est le double de cet angle. Ceci est réalisé avec précision en recherchant le maximum d'intensité du faisceau réfléchi à travers une fente fine.

B.1.3. Principe de mesure

Le principe est de mesurer l'intensité réfléchie (I_r) en fonction de l'angle d'incidence. En effet, lorsque le cristal est tourné d'un angle θ , le photodétecteur est, quant à lui, tourné de 2θ pour récupérer l'intensité réfléchie par le cristal. Cette intensité ayant été préalablement filtrée par une fente (ce qui permet au photodétecteur de ne recevoir que le faisceau réfléchi). Les rotations du cristal et du photodétecteur sont commandées par deux moteurs de rotation dans le même bras afin d'avoir une mesure très précise. La précision de l'angle de rotation est de $0,01^\circ$. Le rapport des deux intensités permet de calculer les coefficients de réflexion déterminés par la formule $R(\theta_i) = \frac{I_r}{I_0}$; θ_i est l'angle d'incidence du faisceau.

B.2. Expressions théoriques du coefficient de réflexion

La technique de Fresnel est une technique fondée sur le principe de mesure des coefficients de réflexion. L'onde fondamentale peut être polarisée parallèlement au plan d'incidence (onde //) ou bien perpendiculairement à ce dernier (onde \perp) et que l'onde réfléchie garde respectivement le même type de polarisation. En utilisant la propriété de continuité des champs tangentiels, $\{E^t, H^t\}$ à la surface de séparation des milieux d'indice de réfraction n_1 et n_2 , on peut déduire les amplitudes et les intensités des ondes réfléchies. Les coefficients de réflexion en amplitude sont donnés par les formules classiques de Fresnel :

$$\begin{aligned} r_{\perp} &= \frac{n_1 \cos \theta_i - n_2 \cos \theta_t}{n_1 \cos \theta_i + n_2 \cos \theta_t} \\ r_{//} &= \frac{n_1 \cos \theta_t - n_2 \cos \theta_i}{n_1 \cos \theta_t + n_2 \cos \theta_i} \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

En utilisant la loi de Snell-Descartes :

$$n_1 \sin \theta_i = n_2 \sin \theta_t \quad (\text{B.2})$$

Les coefficients de réflexion en intensité $R_{//}$ et R_{\perp} , rapports des intensités réfléchies pour les deux états propres, sont égaux au carré des modules des coefficients en amplitude correspondants, soit :

$$R_{\perp} = r_{\perp}^2 = \left(\frac{n_1 \cos \theta_i - n_2 \cos \theta_t}{n_1 \cos \theta_i + n_2 \cos \theta_t} \right)^2$$

$$R_{//} = r_{//}^2 = \left(\frac{n_1 \cos \theta_t - n_2 \cos \theta_i}{n_1 \cos \theta_t + n_2 \cos \theta_i} \right)^2$$
(B. 3)

Où θ_i est l'angle d'incidence et θ_t l'angle de transmission du faisceau.

En utilisant la loi de Snell-Descartes $n_1 \sin \theta_i = n_2 \sin \theta_t$, on pourrait déterminer l'angle transmise par la relation :

$$\theta_t = \text{Ar sin} \left(\frac{n_2}{n_1} \sin \theta_i \right)$$
(B. 4)

En particulier, le coefficient de réflexion en intensité $R_{//}$ s'annule pour un angle d'incidence particulier i_{β} , appelé angle de Brewster tel que :

$$\tan i_{\beta} = \frac{n_2}{n_1}$$
(B. 5)

Alors que le coefficient R_{\perp} ne s'annule jamais.

La propagation des rayons lumineux dans un milieu anisotrope linéaire est détaillée au paragraphe suivant. La lumière incidente est supposée polarisée TE (\perp) ou TM ($//$). Deux cas sont représentés suivant la direction de l'axe optique:

B.2.1. Milieux anisotropes uniaxes négatifs

Dans l'étude précédente, seule la propagation de la phase d'une onde électromagnétique plane a été envisagée. Le but de ce paragraphe est d'étudier la propagation des rayons lumineux dans un milieu anisotrope linéaire et d'analyser comment ces derniers se comportent lors de la réfraction et de la réflexion. Pour chaque polarisation nous devons construire à l'aide de la surface des indices la marche des rayons ; on suppose en outre que l'indice de réfraction du milieu isotrope est plus petit que le plus petit des indices n_o et n_e (n_o et n_e sont respectivement

les indices de réfractons ordinaire et extraordinaire du milieu 2), condition qui exclut la possibilité de réflexion totale.

a) Axe optique perpendiculaire au plan d'incidence

Ce cas est représenté sur la figure B. 2. La construction est faite avec un milieu uniaxe négatif c'est à dire $n_e < n_o$, la lumière incidente est supposée polarisée TE (\perp) ou TM ($//$). Sauf en incidence normale, ils existent deux rayons réfractés distincts R_o et R_e . En incidence normale, les deux rayons R_o et R_e sont confondus mais les deux ondes ordinaires et extraordinaires sont distinctes.

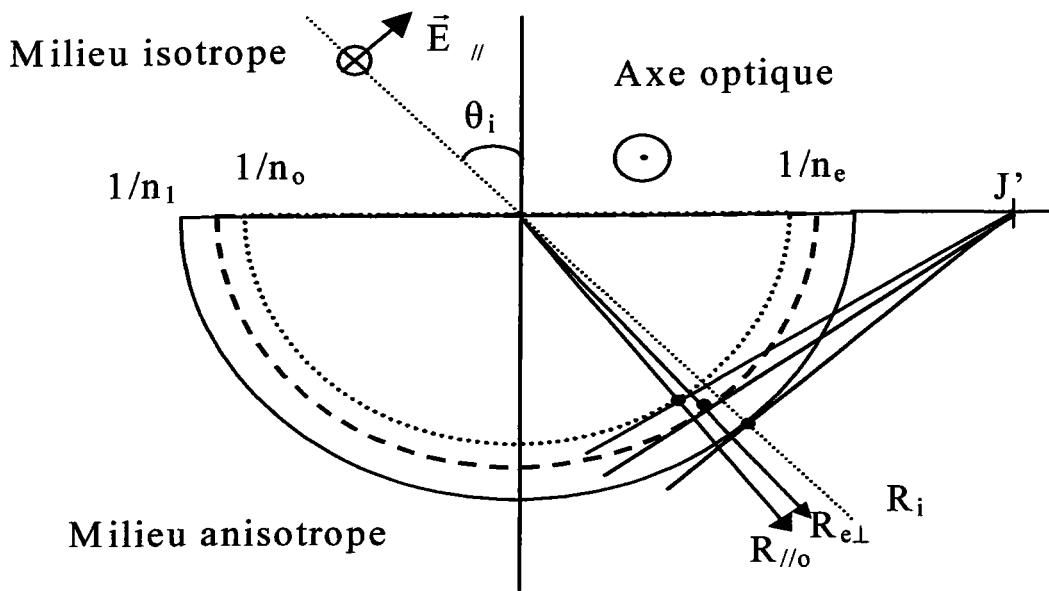


Figure B. 2 : Propagation des rayons lumineux dans un milieu anisotrope linéaire

Les rayons réfractés restent dans le plan d'incidence; les lois de Snell-Descartes s'appliquent directement puisque l'indice de réfraction vu par les rayons lumineux ne dépend pas de la direction de ceux-ci. Les angles r_o et r_e de réfraction pour le rayon ordinaire et extraordinaire satisfont les relations suivantes :

$$\begin{aligned} n_1 \sin \theta_i &= n_o \sin r_o \\ n_1 \sin \theta_i &= n_e \sin r_e \end{aligned} \tag{B. 6}$$

En ce qui concerne les états de polarisation, deux cas sont présentés :

- L'onde extraordinaire est polarisée perpendiculairement au plan d'incidence ($R_{\perp e}$). Dans ce cas le coefficient de réflexion donné par l'équation B. 3 devient :

$$R_{\perp e} = r_e^2 = \left(\frac{\cos \theta_i - n_e \cos \theta_t}{\cos \theta_i + n_e \cos \theta_t} \right)^2 \quad (\text{B. 7})$$

- L'onde ordinaire est polarisée dans le plan d'incidence ($R_{// o}$). L'expression du coefficient de réflexion est donnée par :

$$R_{// o} = \left(\frac{\cos \theta_t - n_o \cos \theta_i}{\cos \theta_t + n_o \cos \theta_i} \right)^2 \quad (\text{B. 8})$$

b) Axe optique dans le plan d'incidence

Dans ce cas représenté sur la figure B. 3, la section (C_e) de la nappe extraordinaire est une ellipse dont les axes sont l'axe optique et un axe perpendiculaire situé dans le plan d'incidence. La construction des rayons ne pose pas de difficultés particulières car les points de tangence sont dans le plan d'incidence. On constate de plus que même en incidence normale, le rayon extraordinaire réfracté R_e n'est pas normal au dioptre. Il est, d'autre part, facile d'observer que pour deux rayons incidents symétriques par rapport à la normale au dioptre, les rayons réfractés extraordinaires ne le sont pas. Il peut même arriver que le rayon incident et le rayon R_e soient du même côté de la normale que le rayon incident.

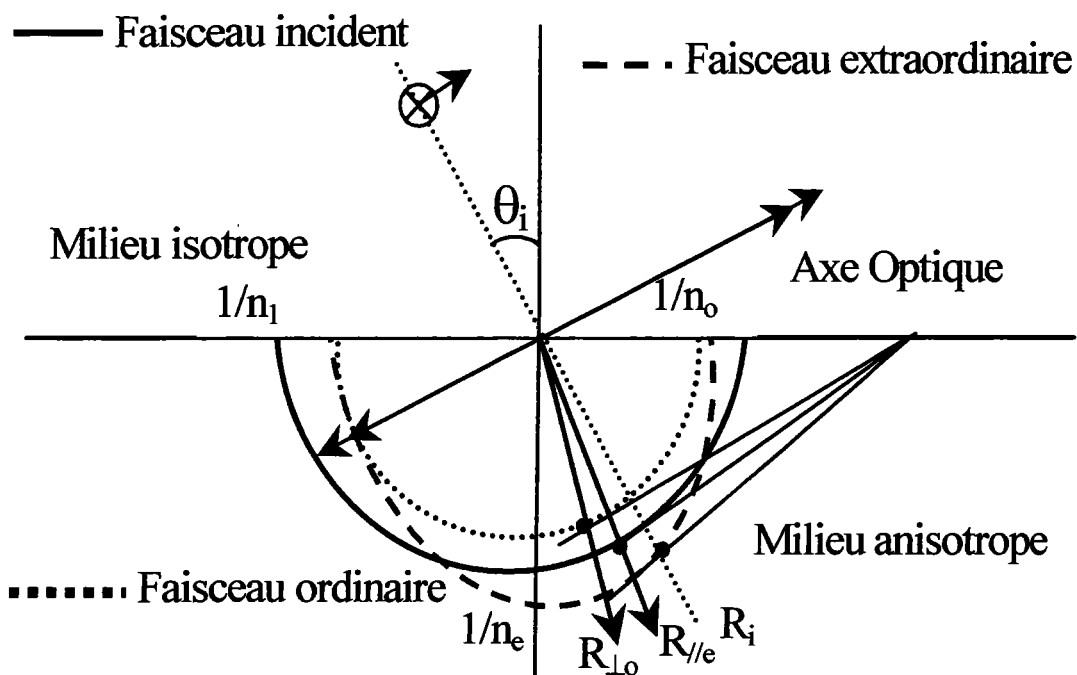


Figure B. 3 : Propagation des rayons lumineux dans un milieu anisotrope linéaire

Les états de polarisation correspondant aux rayons ordinaire et extraordinaire dans cette configurations sont :

- la direction de polarisation ordinaire est polarisé perpendiculairement au plan d'incidence ($R_{\perp o}$).

$$R_{\perp o} = \left(\frac{\cos \theta_i - n_o \cos \theta_t}{\cos \theta_i + n_o \cos \theta_t} \right)^2 \quad (\text{B. 9})$$

- la direction de polarisation extraordinaire est polarisé parallèlement au plan d'incidence ($R_{// e}$). L'indice vu par cette configuration est l'indice extraordinaire n_{eff} qui dépend de l'indice ordinaire et extraordinaire, déterminés par l'intersection de l'ellipsoïde des indices avec le plan YZ, il sera, désormais, noté n_{eff} . Le coefficient de réflexion dans ce cas est :

$$R_{// e} = \left(\frac{\cos \theta_t - n_{\text{eff}} \cos \theta_i}{\cos \theta_t + n_{\text{eff}} \cos \theta_i} \right)^2 \quad (\text{B.10})$$

En utilisant les relations :

$$\frac{y}{n_{\text{eff}}} = \cos(\theta)$$

$$\frac{z}{n_{\text{eff}}} = \sin(\theta)$$
(B. 11)

l'équation de l'ellipse dans le plan (YZ) est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1$$
(B. 12)

d'après (B. 11) et (B. 12), on obtient :

$$\frac{1}{n_{\text{eff}}^2} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2}$$
(B. 13)

$\theta + \theta_t = \frac{\pi}{2}$ avec θ_t l'angle de transmission du faisceau.

D'après la loi de Descartes : $n_{\text{eff}} \sin(\theta_t) = \sin(\theta_i)$

(B. 14)

avec θ_i l'angle d' incidence du faisceau, l'équation (B. 13) devient :

$$\frac{1}{n_{\text{eff}}^2} = \frac{\sin^2(\theta_i)}{n_o^2 n_{\text{eff}}^2} + \frac{1 - \frac{\sin^2(\theta_i)}{n_o^2}}{n_e^2}$$
(B. 15)

donc l'indice extraordinaire vu par la configuration $R_{//e}$ est donné par la relation:

$$n_e = \left[\frac{n_{\text{eff}}^2 - \sin^2(\theta_i)}{1 - \frac{\sin^2(\theta_i)}{n_o^2}} \right]^{1/2}$$
(B. 16)

Annexe C: Description de la technique de mesure des coefficients EO

Les coefficients EO sont reliés au retard de phase $\Gamma(E)$ induit dans l'échantillon sous l'effet d'un champ électrique appliqué. Une détermination expérimentale des coefficients EO se fait en générale, par la mesure de ce déphasage. Différents montages expérimentaux sont basés sur ce principe. On peut les classer en deux grandes catégories:

- Le montage interférométrique à deux ondes, où l'échantillon à étudier est inséré dans l'un des deux bras de l'interféromètre. Ce montage a l'avantage de donner séparément les coefficients EO directs.
- Le montage à une onde, basé sur la modulation de la polarisation du faisceau laser. Ce dernier permet de déterminer des coefficients EO combinés.

Cette annexe détaille le banc interférométrique de mesure des coefficients EO, le protocole de mesure et les équations nécessaires au calcul des coefficients EO.

C.1. Principe de l'interféromètre de Michelson

Un interféromètre est un dispositif qui divise une onde incidente provenant d'une source en deux ou plusieurs ondes, qui après avoir parcouru des chemins différents, se superposent en donnant lieu à des phénomènes d'interférences.

Un des interféromètres les plus connus est celui de Michelson (Figure C.1).

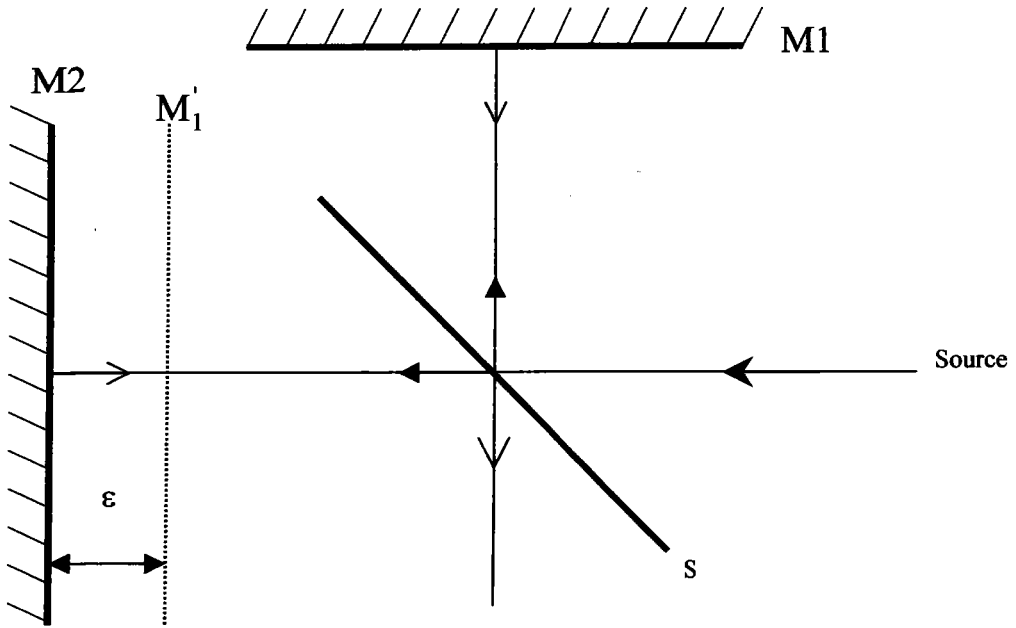


Figure C. 1 : Schéma de principe de l'interféromètre de Michelson

La source de lumière monochromatique, dite primaire, est partagée en deux rayons par une séparatrice S qui est une lame à faces parallèles semi-réfléchissante inclinée de 45° par rapport au faisceau incident.

Les trains d'ondes parcourant les deux bras de l'interféromètre présentent le même état de polarisation pour des polarisations dans le plan ou perpendiculaires au plan d'incidence de S et des miroirs.

La différence de marche (ddm) entre les deux rayons est égale à la différence du chemin optique (δ_i) dans les deux bras et s'écrit :

$$\Delta = \delta_2 - \delta_1 = 2\varepsilon \quad (\text{C. 1})$$

C.2. Protocole de mesure et expressions des différences de marche

Dans les expressions qui suivent, l'indice m se réfère au modulateur alors que les termes sans indices correspondent au cristal EO. Comme indique dans la chapitre 4

La première étape consiste à obtenir des franges d'interférences par réglage des miroirs. Le système de franges est immobile et la ddm est donnée par l'équation :

$$\Delta_0 = 2[\varepsilon + L_m(n_m - 1) - L(n - 1)] \quad (\text{C. 2})$$

Où n_m et n , L_m et L sont respectivement les indices de réfraction, les longueurs de propagation du modulateur et du cristal à étudier alors que 2ε est la ddm entre les deux bras de l'interféromètre "à vide".

- Une tension alternative est alors appliquée au modulateur et la forme du signal observé dépend du positionnement de la fente par rapport aux franges.

L'application d'une tension continue au modulateur, modifie son indice via l'effet EO. Elle permet d'ajuster la longueur du chemin optique dans un des bras jusqu'à atteindre une frange sombre par visualisation du signal à la fréquence double sur l'écran de l'oscilloscope schématisé ci-dessous (figure C.2).

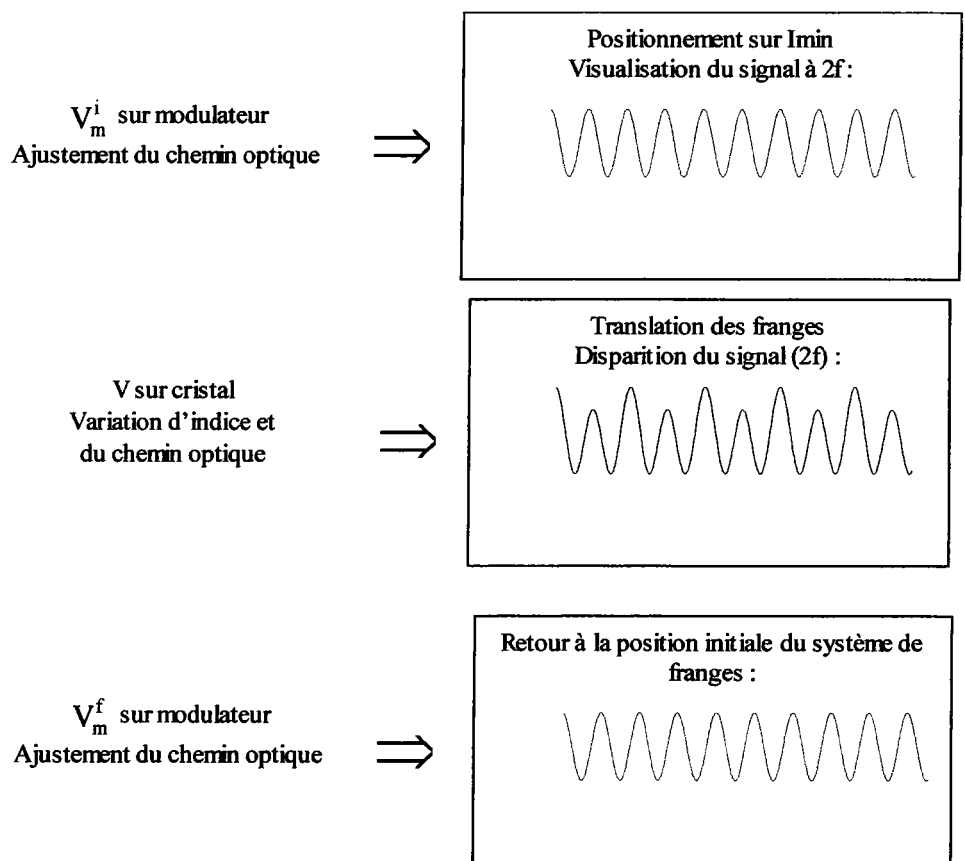


Figure C. 2: Etapes de mesure du coefficient électro-optique

Le doublement de fréquence est alors observé pour une tension V_m^i et la différence du marche entre les deux bras de l'interféromètre est donnée par l'équation suivante:

$$\Delta_i = 2[\varepsilon + L_m(n_m - 1) + L_m \Delta n_m(E_m^i) + \Delta L_m(E_m^i)(n_m - 1) - L(n - 1)] \quad (C.3)$$

- Une tension continue V appliquée au cristal entraîne, de la même manière que pour le modulateur, une modification du chemin optique. Celle-ci conduit à un déplacement du système de franges et à une déformation voir une disparition du doublement de fréquence.
- La position initiale (F0) est alors retrouvée par application d'une nouvelle tension continue (V_m^f) sur le modulateur.

L'état final du chemin optique est donné par l'égalité (C. 4) suivante :

$$\Delta_f = 2[\varepsilon + L_m(n_m - 1) + L_m \Delta n_m(E_m^f) + \Delta L_m(E_m^f)(n_m - 1) - L(n - 1) - L \Delta n(E) - \Delta L(E)(n - 1)] \quad (C. 4)$$

Les états caractérisés par Δ_i et Δ_f sont identiques car ils concernent la même frange sombre et correspondent à la même différence de marche. En identifiant (C. 4) et (C. 3), on obtient l'égalité suivante :

$$-\frac{1}{2}n_m^3 r_m L_m \frac{V_m^f - V_m^i}{e_m} + (n_m - 1)d_m L_m \frac{V_m^f - V_m^i}{e_m} = -\frac{1}{2}n^3 rL \frac{V}{e} + (n - 1)dL \frac{V}{e} \quad (C. 5)$$

Les mesures des tensions du modulateur initiale et finale permettent d'accéder au rapport ci-dessous :

$$V_m^f - V_m^i = \frac{-\frac{1}{2}n^3 rL \frac{V}{e} + (n - 1)dL \frac{V}{e}}{-\frac{1}{2}n_m^3 r_m \frac{L_m}{e_m} + (n_m - 1)d_m \frac{L_m}{e_m}} \quad (C. 6)$$

Le dénominateur de cette fraction est une constante liée au modulateur C_m telle que :

$$C_m = -n_m^3 r_m \frac{L_m}{e_m} + 2(n_m - 1)d_m \frac{L_m}{e_m} \quad (C. 7)$$

L'égalité (C. 6) devient finalement :

$$\frac{C_m}{2}(V_m^f - V_m^i) = -\frac{1}{2}n^3 rL \frac{V}{e} + (n - 1)dL \frac{V}{e} \quad (C. 8)$$

Avec $-\frac{1}{2}n^3 rL \frac{V}{e}$: la variation de la longueur du chemin optique due à l'effet EO du cristal,

$(n - 1)dL \frac{V}{e}$: la variation de la longueur du chemin optique due à l'effet PE inverse du cristal.

Le coefficient EO du cristal est alors obtenu par la relation :

$$r = r^* + r' = -\frac{e}{n^3 LV} C_m (V_m^f - V_m^i) + \frac{2(n-1)}{n^3} d \quad (\text{C. 9})$$

Le premier terme de cette égalité (r^*) sera appelé coefficient EO apparent alors que le second (r') correspond à un facteur correctif provenant de l'effet PE inverse.

C.2.1. Constante du modulateur

Le dénominateur de l'expression précédente dépend uniquement des caractéristiques du modulateur.

Il est possible d'évaluer ce terme en procédant de la manière suivante :

- On applique au modulateur une tension V_{m1} afin de se placer sur une frange sombre. La différence de marche est alors Δ_1 .
- On déplace le système d'une frange par application d'une tension V_{m2} et la différence de marche devient Δ_2 .

Le passage d'une frange sombre à une frange brillante correspond à une ddm de $\frac{\lambda}{2}$:

$$\Delta_2 - \Delta_1 = \frac{\lambda}{2} \quad (\text{C. 10})$$

La constante du modulateur est donnée par:

$$C_m = \frac{\lambda}{2(V_{m2} - V_{m1})} = -n_m^3 r_m \frac{L_m}{e_m} + 2(n_m - 1)d_m \frac{L_m}{e_m} \quad (\text{C.11})$$

a) Constante du modulateur C_m à 632,8 nm

La figure C.3 représente un exemple d'enregistrement de tension appliquée sur le modulateur lorsqu'on passe d'une frange sombre à une frange brillante

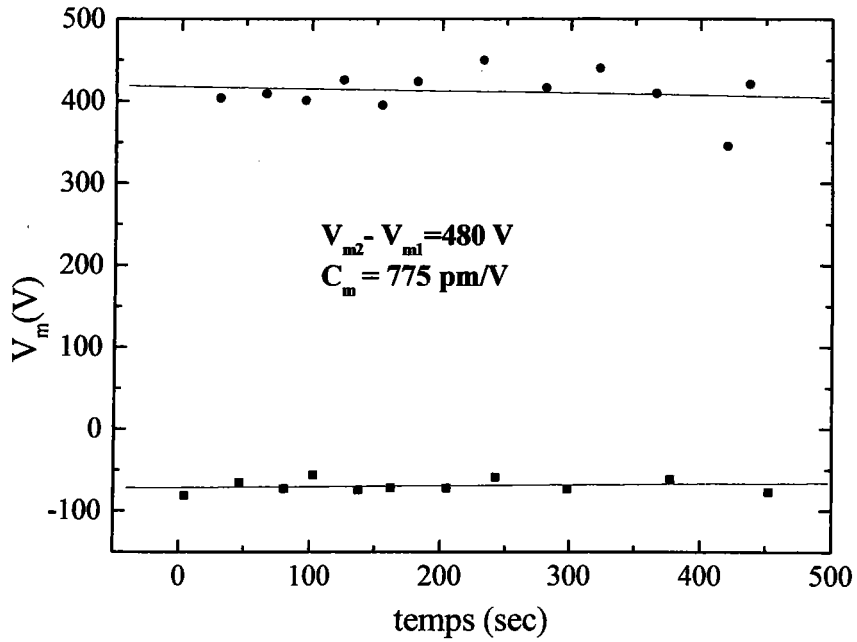


Figure C. 3 : Exemple d'enregistrement obtenu lors de la mesure de la constante du modulateur à 632,8 nm

La différence entre les deux droites, obtenues par régression linéaire, permet de mesurer la tension appliquée sur le modulateur lorsqu'on passe d'une frange brillante à une frange sombre. Dans cette figure on obtient:

$$V_{m2} - V_{m1} = 480V \quad (C. 11)$$

Cette constante est calculée à partir de l'équation :

$$C_m = \frac{\lambda}{2(V_{m2} - V_{m1})} = -n_m^3 r_m \frac{L_m}{e_m} + 2(n_m - 1)d_m \frac{L_m}{e_m} = 775 \text{ pm / V} \quad (C. 12)$$

b) La constante de modulateur à l'infrarouge (850 nm)

La figure C.4 représente la mesure de constante de modulateur à 850 nm.

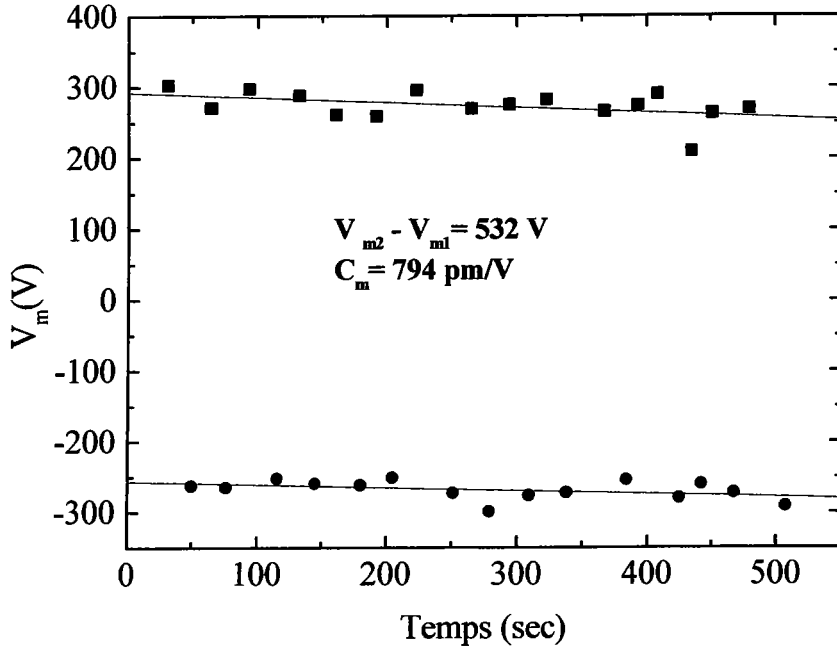


Figure C.4 : Exemple d'enregistrement obtenu lors de la mesure de la constante du modulateur à 850 nm

Dans cette figure on obtient que :

$$V_{m2} - V_{m1} = 532 \text{ V} \quad (\text{C. 13})$$

La constante C_m est calculée à partir de l'équation:

$$C_m = \frac{\lambda}{2(V_{m2} - V_{m1})} = -n_m^3 r_m \frac{L_m}{e_m} + 2(n_m - 1)d_m \frac{L_m}{e_m} = 794 \text{ pm / V} \quad (\text{C. 14})$$

C.2.2 Calcul des incertitudes

L'incertitude relative du coefficient EO apparent, obtenue à partir de (C. 9), est donnée par :

$$\frac{\Delta r^*}{r^*} = \frac{\Delta d}{d} + \frac{\Delta C_m}{C_m} + 2 \frac{\Delta V_m}{V_m^f - V_m^i} + 3 \frac{\Delta n}{n} + \frac{\Delta L}{L} + \frac{\Delta V}{V} \quad (\text{C.15})$$

$$\frac{\Delta C_m}{C_m} \cong 2 \frac{\Delta V_m}{V_{m2} - V_{m1}}, \quad 2 \frac{\Delta V_m}{V_m^f - V_m^i} \text{ ainsi que } \frac{\Delta V}{V} \text{ sont des erreurs de mesure indirectes car}$$

elles dépendent de l'observation du signal au doublement de fréquence.

RESUME

Ce travail de thèse fournit des résultats nouveaux concernant l'influence du rhodium sur les propriétés diélectriques optiques linéaires (absorption, indices de réfraction et) et non linéaires (électro-optiques) des cristaux (BaTiO_3 et $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3$) dopés rhodium. Les spectres d'absorption dans $\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$ font apparaître entre 400 nm et 1100 nm trois larges bandes centrées à 510 nm ($\text{Fe}^{3+/4+}$), 650 nm ($\text{Rh}^{3+/4+}$) et 820 nm ($\text{Rh}^{4+/5+}$). Une étude originale des cristaux utilisés, par la mesure locale du coefficient d'absorption, met en évidence une répartition inhomogène du dopant.

La détermination des coefficients électro-optiques est réalisée par une méthode statique (interférométrie) et une méthode dynamique (Sénarmont). Sur la base de ces deux méthodes, un ensemble de coefficients électro-optiques en fonction de la longueur d'onde et la température est donné pour la première fois. Notre étude a permis de démontrer que les propriétés photoréfractives du $\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$ (coefficients électro-optiques élevés, sensibilité proche infrarouge) sont préservées dans le dérivé $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3:\text{Rh}$ à température ambiante et jusqu'à 50°C.

ABSTRACTS

Thesis under consideration is dealing with some optical properties and the electrooptical effect in barium titanate doped with rhodium $\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$ and mixte barium calcium titanate $\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3:\text{Rh}$ (BCT:Rh). single crystals Main goal was to investigate possibility of application of the doped BT as photorefractive and electrooptical crystal working in infrared region and at low temperatures. Measurements done in range of 400-1100 nm for the $\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$ revealed three quite broad bands around 510 nm ($\text{Fe}^{3+/4+}$), 650 nm (strong $\text{Rh}^{3+/4+}$) and 820 nm ($\text{Rh}^{4+/5+}$) and practically one band around 620 nm (strong $\text{Rh}^{3+/4+}$) in case of BCT: Rh. Additional scanning of ordinary and extraordinary absorption coefficients clearly showed that the distribution of the absorption centres was not homogenous. We determine the electrooptic coefficients of rhodium doped BaTiO_3 ($\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$) and BCT: Rh in the visible and near IR wavelengths (633 nm and 850 nm respectively). For this purpose two experimental set-up are used: an interferometric assembly, which provides independently the r_{13} and r_{33} coefficients, and one wave assembly based on Sénarmont set-up which gives the effective electrooptic coefficient r_c and r_{42} coefficient. Coefficients of BCT: Rh, r_{13} and r_{33} save high values and show all the interest of this new photorefractive material.

MOTS CLES:

Titanate de Baryum pur (BaTiO_3), dopés Rhodium ($\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$) (matériau) et Titanate mixte Baryum-Calcium dopé Rhodium ($\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x}\text{TiO}_3:\text{Rh}$) (matériau), spectres d'absorption, indices de réfraction, constante diélectrique, électrooptiques (effet), piézoélectriques (effet), photoréfractifs (effet), longueur d'onde, température