

Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física "Gleb Wataghin"

DFESCM – Laboratório de Óptica

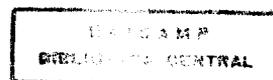
"Holografia Dinâmica em Cristais  
Fotorrefrativos"

Paulo Magno de Paiva Garcia<sup>†</sup>

Prof. Dr. Jaime Frejlich<sup>†</sup>  
ORIENTADOR

Trabalho Apresentado como Pré-Requisito para a  
Obtenção do Grau de Doutor em Ciências

Outubro – 1994



# AGRADECIMENTOS

Agradeço ao Prof. Jaime Frejlich pela orientação e apoio dados ao longo de todo o trabalho.

À minha mãe e às minhas irmãs pelo constante estímulo e paciência..

Ao Werner e à Eliane pela amizade.

E a todos do Laboratório de Óptica pela cooperação e ótimo ambiente de trabalho: Dra. Lucila Cescato e Dr. J.J. Lunazzi, Alcides, Aparecida do Carmo, João Petrúcio e Mônica, e os colegas Agnaldo, Bian, David, Eduardo, Marcelo, Neidenei e Raimundo.

Agradeço ao CNPq, FAEP e FINEP pelas bolsas de estudo e financiamento dos projetos.

## Agradecimento Especial

Agradeço à Volkswagen Stiftung pelo financiamento parcial da pesquisa realizada, e ao Prof. Krätzig pelo apoio durante minha estadia em Osnabrück e também pelas amostras de  $\text{LiNbO}_3$  utilizadas neste trabalho.

## RESUMO

Estudamos os processos de registro holográfico em dois diferentes cristais fotorrefrativos:  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  e  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Pudemos verificar a formação de hologramas associados a diferentes propriedades físicas, e desenvolvemos técnicas de estudo específicas para estes materiais aproveitando as características particulares da difração em cada caso.

Para o cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ , onde podemos ter dois tipos de rede em volume, conseguimos separar os efeitos de difração da rede fotorrefrativa daqueles da rede fotocromica utilizando técnicas seletivas de detecção e estabilização holográfica. Para os cristais de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , adaptamos o método de registro tomando em conta o forte efeito fotovoltaico presente nestes cristais. Obtivemos redes com até 100% de eficiência de difração que puderam ser mantidas indefinidamente durante a operação de um sistema auto-estabilizado de registro.

## RESUMO

Estudamos os processos de registro holográfico em dois diferentes cristais fotorrefrativos:  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  e  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Pudemos verificar a formação de hologramas associados a diferentes propriedades físicas, e desenvolvemos técnicas de estudo específicas para estes materiais aproveitando as características particulares da difração em cada caso.

Para o cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ , onde podemos ter dois tipos de rede em volume, conseguimos separar os efeitos de difração da rede fotorrefrativa daqueles da rede fotocromica utilizando técnicas seletivas de detecção e estabilização holográfica. Para os cristais de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , adaptamos o método de registro tomando em conta o forte efeito fotovoltaico presente nestes cristais. Obtivemos redes com até 100% de eficiência de difração que puderam ser mantidas indefinidamente durante a operação de um sistema auto-estabilizado de registro.

# ABSTRACT

We have studied the holographic recording processes in two different photorefractive crystals:  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  and  $\text{LiNbO}_3$ . We detected the formation of volume holograms associated to different physical properties and developed specific methods to study these materials profiting from the characteristics of the diffraction in each case.

To the  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  crystal, where it is possible to have two kinds of volume gratings, we succed to separate the diffraction effects associated to the photorefractive grating from those associated to the photochromic grating using selective detection and holographic stabilization techniques. To the  $\text{LiNbO}_3$  crystals, we made an adaptation of the method taking into account the strong photovoltaic effect exhibited by these crystals. We recorded gratings with 100% of diffraction efficiency that could be indefinitely kept during the operation of the stabilized system.

# Índice

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>1</b>
1.1	Introdução Histórica e Algumas Aplicações . . . . .	1
1.2	O Registro Holográfico . . . . .	5
1.3	Objetivo e Descrição do Trabalho . . . . .	7
<b>2</b>	<b>Propriedades dos Cristais</b>	<b>9</b>
2.1	O Cristal de $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ . . . . .	9
2.1.1	Coeficientes Eletro-Ópticos . . . . .	10
2.1.2	O Efeito Fotocrômico . . . . .	12
2.2	O Cristal de $\text{LiNbO}_3$ . . . . .	12
2.2.1	Coeficientes Eletro-Ópticos . . . . .	13
2.2.2	O Efeito Fotovoltaico . . . . .	14
<b>3</b>	<b>Teoria</b>	<b>17</b>
3.1	Acoplamento de Ondas . . . . .	17
3.2	O Transporte de Cargas . . . . .	21
<b>4</b>	<b>Mistura Seletiva de Ondas em Cristais de <math>\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}</math></b>	<b>24</b>
4.1	Introdução . . . . .	24
4.2	Modulação de Fase e Detecção Síncrona . . . . .	25
4.3	Resultados Experimentais . . . . .	29
4.3.1	Separação dos Efeitos de Fase e de Amplitude . . . . .	29
4.3.2	Apagamento Holográfico . . . . .	34
4.4	Análise dos Dados . . . . .	38
4.5	Conclusão . . . . .	41

# ÍNDICE

<b>5</b>	<b>Gravação Holográfica Auto-Estabilizada em Cristais de <math>\text{LiNbO}_3\text{:Fe}</math></b>	<b>43</b>
5.1	Introdução . . . . .	43
5.2	Método Experimental . . . . .	44
5.3	Resultados . . . . .	47
5.4	Conclusão . . . . .	53
<b>6</b>	<b>Conclusão Final</b>	<b>55</b>
<b>A</b>		<b>58</b>
A.1	Rede Fotorrefrativa . . . . .	58
A.2	Rede Fotocrômica . . . . .	60
A.3	Rede Fotorrefrativa + Rede Fotocrômica . . . . .	62
A.4	Equações de Transporte de Cargas . . . . .	65

# Lista de Símbolos

- $n$  índice de refração
- $\alpha$  coeficiente de absorção
- $r_{ij}$  coeficiente eletroóptico linear
- $\kappa_{ph}$  constante fotovoltaica
- $E_A$  campo elétrico externo aplicado
- $E_{sc}$  campo elétrico de cargas espaciais
- $E_{ph}$  campo elétrico fotovoltaico
- $K$  constante de rede
- $K_{PZT}^\Omega$  fator de conversão tensão aplicada — fase induzida do PZT
- $\Lambda$  período de rede
- $\phi$  diferença de fase entre o padrão de franjas e a rede no cristal
- $\psi$  diferença de fase aleatória
- $\psi_d$  amplitude de modulação de fase
- $d$  espessura do cristal
- $m$  contraste do padrão de franjas de interferência
- $\eta$  eficiência de difração
- $R$  e  $S$  amplitudes de ondas dos feixes luminosos
- $\aleph_+$  e  $\aleph_-$  constantes de acoplamento de ondas
- $I$  intensidade luminosa
- $\Omega/2\pi$  frequência de modulação de fase
- $\tau$  tempo característico de apagamento
- $V^\Omega$  ( $2\Omega$ ) tensão de saída do Lock-In sintonizado na frequência  $\Omega/2\pi$  ( $2\Omega/2\pi$ )
- $\mathcal{S}$  sensibilidade holográfica

# CAPÍTULO 1

## Introdução

### 1.1 Introdução Histórica e Algumas Aplicações

O efeito fotorrefrativo foi notificado pela primeira vez em 1966 por Ashkin *et al* [1] nos Laboratórios Bell. Estes trabalhavam em experimentos de geração de segundo harmônico em cristais de  $\text{LiNbO}_3$  e  $\text{LiTaO}_3$ , e ao fazer incidir feixes laser de alta potência, verificaram a ocorrência de variações localizadas do índice de refração nos cristais. Este efeito foi denominado de “dano óptico” por ser indesejado no âmbito de suas pesquisas.

Dois anos mais tarde Chen *et al* [2] sugeriram que esse fenômeno poderia ser usado como memória holográfica para o armazenamento de dados no volume do cristal, avaliando esta capacidade em torno de  $10^{12}$  bits por  $\text{cm}^3$ . Entretanto logo ficou evidente que a leitura das informações se degradava, o que fez diminuir o entusiasmo inicial. Porém mais tarde se verificaria que esta característica seria útil no processamento de imagens. Também foi Chen [3] quem propôs o primeiro modelo de migração de cargas em cristais ferroelétricos ( $\text{LiTaO}_3$ ) que podia explicar a gravação de hologramas com alta eficiência de difração nestes cristais. Neste trabalho foram apresentadas pela primeira vez as equações de taxa para as densidades de elétrons e de “traps” na amostra.

Os cristais de  $\text{LiNbO}_3$  e  $\text{LiTaO}_3$  podem apresentar fortes campos fotovoltaicos internos, por isso o papel da difusão na distribuição espacial das cargas somente passou a ser tomando em conta em 1971 por Amodei *et al* [4]. Aquele trabalho demonstrou que para pequenos espaçamentos de rede, a migração de cargas por difusão tinha uma importante influência na gravação holográfica em cristais de  $\text{BaTiO}_3$ .

Foi em 1972 que Staebler e Amodei [5] aplicaram pela primeira vez a Teoria de Ondas Acopladas – desenvolvida por Kogelnik [6] para hologramas espessos em geral – ao caso do holograma de volume em cristais fotorrefrativos. E naquele mesmo ano, estes autores [7] resolveram parcialmente o problema para a perda de informações durante a sua leitura em cristais de  $\text{LiNbO}_3$ , propondo um método de fixação holográfica via compensação iônica.

Hou *et al* [8] estudaram em 1973 a excitação eletrônica em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  (BSO) buscando conhecer a origem dos fotoportadores, e determinaram a estrutura de níveis de energia no “gap” desses cristais.

Em 1974, Glass *et al* [9] propuseram a primeira formulação matemática para a corrente fotovoltaica em cristais de  $\text{LiNbO}_3$ , ainda sem tomar em conta as suas características tensoriais.

Na segunda metade dos anos 70, apareceram os primeiros trabalhos em holografia interferométrica em tempo real que utilizavam cristais de BSO [10]. Quando então ficou demonstrado que tais cristais eram muito adequados para esta aplicação, pois não apresentavam sinais de fadiga em sucessivos ciclos de escrita e apagamento holográfico, e também não necessitavam de passar por quaisquer processos de revelação, como era feito até então com os termoplásticos.

Peltier e Micheron [11] propuseram em 1977 um modelo para descrever o desenvolvimento temporal do campo de cargas espaciais levando-se em conta as propriedades de transporte dos fotoportadores em cristais de BSO.

Em 1979 Huignard *et al* [12] demonstraram a viabilidade de realizar conjugação de fase em cristais de BSO utilizando-se feixes lasers de baixa potência ( $\approx$  mW). Ainda em 1979 Kukhtarev *et al* [13] apresentaram uma teoria bastante completa da dinâmica do fenômeno fotorrefrativo e do acoplamento de ondas, levando em conta a presença de um campo elétrico aplicado externamente ao cristal, o efeito fotovoltaico (presente nos cristais ferroelétricos) e a interação da densidade de cargas e o campo gerado pela sua própria distribuição no volume. Desde a sua proposição, este modelo vem sendo verificado e aprimorado por vários grupos de pesquisa nesta área.

Em 1982 P. Günter [14] edita o primeiro trabalho de revisão na área de materiais fotorrefrativos dando especial atenção às aplicações até então desenvolvidas para cristais ferroelétricos, como a conjugação de fase e a amplificação coerente.

O fenômeno conhecido por “running holograms” em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  sujeitos a um campo elétrico externo, foi analisado por Stepanov *et al* [15] em trabalho publicado em 1982, onde mostram que isto poderia ser aproveitado para se obter redes holográficas mais eficientes naqueles cristais. Em 1988 Stepanov e Petrov [16] publicaram uma revisão do transporte de cargas e a gravação holográfica especialmente dedicado aos cristais do grupo  $\text{Bi}_{12}(\text{Si},\text{Ge},\text{Ti})\text{O}_{20}$ .

Além das aplicações já mencionadas - armazenamento de informações e holografia interferométrica - outras aplicações para os cristais fotorrefrativos foram desenvolvidas para o processamento de imagens tais como a adição e subtração de imagens coerentes [17] e a detecção de contornos [18].

Estes cristais ainda podem ser utilizados para aumentar a energia de saída de um laser compensando distorções da luz dentro da cavidade, geradas no meio de ganho [19].

Em 1985 Ochoa *et al* [20] demonstrou a aplicação de cristais fotorrefrativos na detecção de defeitos em fotomáscaras usadas em microeletrônica.

Pauliat *et al* [21] mostraram a viabilidade de se utilizar cristais fotorrefrativos ( $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  para fazer a interconecção de matrizes de fibras ópticas através da deflexão dinâmica de feixes laser.

A modulação do acoplamento de ondas através da aplicação de campos AC ao cristal foi demonstrada por Powell *et al* [22].

Novas técnicas de interferometria, utilizando o efeito fotocromico em cristais de BSO para gravar uma rede permanente, e então fazer a gravação em tempo real pelos métodos usuais. Com isso se consegue fazer síntese de imagens, operações lógicas e chaveamento óptico com cristais de BSO [23, 24].

Algumas aplicações também foram realizadas na área comumente chamada de “Novelty Filters”. Segundo Stepanov [25], estes são dispositivos utilizados para a seleção ou detecção de partes de uma imagem que estejam variando no tempo ou no espaço, eliminando-se a imagem estática de fundo. Dois interessantes exemplos em que foram usados cristais de BSO são apresentados nas referências [26] e [27].

Uma aplicação muito interessante para o efeito fotorefrativo é a construção de um “lock-in” óptico proposto por Khoury *et al* [28], obtido partir da mistura de quatro ondas em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ .

Recentemente Mok [29] obteve o registro de 5 mil hologramas em uma amostra de  $\text{LiNbO}_3$ , demonstrando a utilidade deste material para aplicações em memórias ópticas.

No início de 94 Stepanov [25] publicou um *Review* especialmente dedicado às aplicações de cristais fotorrefrativos, entre as quais ele destaca:

- Sistemas de memória óptica: armazenamento de arquivos e memória associativa.
- Sistemas de processo de informação óptica: análise de correlação, detecção de contornos, filtros “não-usuais” (novelty filters), elementos de óptica digital e redes neurais.
- Sistemas de comunicação óptica: defletores e interconecção óptica.
- Metrologia: sistemas de interferometria holográfica, fotodetetores adaptáveis para vibrômetros a laser, sensores de fibra óptica

## 1.2 O Registro Holográfico

O registro holográfico em cristais se dá principalmente através do efeito fotorrefrativo. Como o nome diz, os cristais que apresentam essa propriedade, podem ter o seu índice de refração alterado pela exposição à um padrão de luz, em geral não uniforme.

Na figura abaixo apresentamos esquematicamente como acontece o registro de uma rede de difração via a modulação de índice em um cristal que tenha apenas um tipo de fotoportador (elétrons) e que não esteja sob a ação de um campo elétrico externo.

Este é o modelo mais simples já proposto para explicar a formação de redes de difração holográfica em cristais. Veremos mais à frente que outros mecanismos de registro também podem ocorrer, como por exemplo a formação de uma rede associada à geração de “buracos” como fotoportadores e a gravação de uma rede de difração originada da modulação do coeficiente de absorção do cristal. O registro pode ser feito ainda sob a ação de um campo elétrico aplicado externamente, o que muda a relação de fase entre o padrão luminoso e a rede resultante. No caso de cristais ferroelétricos como o  $\text{LiNbO}_3$ , a presença de uma corrente de natureza fotovoltaica é equivalente a ter um campo externo muito intenso, o que tem forte influência sobre o registro.

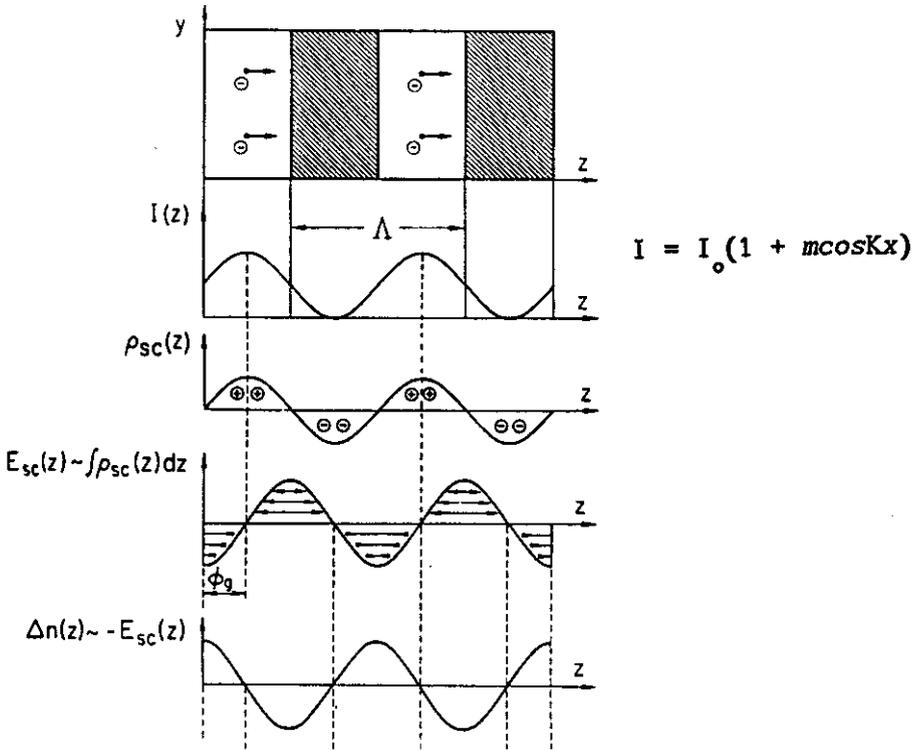


Figura 1.1: Processo esquemático da formação de uma rede de difração de fase no volume do cristal.

$I$  = intensidade luminosa,  
 $\rho$  = densidade espacial de cargas,  
 $E_{sc}$  = campo elétrico de cargas espaciais,  
 $\Delta n$  = variação induzida no índice de refração.

- a – Projeta-se sobre o cristal duas ondas planas coerentes, do que resulta a formação de um padrão de franjas de interferência cuja intensidade está modulada senoidalmente.  $K = 2\pi/\Delta$ , onde  $\Delta$  é o período das franjas, e  $m$  o seu contraste.
- b – Nas regiões claras ocorre a excitação de elétrons para a banda de condução que se difundem pelo material, concentrando-se nas regiões escuras. Assim temos uma modulação da densidade de cargas no volume do cristal.
- c– Esta modulação de cargas por sua vez dá origem a um campo elétrico também modulado espacialmente, denominado campo de cargas espaciais ( $E_{sc}$ ).
- d– Finalmente, este campo elétrico altera o índice de refração do cristal via efeito eletroóptico, dando-se então a formação da rede de difração de fase via modulação do índice no volume do material.

### 1.3 Objetivo e Descrição do Trabalho

O objetivo desse trabalho é o estudo do registro holográfico em materiais fotorrefrativos, especialmente em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  e de  $\text{LiNbO}_3$ , buscando determinar os mecanismos físicos envolvidos neste processo. A partir desse conhecimento, procuramos aproveitar suas características particulares para aprimorar os métodos de registro além de desenvolver novas técnicas para a pesquisa e aproveitamento desses materiais.

Visto que a maioria das aplicações práticas do processamento óptico em geral devem utilizar baixas potências luminosas, existe naturalmente uma busca contínua por materiais cada vez mais sensíveis, que apresentem rápida resposta às variações de intensidade. Entretanto, no nosso caso, e na maioria das aplicações em que se usa feixes laser expandidos de baixa intensidades ( $\approx mW/cm^2$ ), os tempos de registro variam de poucos segundos a até horas. Neste caso, se torna primordial o uso de algum sistema de estabilização que possa compensar as perturbações do ambiente. Daí vem a motivação para a ênfase que damos no nosso trabalho aos métodos de estabilização holográfica.

O trabalho experimental que desenvolvemos está apresentado nos capítulos 4 e 5. No capítulo 4 descrevemos uma nova técnica que chamamos de Mistura Seletiva de Ondas, pois esta permite a detecção seletiva da difração por uma rede de fase ou de amplitude que estejam simultaneamente gravadas em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ . E no capítulo 5 apresentamos os resultados do registro holográfico estabilizado de redes de difração com eficiência de 100% em cristais de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ .

No capítulo 2 apresentamos várias características dos cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  e de  $\text{LiNbO}_3$ . Cristais estes que estão na base dos trabalhos experimentais desenvolvido nos capítulos subseqüentes.

Como base teórica para o nosso trabalho, apresentamos no capítulo 3 os fundamentos da mistura de duas ondas em um meio que apresenta simultaneamente uma rede de difração resultante da modulação de índice de refração, e uma rede resultante da modulação da absorção do meio. Aí também procuramos estudar alguns aspectos da dinâmica das cargas envolvidas no processo de registro.

Participação do autor em publicações  
no período de doutoramento

Relacionadas a esta tese:

- “Selective Two Wave Mixing”  
J. Frejlich, A. A. Kamshilin, P.M. Garcia *Opt. Lett.* **17**, 249 (1992)
- “Electrophotochromic Gratings in Photorefractive BTO Crystals”  
A. A. Kamshilin, J. Frejlich, P. M. Garcia *Appl. Opt.* **31**, 1787 (1992)
- “Quasipermanent Hole-Photorefractive and Photochromic Effects in  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  Crystals”  
J. Frejlich, P. M. Garcia *Appl. Phys. A* **55**, 49 (1992)
- “Deeply Modulated Stabilized Photorefractive Recording in  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ ”  
J. Frejlich, P. M. Garcia, A. A. Freschi *Opt. Mat.* (Jan. 95)
- “Self-Stabilized Holographic Recording in  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  Crystals”  
P. M. Garcia, K. Buse, D. Kip, J. Frejlich *Opt. Comm.* (Submetido)

Não faz parte dessa tese:

- “Anisotropic Two- and Four-Wave Mixing in Planar  $\text{LiTaO}_3:\text{Ti}:\text{Fe}$  Optical Waveguides”  
D. Kip, T. Bartholomäus, P. M. Garcia and E. Krätzig *JOSA B* (Aceito)

# CAPÍTULO 2

## Propriedades dos Cristais

### 2.1 O Cristal de $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$

As propriedades básicas dos cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  (BTO) estão resumidas na Tabela(2.1). Os dados foram obtidos, em sua maior parte, da Ref.[16].

Sistema		cúbico
Grupo de Simetria		23
Parâmetro de Rede [Å]		10.176
Densidade [g/cm <sup>3</sup> ]		9.1
Ponto de Fusão [°C]		875
Coef. de Absorção [cm <sup>-1</sup> ]	$\lambda=632.8\text{nm}$	4 – 6
	$\lambda=514.5\text{nm}$	11.6
Índice de Refração	$\lambda=632.8\text{nm}$	2.58
	$\lambda=514.5\text{nm}$	~ 2.64
Atividade Óptica [graus/mm]	$\lambda=632.8\text{nm}$	6.3
	$\lambda=514.5\text{nm}$	12.3
Constante Dielétrica		47
Coef. Eletroóptico ( $r_{41}$ ) [pm/V]		5 (*)

(\*) Para o cristal de BSO

### 2.1.1 Coeficientes Eletro-Ópticos

A variação de índice de refração está associado ao valor campo elétrico local através do coeficiente eletroóptico, portanto é importante conhecer as propriedades de simetria do tensor eletroóptico do cristal.

Em geral podemos caracterizar as variações induzidas nos índices de refração de um cristal eletro-óptico pela seguinte expressão [30]:

$$\Delta \left( \frac{1}{n^2} \right)_{ij} = r_{ijk} E_k + R_{ijkl} E_k E_l \quad (2.1)$$

onde  $r_{ijk}$  é o tensor eletro-óptico linear – associado ao efeito Pockels, e  $R_{ijkl}$  é o tensor eletro-óptico quadrático – associado ao efeito Kerr (que neste caso não vamos considerar). Devido ao fato de o tensor  $(1/n^2)_{ij}$  ser simétrico em relação à troca de índices  $i$  e  $j$ , é possível escrever aqueles tensores numa notação reduzida, de modo que para cristais que apresentam estrutura cúbica com grupo de simetria 23 temos:

$$(r_{ij}) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{52} & 0 \\ 0 & 0 & r_{63} \end{bmatrix} \quad (2.2)$$

onde temos  $r_{63} = r_{52} = r_{41}$ , e a equação do elipsóide de índices fica:

$$\frac{X_1^2}{n_o^2} + \frac{X_2^2}{n_o^2} + \frac{X_3^2}{n_o^2} + 2r_{41} E_1 X_2 X_3 + 2r_{41} E_2 X_1 X_3 + 2r_{41} E_3 X_1 X_2 = 0 \quad (2.3)$$

onde  $X_3$  é paralelo ao eixo  $[001]$  do cristal, e  $X_1$  e  $X_2$  são ortogonais entre si e bissetores dos eixos  $[1\bar{1}0]$  e  $[110]$ .

Usualmente trabalhamos na configuração em que o padrão de luz é projetado na face  $[110]$  (ou  $[1\bar{1}0]$ ), e portanto o campo elétrico interno ou externo está ao longo do eixo  $[1\bar{1}0]$  (ou  $[110]$ ). Fazendo uma rotação de  $45^\circ$  em torno do eixo  $X_3$ , de modo que os eixos

$X_1, X_2, X_3$  coincidam com os eixos cristalinos, e em seguida uma nova rotação de  $45^\circ$  em torno do eixo  $[1\bar{1}0]$ , vamos obter novos eixos  $x, y, z$  em função dos quais teremos:

$$x^2 \left( \frac{1}{n_o^2} - r_{41}E \right) + y^2 \left( \frac{1}{n_o^2} + r_{41}E \right) + \frac{z^2}{n_o^2} = 1 \quad (2.4)$$

Observando que:

$$\frac{1}{n_x^2} = \frac{1}{n_o^2} - r_{41}E \quad \text{onde: } r_{41}E \ll 1$$

podemos escrever:

$$n_x = n_o \left( 1 + \frac{r_{41}n_o^2 E}{2} \right) \quad (2.5)$$

$$n_y = n_o \left( 1 - \frac{r_{41}n_o^2 E}{2} \right) \quad (2.6)$$

$$n_z = n_o \quad (2.7)$$

de modo que temos:

$$\Delta n = \frac{r_{41}n_o^2 E}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (2.8)$$

que nos dá a variação do índice de refração, em torno do índice médio ( $n_o$ ), em relação aos eixos  $x, y, z$ .

Quando analisamos as Equações de Ondas Acopladas (próximo capítulo) utilizando a expressão (2.8) para a amplitude de modulação de índice, verifica-se que a polarização do feixe difratado deve depender daquela do feixe incidente<sup>1</sup>. Assim, a partir da polarização do feixe incidente, é possível escolher se as polarizações dos feixes transmitido e difratado, na face de saída do cristal, serão ortogonais ou paralelas entre si. Iremos fazer uso dessa propriedade na Mistura Seletiva de Ondas – cap. 4.

<sup>1</sup>Uma análise cuidadosa deste fenômeno está descrita na dissertação de mestrado deste autor [31].

### 2.1.2 O Efeito Fotocrômico

A gravação de informações em cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  e  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  através de variações induzidas no coeficiente de absorção já foram sugeridas em 1979 [32]. Mas somente em 1986, foi apresentado um modelo para a gravação semi-permanente, onde ocorre a compensação de cargas via a condução de buracos [33]. Também foram feitos estudos visando a combinação dos efeitos de uma rede de difração fotorrefrativa (modulação de índice de refração) e de uma rede fotocrômica (modulação de absorção) gravadas simultaneamente no mesmo cristal [24].

Existem vários trabalhos que tratam do efeito fotocrômico em cristais, podemos citar como exemplo: Brost *et al* [34], Bylsma *et al* [35], Nowak *et al* [36], e Cudney *et al* [37], entre outros. Na maioria deles a variação da absorção é explicada através de um modelo envolvendo dois centros doadores-aceitadores na amostra, onde se tem diferentes seções de choque associadas à excitação e à recombinação dos portadores.

## 2.2 O Cristal de $\text{LiNbO}_3$

O cristal de  $\text{LiNbO}_3$  é ferroelétrico e uniaxial à temperatura ambiente. A temperatura em que ocorre a transição para a ferroeletricidade é  $T_c \approx 1200^\circ\text{C}$ . Um cristal é considerado *ferroelétrico* quando tem dois ou mais estados orientacionais na ausência de um campo elétrico, podendo ocorrer a polarização espontânea no cristal. Entretanto esta pode ser alterada pela ação de um campo elétrico externo [38] (pg.9). (De acordo com Nassau *et al* [39] pode-se polarizar o cristal a  $1210^\circ\text{C}$  aplicando-se um campo de apenas  $5\text{V}/\text{cm}$ )

Os cristais  $\text{LiNbO}_3$  e  $\text{LiTaO}_3$  não têm a estrutura das “perovskitas” típicas, são redes do tipo  $\text{ABO}_3$  com octaedro de oxigênio (embora alguns autores tratem o  $\text{LiNbO}_3$  como “perovskitas” ferroelétricas [40]).

Algumas propriedades dos cristais de  $\text{LiNbO}_3$  (LNO) são apresentadas na Tabela(2.2).

Dados para o Cristal de  $\text{LiNbO}_3$

Sistema	trigonal
Grupo de Simetria	3m
Índice de Refração	$n_o = 2.287, n_e = 2.192$ (*) [41] $n_o = 2.33, n_e = 2.25$ (**) [42]
Coef. Eletroóptico ( $10^{-12}\text{m/V}$ )	$r_{13}=8.6, r_{33}=30.8$ [43]
Constante Dielétrica ( $\epsilon^{st}$ )	32 [43]
Absorção ( $\text{cm}^{-1}$ )	0.01 - 100 [41]
Constante Fotov. ( $\kappa_{\text{ph}}$ ) (m/V)	$\approx 3 \times 10^{-11}$ [9]

(\*)  $\lambda=632.8$  nm, (\*\*)  $\lambda=514.5$  nm

## 2.2.1 Coeficientes Eletro-Ópticos

No caso do cristal de  $\text{LiNbO}_3$  que apresenta estrutura trigonal com grupo de simetria  $3m$  [44, 45], temos:

$$(r_{ij}) = \begin{bmatrix} 0 & -r_{22} & r_{13} \\ 0 & r_{22} & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{51} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ -r_{22} & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (2.9)$$

onde  $r_{12} = r_{61} = r_{22}$ ,  $r_{51} = r_{42}$ , e  $r_{13} = r_{23}$  e a equação do elipsóide de índices é:

$$\begin{aligned} & \left( \frac{1}{n_o^2} - r_{22}E_2 + r_{13}E_3 \right) x_1^2 + \left( \frac{1}{n_o^2} + r_{22}E_2 + r_{13}E_3 \right) x_2^2 + \left( \frac{1}{n_e^2} + r_{33}E_3 \right) x_3^2 \\ & + 2(-r_{22}E_1) x_1x_2 + 2(r_{51}E_2) x_2x_3 + 2(r_{51}E_1) x_3x_1 = 1 \end{aligned} \quad (2.10)$$

onde  $E_1$ ,  $E_2$ , e  $E_3$  são as componentes do campo elétrico nas direções  $x_1$ ,  $x_2$  e  $x_3$  respectivamente.  $n_o$  e  $n_e$  são os índices de refração ordinário e extraordinário.

Da Eq.(2.10) se pode perceber que para a configuração padrão utilizada em holografia, em que temos os campos elétricos aplicados na direção de  $x_3$ , não ocorre rotação do elipsóide de índices, pois anulam-se os termos cruzados, mas apenas mudança no comprimento dos seus eixos, e neste caso o cristal continua uniaxial.

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13}E_3\right) x_1^2 + \left(\frac{1}{n_o^2} + r_{13}E_3\right) x_2^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + r_{33}E_3\right) x_3^2 = 1 \quad (2.11)$$

Portanto, para um feixe com polarização extraordinária teremos uma modulação de índice de:

$$\Delta n_3 = \Delta n_e = \frac{n_e^3 r_{33} E}{2} \quad (2.12)$$

E para um feixe com polarização ordinária teremos

$$\Delta n_1 = \Delta n_2 = \Delta n_o = \frac{n_o^3 r_{13} E}{2} \quad (2.13)$$

## 2.2.2 O Efeito Fotovoltaico

O efeito fotovoltaico deriva de um potencial assimétrico dentro da célula unitária. Para temperatura  $T < T_c$ , o cátion dentro do octaedro de oxigênio se apresenta fortemente deslocado do seu centro na direção do eixo polar, o que leva a uma forte polarização do cristal [38]. Assim, segundo Günter [41], mesmo sem a aplicação de um campo elétrico externo, pode ser produzida uma fotocorrente nestes cristais, uma vez que os fotoelétrons excitados para a banda de condução apresentam uma velocidade com direção preferencial ao longo do eixo polar. A corrente fotovoltaica é dada por:

$$j^{ph} = \beta_{ijk} E_j E_k^* \quad (2.14)$$

onde  $E_j$  e  $E_k$  são as componentes do campo da onda luminosa, e  $\beta_{ijk}$  o tensor fotovoltaico. Na maioria dos casos em que a rede de difração em cristais eletro-ópticos é formada pelo transporte de cargas devido ao campo fotovoltaico, esta faz uso da componente  $\beta_{333}$ , e neste caso temos:

$$j^{ph} = -\beta_{333}E_3E_3^* = -\beta_{333}I = -\kappa\alpha I \quad (2.15)$$

onde  $I$  é a intensidade luminosa,  $\alpha$  é o coeficiente de absorção para a luz polarizada na direção  $x_3$ , que usualmete denominamos de eixo  $\vec{c}$ , e  $\kappa$  é uma constante característica do cristal e de sua dopagem. Esta última igualdade é válida somente para pequenos comprimentos de transporte de elétrons [46].

No caso de dopagem do  $\text{LiNbO}_3$  com Fe, foi observado que a densidade de corrente fotovoltaica é proporcional à concentração de  $\text{Fe}^{2+}$  agindo como doadores (traps cheios) [9]. Enquanto que a condutividade  $\sigma$  é proporcional à razão  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}]$  na amostra.

Embora fale-se em um campo elétrico fotovoltaico,  $E_{ph}$  não é realmente um campo elétrico, mas o valor da corrente fotovoltaica dividido pela condutividade do material [41](pg.80). Se poderia pensar que devido ao fluxo de portadores, se verificaria um acúmulo de cargas nas faces  $\pm c$  do cristal. Entretanto, de acordo com Günter [14] (pg. 212), nenhuma concentração apreciável de cargas jamais foi verificada. O que ocorre é que a resistência superficial é algumas centenas de vezes menor do que a resistência volumétrica, e a corrente de superfície impede que exista realmente uma situação de circuito aberto em  $\text{LiNbO}_3$ .

Esta pode ser uma das razões pelas quais a voltagem necessária para compensar o campo fotovoltaico no volume do cristal não seja nominalmente igual a  $E_{ph}$  [47].

Stepanov afirma em [25] pg. 53, em situações em que o campo aplicado é maior que o campo de difusão ( $E_o \gg E_D$ ) o holograma é do tipo local, e independe da frequência espacial:  $E_{sc}^{sat} = -mE_o$ , desde que se esteja longe da saturação. Afirma também que no caso de cristais com efeito fotovoltaico, o mecanismo de gravação é similar ao mecanismo padrão de "drift" na aproximação de pequeno comprimento de arraste, e se pode simplesmente substituir  $E_o$  por  $E_{ph}$ .

onde  $E_j$  e  $E_k$  são as componentes do campo da onda luminosa, e  $\beta_{ijk}$  o tensor fotovoltaico. Na maioria dos casos em que a rede de difração em cristais eletro-ópticos é formada pelo transporte de cargas devido ao campo fotovoltaico, esta faz uso da componente  $\beta_{333}$ , e neste caso temos:

$$j^{ph} = -\beta_{333}E_3E_3^* = -\beta_{333}I = -\kappa\alpha I \quad (2.15)$$

onde  $I$  é a intensidade luminosa,  $\alpha$  é o coeficiente de absorção para a luz polarizada na direção  $x_3$ , que usualmete denominamos de eixo  $\vec{c}$ , e  $\kappa$  é uma constante característica do cristal e de sua dopagem. Esta última igualdade é válida somente para pequenos comprimentos de transporte de elétrons [46].

No caso de dopagem do  $\text{LiNbO}_3$  com Fe, foi observado que a densidade de corrente fotovoltaica é proporcional à concentração de  $\text{Fe}^{2+}$  agindo como doadores (traps cheios) [9]. Enquanto que a condutividade  $\sigma$  é proporcional à razão  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}]$  na amostra.

Embora fale-se em um campo elétrico fotovoltaico,  $E_{ph}$  não é realmente um campo elétrico, mas o valor da corrente fotovoltaica dividido pela condutividade do material [41](pg.80). Se poderia pensar que devido ao fluxo de portadores, se verificaria um acúmulo de cargas nas faces  $\pm c$  do cristal. Entretanto, de acordo com Günter [14] (pg. 212), nenhuma concentração apreciável de cargas jamais foi verificada. O que ocorre é que a resistência superficial é algumas centenas de vezes menor do que a resistência volumétrica, e a corrente de superfície impede que exista realmente uma situação de circuito aberto em  $\text{LiNbO}_3$ .

Esta pode ser uma das razões pelas quais a voltagem necessária para compensar o campo fotovoltaico no volume do cristal não seja nominalmente igual a  $E_{ph}$  [47].

Stepanov afirma em [25] pg. 53, em situações em que o campo aplicado é maior que o campo de difusão ( $E_o \gg E_D$ ) o holograma é do tipo local, e independe da frequência espacial:  $E_{sc}^{sat} = -mE_o$ , desde que se esteja longe da saturação. Afirma também que no caso de cristais com efeito fotovoltaico, o mecanismo de gravação é similar ao mecanismo padrão de "drift" na aproximação de pequeno comprimento de arraste, e se pode simplesmente substituir  $E_o$  por  $E_{ph}$ .

onde  $E_j$  e  $E_k$  são as componentes do campo da onda luminosa, e  $\beta_{ijk}$  o tensor fotovoltaico. Na maioria dos casos em que a rede de difração em cristais eletro-ópticos é formada pelo transporte de cargas devido ao campo fotovoltaico, esta faz uso da componente  $\beta_{333}$ , e neste caso temos:

$$j^{ph} = -\beta_{333}E_3E_3^* = -\beta_{333}I = -\kappa\alpha I \quad (2.15)$$

onde  $I$  é a intensidade luminosa,  $\alpha$  é o coeficiente de absorção para a luz polarizada na direção  $x_3$ , que usualmete denominamos de eixo  $\vec{c}$ , e  $\kappa$  é uma constante característica do cristal e de sua dopagem. Esta última igualdade é válida somente para pequenos comprimentos de transporte de elétrons [46].

No caso de dopagem do  $\text{LiNbO}_3$  com Fe, foi observado que a densidade de corrente fotovoltaica é proporcional à concentração de  $\text{Fe}^{2+}$  agindo como doadores (traps cheios) [9]. Enquanto que a condutividade  $\sigma$  é proporcional à razão  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}]$  na amostra.

Embora fale-se em um campo elétrico fotovoltaico,  $E_{ph}$  não é realmente um campo elétrico, mas o valor da corrente fotovoltaica dividido pela condutividade do material [41](pg.80). Se poderia pensar que devido ao fluxo de portadores, se verificaria um acúmulo de cargas nas faces  $\pm c$  do cristal. Entretanto, de acordo com Günter [14] (pg. 212), nenhuma concentração apreciável de cargas jamais foi verificada. O que ocorre é que a resistência superficial é algumas centenas de vezes menor do que a resistência volumétrica, e a corrente de superfície impede que exista realmente uma situação de circuito aberto em  $\text{LiNbO}_3$ .

Esta pode ser uma das razões pelas quais a voltagem necessária para compensar o campo fotovoltaico no volume do cristal não seja nominalmente igual a  $E_{ph}$  [47].

Stepanov afirma em [25] pg. 53, em situações em que o campo aplicado é maior que o campo de difusão ( $E_o \gg E_D$ ) o holograma é do tipo local, e independe da freqüência espacial:  $E_{sc}^{sat} = -mE_o$ , desde que se esteja longe da saturação. Afirma também que no caso de cristais com efeito fotovoltaico, o mecanismo de gravação é similar ao mecanismo padrão de "drift" na aproximação de pequeno comprimento de arraste, e se pode simplesmente substituir  $E_o$  por  $E_{ph}$ .

Alguns valores de  $E_{ph}$  citados na literatura:

- $1 < E_{ph} < 10 (\times 10^6 V/m)$ , [9]
- $0.04 < E_{ph} < 1.5 (\times 10^6 V/m)$ , [14] pag. 214
- $E_{ph} \approx 10^7 (V/m)$  em circuito aberto, [41] pg.141

# CAPÍTULO 3

## Teoria

### 3.1 Acoplamento de Ondas

Nessa secção analisaremos a Teoria de Ondas Acopladas (TOA) [6] para o caso em que ocorre a presença simultânea de uma rede de difração de origem fotorrefrativa, e de uma rede de natureza fotocrômica no volume de um cristal.

A TOA está apresentada de maneira muito clara na referência citada acima, entretanto vale dizer que ela foi formulada partindo-se de algumas hipóteses básicas que devem ser ressaltadas:

- O índice de refração e o coeficiente de absorção do meio de registro holográfico estão modulados senoidalmente na forma:

$$n(x) = n_0 + n_1 m \cos(K_n x + \phi_n) \quad (3.1)$$

$$\alpha(x) = \alpha_0 + \alpha_1 m \cos(K_a x + \phi_a) \quad (3.2)$$

onde  $n_0$  e  $\alpha_0$  são respectivamente os valores médios do índice de refração e do coeficiente de absorção no meio<sup>1</sup>, e  $n_1$  e  $\alpha_1$  as suas amplitudes de modulação.  $K_n$  e  $K_a$  são os vetores de rede, e neste caso são iguais pois derivam do mesmo padrão de interferência,  $m$  é o contraste das franjas de interferência que geram estas modulações

---

<sup>1</sup>É importante esclarecer que na formulação de Kogelnik, o coeficiente de absorção está associado à absorção de **amplitude**, enquanto que usualmente tratamos da absorção de **intensidade**. Neste trabalho estaremos tratando sempre da absorção de intensidade. Observar apenas que  $\alpha_{INT} = 2\alpha_{AMP}$ .

(a expressão será dada adiante) e finalmente  $\phi_n$  e  $\phi_a$  são as diferenças de fase entre as redes e o padrão de interferência projetado no cristal.

- Ocorre lenta variação das intensidades dos feixes ao longo das respectivas direções de propagação, ou seja, o coeficiente de absorção e o intercâmbio de energia entre os feixes são pequenos.
- Ambos os feixes estão nas condições de Bragg, e tanto os planos de índice de refração constante quanto os planos de coeficiente de absorção constante estão ortogonais à superfície do cristal.
- As redes gravadas são espessas:  $d \gg \Lambda$ , onde  $d$  é a espessura do cristal ( $\simeq$  espessura da rede), e  $\Lambda$  é o período da rede. Neste caso somente a primeira ordem de difração é considerada.

Com base nas hipóteses apresentadas acima e considerando a presença de duas ondas planas se propagando nas condições de Bragg no interior do cristal, podemos verificar que as suas amplitudes estão associadas através das Equações de Ondas Acopladas (EOA). Levando-se em conta a possibilidade de que as fases entre as redes gravadas e o padrão de interferência possam variar, vamos obter:

$$\cos\theta \frac{dR}{dz} + \frac{\alpha_0}{2} R = -i\aleph_+ mS \quad (3.3)$$

$$\cos\theta \frac{dS}{dz} + \frac{\alpha_0}{2} S = -i\aleph_- mR \quad (3.4)$$

onde  $R$  e  $S$  são as amplitudes das ondas no interior do cristal e dependem da variável  $z$ , ao longo da profundidade da rede, e da absorção média  $\alpha_0$ .  $m$  é o contraste do padrão de franjas resultante da interferência das ondas  $R$  e  $S$ , e é dado por:  $m = 2|R||S|/(R^2 + S^2)$ .

$\aleph_+$  e  $\aleph_-$  são as Constantes de Acoplamento de Ondas e são definidas como:

$$\aleph_+ = \left( \frac{\pi}{\lambda} n_1 e^{i\phi_n} - i \frac{\alpha_1}{4} e^{i\phi_a} \right) e^{i\psi} \quad (3.5)$$

$$\aleph_- = \left( \frac{\pi}{\lambda} n_1 e^{-i\phi_n} - i \frac{\alpha_1}{4} e^{-i\phi_a} \right) e^{-i\psi} \quad (3.6)$$

sendo que  $\lambda$  é o comprimento de onda da luz no vácuo, e  $\psi$  uma fase aleatória entre o padrão de luz e as redes presentes no cristal, podendo estar associada às perturbações do sistema.

É interessante definirmos aqui as expressões para as eficiências de difração de cada uma das redes. A partir desta teoria (TOA) temos [6]:

$$\text{Rede de fase : } \eta_P = \exp\left(-\frac{\alpha_0 d}{\cos\theta}\right) \sin^2\left(\frac{\pi n_1 d}{\lambda \cos\theta}\right) \quad (3.7)$$

$$\text{Rede de amplitude : } \eta_A = \exp\left(-\frac{\alpha_0 d}{\cos\theta}\right) \sinh^2\left(\frac{\alpha_1 d}{4\cos\theta}\right) \quad (3.8)$$

onde  $\theta$  é o ângulo entre a direção de propagação de cada feixe e a normal no interior do cristal. Para se obter estas expressões é feita a razão entre o valor da intensidade difratada pela respectiva rede, e a intensidade do feixe incidente.

Para descontar o efeito da absorção de volume nas EOA, que afeta igualmente ambos os feixes, é conveniente fazermos as seguintes substituições:

$$R(z, \alpha) = R_1(z) \exp\left(-\frac{\alpha_0 d}{2\cos\theta}\right) \quad (3.9)$$

$$S(z, \alpha) = S_1(z) \exp\left(-\frac{\alpha_0 d}{2\cos\theta}\right) \quad (3.10)$$

e neste caso as Eqs.(3.3) e (3.4) podem ser reescritas como:

$$\cos\theta \frac{dR_1(z)}{dz} = -i\aleph_+ m S_1(z) \quad (3.11)$$

$$\cos\theta \frac{dS_1(z)}{dz} = -i\aleph_- m R_1(z) \quad (3.12)$$

de onde podemos obter que:

$$\frac{d^2 R_1(z)}{dz^2} = -\frac{N_+ N_-}{\cos\theta} m^2 R_1(z) \quad (3.13)$$

$$\frac{d^2 S_1(z)}{dz^2} = -\frac{N_+ N_-}{\cos\theta} m^2 S_1(z) \quad (3.14)$$

Para se obter uma solução geral da Eq.(3.13, 3.14), seria necessário manter a possibilidade de que as fases entre as redes pudessem variar livremente, entretanto, para esse caso os cálculos se complicam muito, e por uma questão de simplicidade vamos considerar aqui o caso em que o cristal utilizado como meio de registro não apresente efeito fotovoltaico, como é o caso do  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ , e que também não esteja sob a ação de um campo elétrico externo. Neste caso é usual que tenhamos  $\phi_a = 0$  e  $\phi_n = \pi/2$ , e deste modo teremos das Eqs. (3.6,3.5):

$$N_+ = ie^{i\psi} \left( \frac{\pi n_1}{\lambda} - \frac{\alpha_1}{4} \right) = ie^{i\psi} \Delta \quad (3.15)$$

$$N_- = -ie^{-i\psi} \left( \frac{\pi n_1}{\lambda} + \frac{\alpha_1}{4} \right) = -ie^{-i\psi} \Sigma \quad (3.16)$$

onde:

$$\Delta = \frac{\pi n_1}{\lambda} - \frac{\alpha_1}{4} \quad e \quad \Sigma = \frac{\pi n_1}{\lambda} + \frac{\alpha_1}{4} \quad (3.17)$$

ainda das Eqs.(3.15, 3.16 temos que:

$$N_- N_+ = \Delta \Sigma = \left( \frac{\pi n_1}{\lambda} \right)^2 + \left( \frac{\alpha_1}{4} \right)^2 \quad (3.18)$$

Assim vemos que as soluções das Eqs.(3.13) e (3.14) se compõem de uma parte associada à rede fotorrefrativa e outra associada ao efeito fotocromico. No Apêndice-A desenvolvemos com detalhe os casos em que temos: **a** - somente uma rede fotorrefrativa no cristal, **b** - somente uma rede fotocromica e **c** - simultaneamente uma rede fotorrefrativa e uma fotocromica. Para este último caso, concluímos que as intensidades totais transmitidas pelo cristal serão:

$$I_R = I_R^o + (\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P})^2 I_S^o - 2(\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_R^o I_S^o} \cos\psi \quad (3.19)$$

$$I_S = I_S^o + (\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P})^2 I_R^o - 2(\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_R^o I_S^o} \cos\psi \quad (3.20)$$

No capítulo 4 veremos como será possível, através da modulação da fase  $\psi$  que aparece nas equações acima, separar os sinais associados à rede fotorrefrativa dos sinais da rede fotocrômica.

## 3.2 O Transporte de Cargas

Nos cristais fotorrefrativos, o que determina a formação das redes de difração em volume é a dinâmica dos fotoportadores. Vamos analisar aqui, novamente o caso mais simples, em que temos apenas uma espécie de portador (elétrons), o que servirá de base para a nossa análise.

Em experimentos de mistura de duas ondas, ao se projetar duas frentes de ondas planas de intensidades  $I_R$  e  $I_S$  sobre o cristal, o padrão de interferência resultante é um conjunto de franjas paralelas que pode ser representado por:

$$I = I_o[1 + m\cos(Kx + \psi)] \quad (3.21)$$

onde  $I_o$  é a intensidade média entre os feixes,  $m$  a visibilidade das franjas e  $K$  o módulo do vetor de rede. Se substituirmos  $m = |m|e^{i\psi}$ , podemos escrever:

$$I = I_o + \frac{I_o}{2} (me^{iKx} + m^*e^{-iKx}) \quad (3.22)$$

Ao se projetar este padrão de luz é sobre o cristal ocorrerá a excitação de fotoelétrons para banda de condução ( $n(x)$ ), e também a geração de centros aceitadores positivamente carregados ( $N_A(x)$ ), que darão origem ao campo de cargas espaciais  $E_{sc}(x, t)$ . No caso em que  $m \ll 1$ , podemos representar cada uma dessas grandezas pela sua primeira componentes de Fourier:

$$n(x) = n_o + \frac{n_o}{2} (ae^{iKx} + a^*e^{-iKx}) \quad (3.23)$$

onde  $n_o$  é a densidade média de fotoelétrons na banda de condução, e  $a$  um fator associado à sua modulação. E teremos uma expressão semelhante para os centros aceitadores:

$$N_A(x) = N_A + \frac{N_A}{2} (Ae^{iKx} + A^*e^{-iKx}) \quad (3.24)$$

Para o campo elétrico teremos:

$$E(x) = E_A + E_{sc}(x) \quad \text{com} \quad (3.25)$$

$$E_{sc}(x) = \frac{1}{2} (E_{sc}e^{iKx} + E_{sc}^*e^{-iKx}) \quad (3.26)$$

onde  $E_A$  é o campo elétrico aplicado externamente ao cristal, e  $E_{sc}$  a amplitude de modulação do campo total, que por sua vez também depende do campo  $E_A$ , como veremos adiante.

Embora não iremos trabalhar sistematicamente com a aplicação de campos externos aos cristais, é conveniente fazer a análise incluindo esta possibilidade uma vez que no caso do cristal de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , que são fotovoltaicos, tudo se passa como se ele estivesse submetido a um forte campo elétrico externo.

No Apêndice A desenvolvemos os cálculos para obtenção do comportamento do campo de cargas espaciais em função do tempo, e obtivemos:

$$E_{sc}(t) = E_{sat} \left( 1 - \exp \frac{t}{\tau_{sc}} \right) \quad (3.27)$$

onde:

$$E_{sat} = - \frac{m(E_A + iE_D)}{(1 + E_D/E_q - iE_A/E_q)} \quad (3.28)$$

$$\tau_{sc} = \tau_M \frac{1 + K^2 L_D^2 - iK L_E}{1 + E_D/E_q - iE_A/E_q} \quad (3.29)$$

portanto tem um crescimento exponencial com tempo característico  $\tau_{sc}$ . Nas expressões acima temos que  $K$  é a constante de rede, e ainda várias grandezas (vide definições no Apêndice A):

- $E_D$  = campo elétrico de difusão.
- $E_q$  = amplitude máxima da modulação do campo elétrico.
- $L_D$  = comprimento de difusão dos portadores.
- $L_E$  = comprimento de arraste dos fotoportadores pelo campo elétrico externo.
- $l_s$  = comprimento de blindagem de Debye.
- $l_E$  = comprimento de ligação dos elétrons.
- $\tau_M$  = tempo de relaxação de Maxwell.

# CAPÍTULO 4

## Mistura Seletiva de Ondas em Cristais de $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$

### 4.1 Introdução

Nos últimos anos tem sido crescente o número de trabalhos reportando a formação simultânea de duas ou mais redes de difração durante o registro holográfico em materiais fotorrefrativos [24, 35, 48]. Pode ocorrer, p.ex., a formação de uma rede fotorrefrativa (modulação de índice de refração) associada à redistribuição de elétrons, a qual chamaremos “rede de elétrons” e uma rede fotocromica associada à modulação do coeficiente de absorção do material, a qual chamaremos “rede de amplitude”. Existem situações em que esta simultaneidade de efeitos é útil, e se pode aproveitar desse fato para fazer, p.ex., a multiplexação de imagens [24], entretanto na maioria dos casos isto é indesejável e se torna interessante poder medi-los separadamente. Além da gravação de uma rede de amplitude juntamente com uma rede de elétrons na amostra, existem alguns casos em que se detecta a presença de uma rede fotorrefrativa associada a buracos [49, 50].

Em experimentos onde se analisa a evolução temporal do sinal difratado durante o apagamento holográfico, pode ocorrer que, dependendo do braço do interferômetro que se escolha para realizar o experimento, o comportamento temporal do sinal difratado, resultante da associação rede de elétrons + rede de amplitude é indistinguível do caso em que temos a associação rede de elétrons + rede de buracos. Mostraremos que, em experimentos de mistura de duas ondas, quando se analisa os sinais de ambos os braços

do interferômetro, se torna possível avaliar a contribuição de cada uma das redes presentes.

A técnica experimental que utilizamos está baseada na detecção sincrônica de sinais [51]. Esta técnica já havia sido aplicada anteriormente na medida da relação de fase entre o padrão de franjas de interferência e a rede gravada em uma amostra de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  (BSO) que apresenta somente um tipo de rede em volume [52], assim como na medida de velocidade de deslocamento desta rede quando o cristal está sob a ação de um campo elétrico externo [53]. Frejlich [54] então realizou experimentos com um cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  que apresenta pelo menos duas redes em volume, uma “rápida” originada da redistribuição de elétrons, e uma “lenta”, que permanecia praticamente imóvel mesmo quando era submetida a um campo externo, fazendo-se então necessário elucidar a natureza daquela rede.

Apresentamos neste capítulo o método desenvolvido para permitir a detecção contínua e seletiva dos sinais provenientes da difração por uma rede fotorrefrativa ou por uma rede fotocromica que estejam gravadas simultaneamente no mesmo material. Este método permite ainda a estabilização da gravação holográfica através da manutenção de uma relação de fase fixa entre o padrão de franjas de interferência e qualquer uma das redes gravadas. Utilizamos um cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  como meio de registro.

Selecionamos o sinal da rede fotocromica para a estabilização do sistema, e fizemos o registro até diferentes níveis de modulação. Para cada ponto da gravação fizemos o apagamento das redes monitorando o sinal difratado nas duas direções dos braços do interferômetro. A partir da análise da evolução temporal desse sinal pudemos avaliar as eficiências relativas dessas redes, e relacionar o registro da rede fotocromica com o sinal de controle da gravação.

## 4.2 Modulação de Fase e Detecção Sincrônica

Aproveitamos da diferença nas propriedades da difração por uma rede de fase e por uma rede de amplitude para podermos separar os seus efeitos. Quando não há campo elétrico externo aplicado ao cristal, a redistribuição das cargas ocorre devido à difusão, e neste caso a rede de difração de fase se forma defasada de  $\pm\pi/2$  do padrão

de franjas, de modo que se quebra a simetria entre os feixes de escrita. Por essa razão ocorre uma transferência de energia entre os feixes ao longo da espessura do cristal, ou seja, enquanto numa direção a energia do feixe aumenta, na outra esta diminui. Por outro lado, a modulação da absorção, que gera a rede fotocromica, é um fenômeno de natureza local e portanto simétrico em relação ao padrão de interferência, e assim não gera troca de energia entre os feixes [55].

Verificamos da literatura, e também da nossa experiência, que podemos trabalhar dentro da aproximação de baixas eficiências de difração. Consideramos então a presença simultânea de uma rede de fase e uma rede de amplitude no volume do cristal, e assumimos que  $\eta_P \ll 1$  e  $\eta_A \ll 1$ , que são respectivamente as eficiências da rede de fase e de amplitude, e ainda que a modulação das franjas  $m \approx 1$ . Nestas condições, que são usuais para cristais deste tipo, não se faz necessário levar em conta os efeitos de auto-difração [56]. Como visto no capítulo 2, deveremos ter ao longo das direções dos feixes  $I_1^o$  e  $I_2^o$ , após o cristal, que:

$$I_R = I_1^o + (\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P})^2 I_2^o - 2(\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_1^o I_2^o} \cos(\psi) \quad (4.1)$$

$$I_S = I_2^o + (\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P})^2 I_1^o - 2(\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_1^o I_2^o} \cos(\psi) \quad (4.2)$$

onde  $I_1^o$  e  $I_2^o$  são as intensidades dos feixes de gravação,  $I_R$  e  $I_S$  são as intensidades totais dos feixes na face de saída do cristal, respectivamente nas direções de  $I_1^o$  e  $I_2^o$ .  $\psi$  representa uma perturbação arbitrária na posição do padrão de franjas em relação ao cristal, já considerando que a rede de fase esteja defasada de  $\pi/2$  em relação à posição não-perturbada do padrão, e que a rede de amplitude esteja em fase com ele.

Na montagem experimental utilizada (Fig. 4.1), um dos espelhos do interferômetro fica apoiado sobre cerâmicas piezoelétricas (PZT). Através de um gerador de frequência (OSC), aplica-se ao PZT uma pequena modulação de tensão, de amplitude  $v_d$  e com frequência  $\Omega/2\pi$  muito maior do que a frequência de resposta do cristal. O movimento do espelho muda ligeiramente o caminho óptico do feixe entre o divisor de feixes e o plano de interferência, produzindo uma modulação de fase de baixa amplitude ( $\psi_d \ll 1$ ). Esta variação de fase produz então uma oscilação na posição das franjas de interferência,

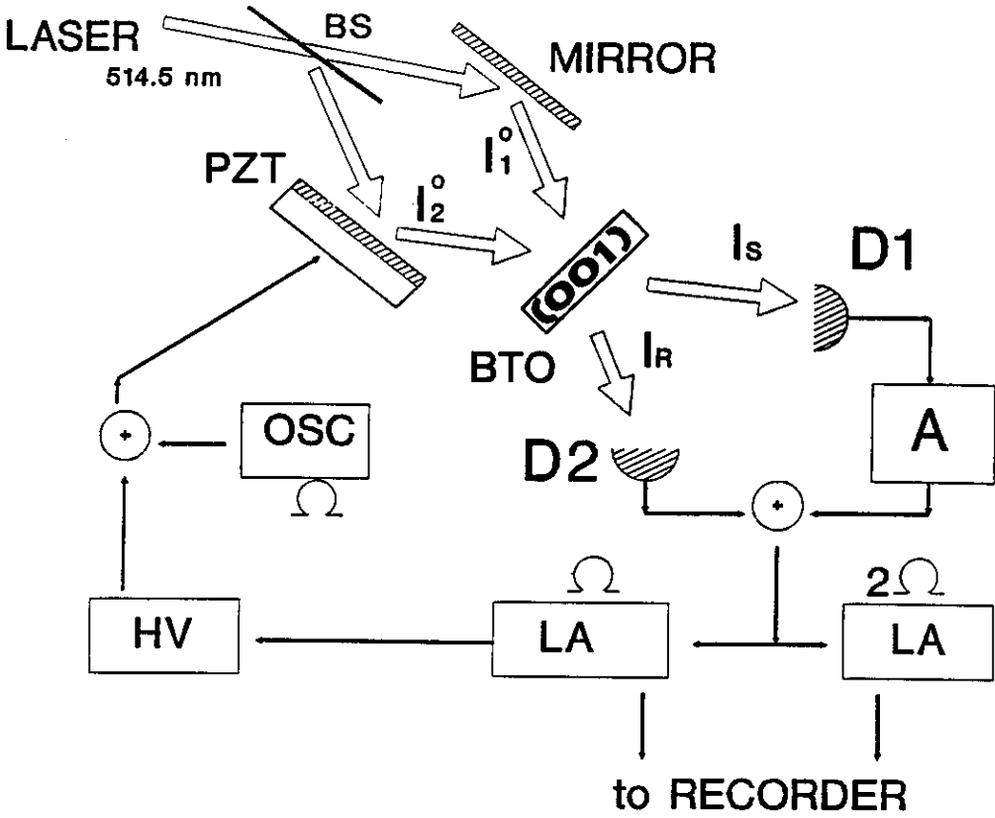


Figura 4.1: Montagem Experimental. BTO: Cristal usado como meio de gravação,  $D_1$  e  $D_2$ : Detectores, A: Amplificador e inversor de sinal, LA: Amplificador Lock-In.

e conseqüentemente, entre o padrão de franjas e as redes gravadas no cristal. Como o cristal não responde à frequência  $\Omega/2\pi$ , podemos utilizar o sinal resultante para a detecção sincrônica sem afetar a gravação da rede.

De maneira que  $\psi$  passa a ser

$$\psi + \psi_d \text{sen}(\Omega t) \quad \text{com} \quad \psi_d = K_{PZT}^\Omega v_d \ll 1$$

onde  $K_{PZT}^\Omega$  é o fator de conversão da tensão aplicada sobre o PZT e a variação de fase induzida no feixe. Substituindo o valor de  $\psi$  nas expressões (4.1) e (4.2) podemos separar as componentes moduladas em  $\Omega$  e  $2\Omega$ , pois, para  $\psi_d \ll 1$  teremos:

$$\begin{aligned} \cos(\psi + \psi_d \text{sen}\Omega t) &= \cos\psi \left( 1 - \frac{\psi_d^2}{4} \right) + \frac{\psi_d^2}{4} \cos\psi \cos(2\Omega t) \\ &\quad - \psi_d \text{sen}\psi \text{sen}\Omega t \end{aligned} \quad (4.3)$$

Deste modo podemos então utilizar um amplificador Lock-in para detectar a componente do sinal transmitido que esteja modulada nas frequências  $\Omega/2\pi$  ou  $2\Omega/2\pi$ . O sinal de saída do Lock-In vai depender do fator de conversão intensidade-tensão do detector  $K_D^1$ .

Para o Lock-In sintonizado em  $\Omega/2\pi$  teremos:

$$I_R^\Omega = 2\psi_d (\sqrt{\eta_P} + \sqrt{\eta_A}) \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \sin(\psi) \quad (4.4)$$

$$I_S^\Omega = -2\psi_d (\sqrt{\eta_P} - \sqrt{\eta_A}) \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \sin(\psi) \quad (4.5)$$

e para o Lock-In sintonizado em  $2\Omega/2\pi$ :

$$I_R^{2\Omega} = -\frac{\psi_d^2}{2} (\sqrt{\eta_P} + \sqrt{\eta_A}) \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \cos(\psi) \quad (4.6)$$

$$I_S^{2\Omega} = \frac{\psi_d^2}{2} (\sqrt{\eta_P} - \sqrt{\eta_A}) \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \cos(\psi) \quad (4.7)$$

Os amplificadores Lock-in apresentam dois canais de entrada, os quais foram utilizados para medir simultaneamente os sinais dos dois detectores: detector D1 na direção de  $I_S$ , e D2 na direção de  $I_R$ , o que nos permite, através de uma eletrônica simples, adicionar ou subtrair os seus sinais. Disso resulta então que:

$$I_\Sigma^\Omega = I_R^\Omega + I_S^\Omega = 4\psi_d \sqrt{\eta_A} \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \sin(\psi) \quad (4.8)$$

$$I_\Delta^\Omega = I_R^\Omega - I_S^\Omega = 4\psi_d \sqrt{\eta_P} \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \sin(\psi) \quad (4.9)$$

E para os termos em  $2\Omega$ :

$$I_\Sigma^{2\Omega} = I_R^{2\Omega} + I_S^{2\Omega} = -\psi_d^2 \sqrt{\eta_A} \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \cos(\psi) \quad (4.10)$$

$$I_\Delta^{2\Omega} = I_R^{2\Omega} - I_S^{2\Omega} = -\psi_d^2 \sqrt{\eta_P} \sqrt{I_1^\circ I_2^\circ} \cos(\psi) \quad (4.11)$$

As expressões acima nos mostram que a adição dos sinais ( $I_\Sigma$ ) está associada exclusivamente à rede de modulação de amplitude, enquanto que a subtração ( $I_\Delta$ ) está

<sup>1</sup>Continuaremos trabalhando com as intensidades, para se obter o valor da tensão equivalente, basta multiplicar por  $K_D$

associada exclusivamente à rede de modulação de fase. Portanto isto nos permite separar e medir a contribuição de cada rede separadamente.

Como  $\text{sen}(\psi \approx 0) \approx 0$ , podemos usar  $I_{\Sigma}^{\Omega}$  como *senal de erro* na estabilização, para fixar a relação de fase entre o padrão de interferência e a rede de amplitude. Da mesma forma, podemos usar  $I_{\Delta}^{\Omega}$  na estabilização no sinal da rede de fase. É conveniente reforçar que as expressões acima são válidas para o caso em que  $\eta \ll 1$  e neste caso os sinais são desacoplados, isto é, uma rede não modifica a outra. Por esta mesma razão não há efeito de auto-difração.

## 4.3 Resultados Experimentais

### 4.3.1 Separação dos Efeitos de Fase e de Amplitude

Nos experimentos descritos a seguir foi utilizado uma amostra de BTO produzido no Instituto A. F. IOFFE de São Petersburgo - Rússia, de dimensões:  $10 \times 8 \times 1,5 \text{mm}^3$ . Em todas as situações cristal esteve posicionado de forma que o seu eixo [001] estivesse ortogonal ao plano da mesa holográfica, e portanto ao vetor de rede.

Como desejávamos obter o máximo acoplamento entre os feixes, escolhemos a polarização dos feixes de modo que obtivéssemos os feixes polarizados a  $45^\circ$ , em relação à vertical, no plano médio da espessura do cristal. Desta forma os feixes transmitidos e difratados têm sempre a mesma polarização [57, 58]. Esta configuração maximiza a mistura de duas ondas, e também torna desnecessário considerar os efeitos da atividade óptica e da mudança de polarização que ocorre na difração anisotrópica. Usamos um Laser de  $\text{Ar}^+$  sintonizado em  $\lambda = 514 \text{nm}$  com feixes de intensidades entre  $150$  e  $300 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ , ângulo entre os feixes no ar de  $2\theta = 40^\circ$ , e  $\Omega/2\pi = 1500 \text{ Hz}$ .

Utilizamos o sinal de  $I_{\Sigma}^{\Omega}$  para a estabilização do registro. Na Fig. 4.2 vemos o crescimento contínuo do sinal de  $I_{\Sigma}^{2\Omega}$  indicando a evolução do sinal difratado pela rede fotocromica. Do ponto **A** ao ponto **B** foi aplicado um campo elétrico externo de  $3,8 \text{ (kV/cm)}$  DC paralelamente ao vetor de rede, ao longo do eixo [110]. Pode-se perceber

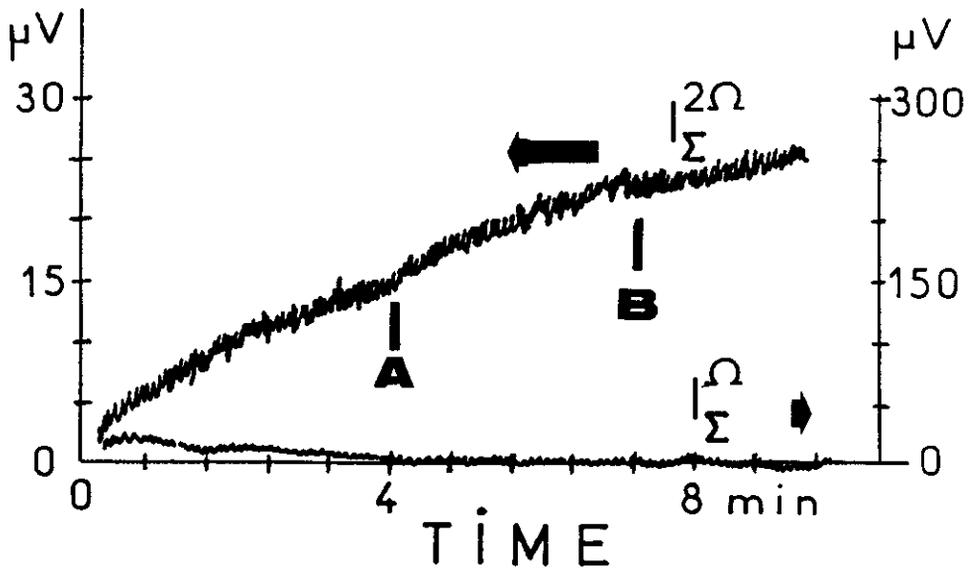


Figura 4.2: Evolução dos sinais de adição para o primeiro e o segundo harmônicos – parte inicial. Gravação estabilizada da rede fotocrômica. Do 0 ao ponto A: sem campo elétrico. Do ponto A ao ponto B: aplicado um campo elétrico de 3,8 (kV/cm) na direção do vetor de rede. Do ponto B em diante: campo desligado.

que a aplicação do campo não teve nenhuma influência perceptível no sinal de  $I_{\Sigma}^{2\Omega}$ . Este fato está de acordo com a natureza da rede de amplitude, e mostra que não há influência do efeito fotorrefrativo neste sinal, pois sabe-se que as redes fotorrefrativas são fortemente dependentes da aplicação de um campo elétrico externo ao cristal [15]. Além de provocar um aumento da eficiência de difração da rede fotorrefrativa, o campo externo pode gerar um deslocamento contínuo desta, fenômeno este usualmente conhecido por “running holograms” [54].

Na continuidade de um processo semelhante ao mostrado na Fig. 4.2, vemos na Fig. 4.3 o caso em que, após o termo em  $2\Omega$  ter atingido um valor máximo estacionário, desligamos a estabilização. Pode-se verificar que até o ponto A o sinal de  $I_{\Sigma}^{\Omega}$  oscila randomicamente ao redor de zero. Isto indica que que a fase  $\psi$  está centrada em zero, o que nos leva a concluir de que, de fato a relação de fase natural entre a rede de amplitude e o padrão de franjas  $\phi_A = 0$  (ou  $\pi$ ). No ponto A o sistema de estabilização começa a

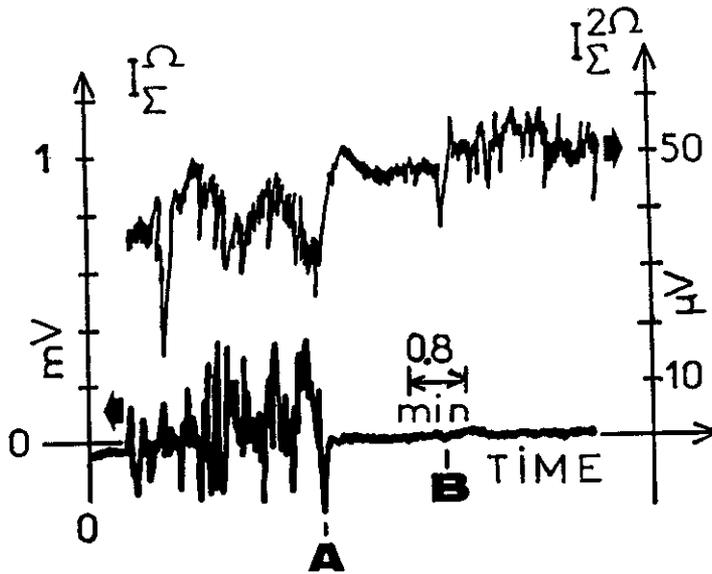


Figura 4.3: Evolução dos sinais de adição para o primeiro e o segundo harmônicos. Do ponto 0 ao ponto A: sem estabilização; Do ponto A ao ponto B: com a estabilização ativada; Do ponto B em diante: com estabilização e um campo elétrico de 3,8 (kV/cm) aplicado na direção do vetor de rede.

operar novamente, nota-se então o crescimento do sinal de  $I_{\Sigma}^{2\Omega}$ . Então no ponto B foi aplicado um campo elétrico de 3,8 (kV/cm) DC, como no caso anterior. Pode-se perceber um ligeiro aumento do ruído dos sinais, porém nenhuma mudança significativa dos seus valores.

Para um cristal sem efeito fotovoltaico – como no presente caso – e em regime de difusão (sem campo externo aplicado) temos que a diferença de fase natural entre o padrão de franjas e a rede é de  $\phi_p = 90^\circ$  (no Apêndice A pode-se verificar que esta foi uma das hipóteses para obtenção das Eqs. (4.10,4.11)). Como no caso anterior, o sinal medido por um Lock-in sintonizado na frequência  $\Omega/2\pi$  será próximo de zero. Isto é válido tanto no caso em que tomemos o sinal de apenas um dos detetores, em que os sinais de fase e de amplitude estão presentes, quanto para a diferença de sinais entre os dois detetores, em que o sinal depende apenas da rede de fase.

A Fig. 4.4 mostra o que ocorre no caso em que utilizamos o sinal de  $I^{\Omega}$  para a

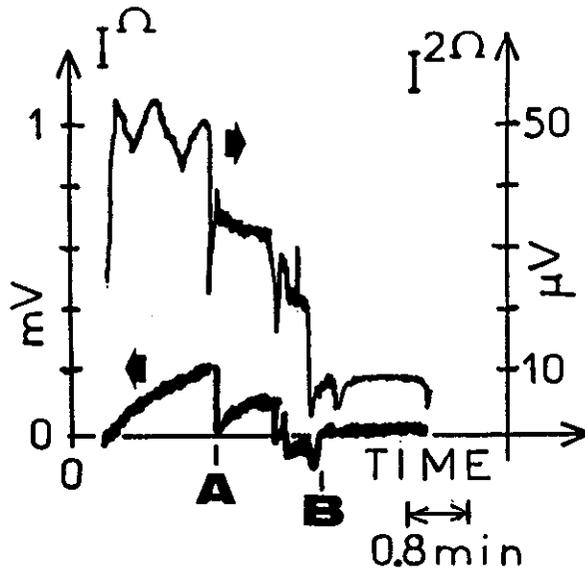


Figura 4.4: Evolução do primeiro e segundo harmônicos no modo de gravação estabilizada. Até o ponto A o cristal está sob a ação de um campo elétrico de 3,8 (kV/cm) DC. Do ponto B em diante o campo externo é nulo. E entre os pontos A até B, vemos a transição do campo de  $E=3,8$  (kV/cm) até  $E=0$ .

estabilização do sistema, ao mesmo tempo em que é aplicado um campo elétrico externo DC de  $3,8\text{kV/cm}$  na direção do vetor de rede no cristal. Podemos verificar que ocorre um deslocamento de  $I^\Omega$ . Como este é o sinal que está sendo utilizado para alimentar o piezoelétrico, isto indica que o sistema, na tentativa de manter  $\phi_p = 90^\circ$ , provoca uma variação na posição do espelho, indicando que o holograma está se deslocando no volume do cristal, o que demonstra a presença de “running holograms” [53]. Na mesma figura pode-se perceber que o termo  $I^{2\Omega}$  apresenta uma pequena oscilação. Isto indica a presença de uma segunda rede de mobilidade muito menor, que permanece praticamente estática enquanto a rede eletrônica vai se deslocando sobre ela. No ponto A o campo externo foi desligado e se pode ver a lenta transição até que as cargas se rearranjem e a componente DC do campo volte a ser efetivamente zero dentro do cristal (ponto B). Daí em diante não há mais deslocamento de  $I^\Omega$ , e ocorre uma queda de aproximadamente 5 vezes no valor de  $I^{2\Omega}$  (que já não oscila mais) mostrando a forte queda na eficiência de

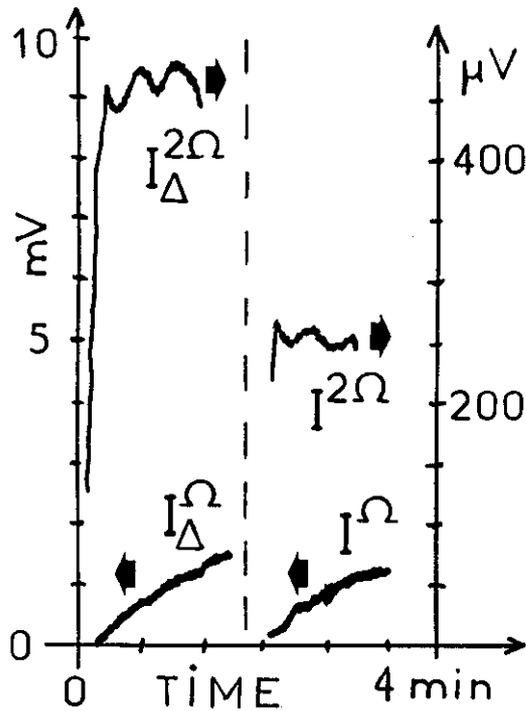


Figura 4.5: Evolução dos sinais de primeiro e segundo harmônicos no modo estabilizado com o cristal submetido a um campo elétrico externo DC de 3,8 (kV/cm) para a diferença de sinais dos detetores (lado esquerdo), e para o sinal de um único detetor.

difração.

A Fig. 4.5 mostra a evolução do primeiro e do segundo harmônicos quando fazemos a estabilização com diferentes sinais: na primeira parte usamos a diferença de sinais ( $I_{\Delta}^{\Omega}$  e  $I_{\Delta}^{2\Omega}$ ), e na segunda parte, os sinais de um único detetor ( $I^{\Omega}$  e  $I^{2\Omega}$ ). Vemos que em ambos os casos temos o deslocamento de  $I^{\Omega}$ , e estes são essencialmente os mesmos, pois a taxa de deslocamento representa a velocidade do holograma e não deve depender do método de medida. Quanto ao termo em  $2\Omega$ , vemos que na primeira parte este é aproximadamente o dobro do valor da parte final, fato que está de acordo com as Eqs. (4.6, 4.7 e 4.11) para  $\sqrt{\eta_A} \ll \sqrt{\eta_F}$ .

Uma comparação direta entre os fatos apresentados através das Figuras 4.2, 4.3 (redes de amplitude) e das Figuras 4.4 e 4.5 (redes de fase), mostra claramente a operação do sistema e a efetiva separação dos efeitos de fase e de amplitude presentes no cristal.

No caso em que selecionamos apenas o sinal de origem fotorrefrativa (Fig. 4.5), a oscilação que percebemos no termo  $I_{\Delta}^{2\Omega}$  pode ser devido a uma rede secundária resultante da interferência da difração pela rede de amplitude com o feixe incidente. Já foi demonstrado que no caso de se ter um campo aplicado ao cristal, este efeito pode ser maior que o próprio efeito fotocromico [54]. Uma outra possível origem para esta oscilação é que ocorra, simultaneamente com a rede de origem eletrônica, a formação de uma rede de buracos associada [49, 59]. Como os buracos têm uma mobilidade bem menor que a dos elétrons, permanece praticamente estática [54, 60], a modulação em  $I^{2\Omega}$  que se vê na figura mostra o batimento das duas redes fotorrefrativas.

### 4.3.2 Apagamento Holográfico

Uma vez demonstrada a validade do método de separação dos efeitos, aplicamos a técnica do apagamento holográfico para acompanhar a evolução temporal do sinal difratado durante o apagamento. Neste caso há apenas um feixe incidindo sobre o cristal, o que torna o experimento livre das perturbações de fase decorrentes das vibrações mecânicas da montagem experimental.

Primeiramente vamos analisar o que ocorre em um apagamento típico em que estão presentes dois diferentes tipos de rede com diferentes tempos de apagamento. A Fig. 4.6 mostra a evolução temporal do sinal difratado pelo cristal durante este apagamento. Na primeira parte do gráfico vemos a curva de crescimento do sinal  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$  quando ainda temos o processo de gravação com os dois feixes incidentes. A partir do ponto **B** o cristal passa a ser iluminado por apenas um dos feixes. Vemos que até o ponto **C** o sinal difratado cai rapidamente devido ao apagamento da rede principal - associada aos elétrons. O ponto **C** corresponde ao ponto em que em que o sinal da rede de elétrons é quase totalmente compensado pelo sinal da rede lenta que se encontra em oposição de fase. A partir deste ponto o sinal da rede lenta passa a ser predominante, e a continuidade do apagamento da rede eletrônica descompensa o sinal da rede lenta, o que faz o sinal crescer novamente até o ponto **D**, a partir do qual ocorre um apagamento bastante mais lento. Este tipo de apagamento tem sido apresentado na literatura [50, 61, 62], e por vezes está associado à presença de uma rede originada por elétrons e outra por buracos no mesmo cristal,

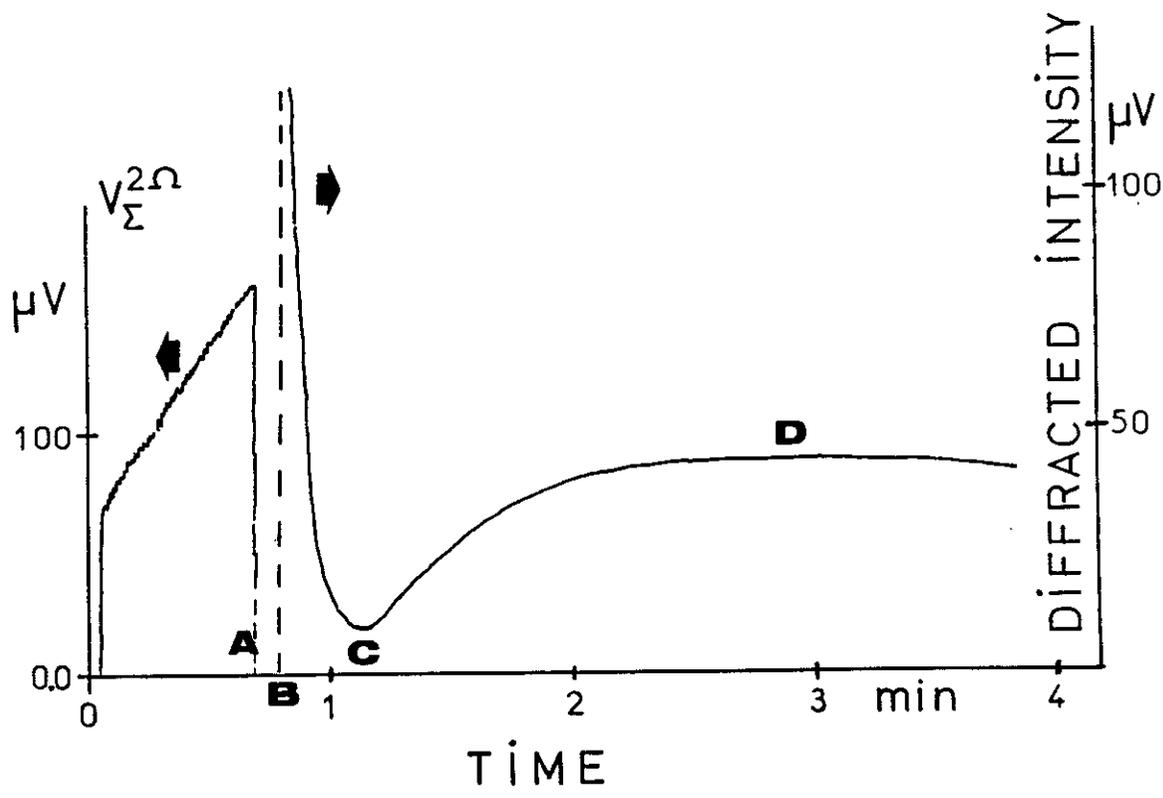


Figura 4.6: Processo Típico de Apagamento Holográfico – De 0 a A temos o sinal de Evolução temporal do sinal  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$  mostrando o crescimento do sinal da rede fotocrômica. Para a escrita foram utilizadas  $I_1^o=257$  ( $\mu W/cm^2$ ) e  $I_2^o=172$  ( $\mu W/cm^2$ ). A partir do ponto B temos a evolução do sinal difratado. Neste caso temos o sinal do detetor D2 – difração de  $I_2^o=115$  ( $\mu W/cm^2$ ).

ou então, a uma rede originada por elétrons conjuntamente com uma rede de natureza fotocrômica. Porém em nenhum desses trabalhos é feito um estudo tomando-se em conta a diferença no comportamento temporal para os apagamentos realizados nas diferentes direções do interferômetro.

Analisando as diferenças entre os sinais dos detetores  $D_1$  e  $D_2$  respectivamente quando os apagamentos foram feitos usando-se o feixe  $I_2^o$  e o feixe  $I_1^o$ , foi possível caracterizar a natureza das redes presentes no cristal.

O experimento foi realizado sem a aplicação de um campo elétrico externo com o cristal trabalhando em regime de difusão. Com o seu eixo [001] ortogonal ao plano de incidência dos feixes e portanto com o vetor  $\vec{K}$  da rede ortogonal ao eixo [001]. Durante

O experimento foi realizado sem a aplicação de um campo elétrico externo com o cristal trabalhando em regime de difusão. Com o seu eixo [001] ortogonal ao plano de

a escrita posicionamos o polarizador em frente à amostra de modo que, considerando a atividade óptica do cristal, a polarização dos feixes de escrita ficassem na vertical no plano correspondente ao centro da amostra, e assim, devido às propriedades da difração anisotrópica, os feixes transmitido e o difratado pela rede de fase têm polarizações ortogonais na face de saída do cristal e não interferem entre si, não havendo portanto mistura de ondas devido à rede fotorrefrativa [63]. Deste modo reduzimos ao mínimo a sua influência no sinal de realimentação do sistema.

Da Eq. 4.8 vemos que para as condições usuais temos  $V_{\Sigma}^{\Omega} = K_D I_{\Sigma}^{\Omega} \approx 0$ . Portanto utilizamos este sinal para operar a estabilização do registro holográfico enquanto monitoramos a evolução de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$ . Ao atingirmos um valor desejado de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$  bloqueamos momentaneamente ambos os feixes para preservar o registro no cristal e então posicionamos o polarizador do feixe de leitura de modo que a polarização fique a  $45^\circ$  no plano central do cristal, assim tanto a luz difratada pela rede de fase quanto a difratada pela rede de amplitude tenham a mesma polarização na face de saída do cristal. Liberamos um dos feixes – que portanto se encontra automaticamente na condição de Bragg – e realizamos o apagamento holográfico. O mesmo procedimento é repetido para vários diferentes valores de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$ , em cada uma das direções dos braços do interferômetro. Os apagamentos foram acompanhados registrando-se a evolução temporal dos sinais difratados, e são apresentados na Fig. 4.7. Podemos então ver que para valores próximos de  $V_{AB}$  (definido abaixo) as curvas de apagamento se comportam de modo diverso de um lado e de outro do interferômetro.

Na Fig. 4.8 vemos as curvas de apagamento no caso em que o cristal foi submetido a um campo elétrico na direção do vetor  $\vec{K}$  da rede, durante a escrita. No caso das curvas indicadas com símbolo (\*), foi aplicado campo também durante o apagamento.

Como houveram variações de intensidade dos feixes entre os processos de escrita, e também entre os apagamentos, foi necessário normalizar todos os valores para que pudéssemos comparar os dados obtidos.

- No caso do sinal de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$ , dividimos por  $\sqrt{I_1^{\circ} I_2^{\circ}}$ , e de 4.10 temos:

$$V_{AB} \propto \frac{V_{\Sigma}^{2\Omega}}{\sqrt{I_1^{\circ} I_2^{\circ}}} \propto \sqrt{\eta_A} \quad (4.12)$$

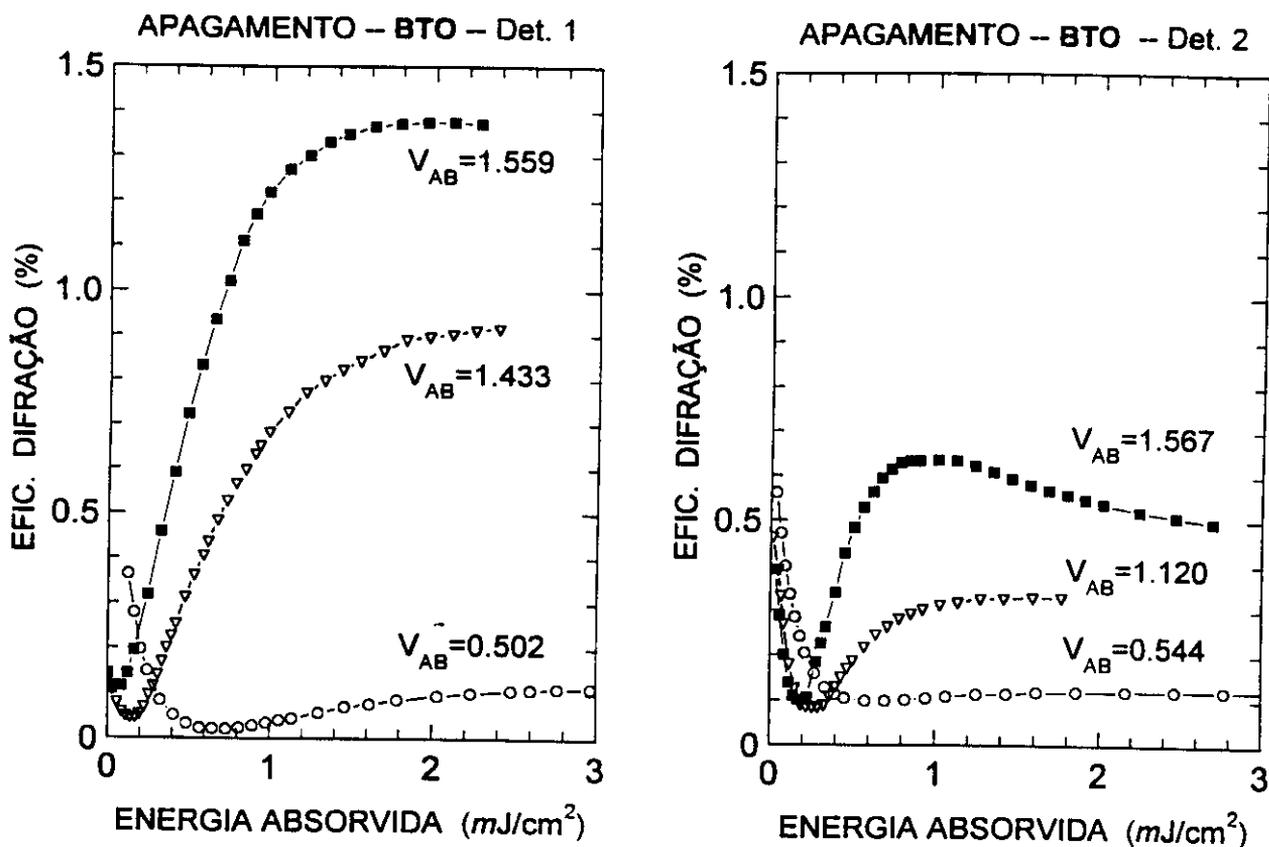


Figura 4.7: Apagamento Holográfico – Evolução temporal do sinal difratado – à esquerda medido pelo detector D1 (difração de  $l_1^o$ ) e à direita medido pelo detector D2 (difração de  $l_2^o$ ).

$V_{AB}$  é o valor normalizado de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$  atingido na escrita.

- Para as curvas de apagamento, normalizamos o tempo fazendo o produto deste pela intensidade luminosa efetivamente absorvida. Deste modo convertemos o tempo para valores de energia absorvida durante os apagamentos. O valor da absorção efetiva do cristal foi calculado tomando-se em conta a ocorrência de múltiplas reflexões internas, e descontando-se a quantidade de luz refletida pelo cristal [64].

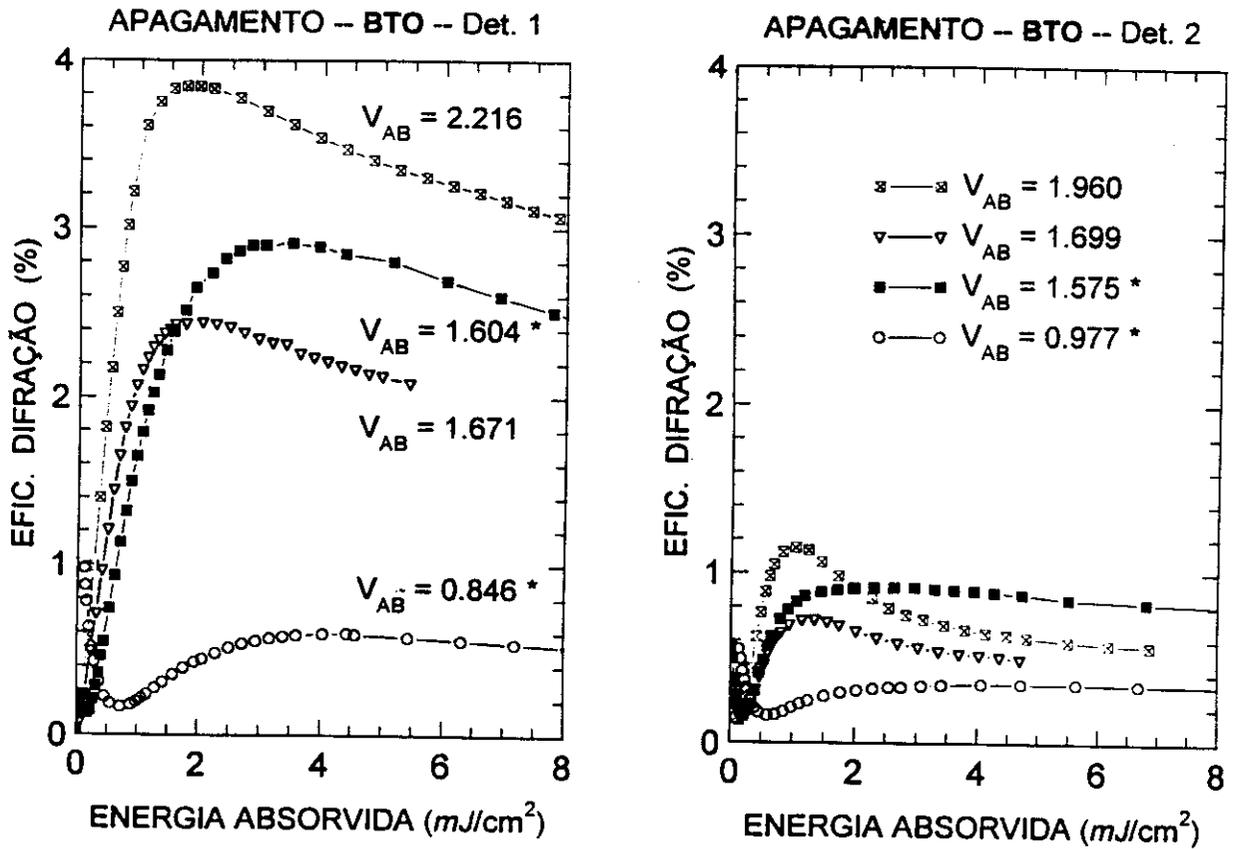


Figura 4.8: Apagamento Holográfico – Evolução temporal do sinal difratado – em todas as medidas o foi aplicado um campo de 3,8 (kV/cm) sobre o cristal durante a escrita. Para as curvas indicadas por (\*) foi aplicado campo também durante o apagamento.

#### 4.4 Análise dos Dados

Segundo a discussão apresentada acima, os dados apresentados nas Figs. 4.7 e 4.8 nos sugerem a presença de três tipos de redes nestes cristais. Uma rede associada aos elétrons, que por terem maior mobilidade são responsáveis pela parte rápida do apagamento e, com base na assimetria dos valores de máximos secundários entre os dois braços, devemos supor a ocorrência de uma rede associada aos buracos e de uma rede originada da modulação da absorção.

Supondo que as redes de fase estejam defasadas de  $\pm\pi/2$ , e a rede de amplitude esteja em contra-fase com o padrão de franjas ( $\pi$ ), podemos escrever que as suas posições

relativas podem ser representadas da forma:

$$Ee^{+i\frac{\pi}{2}} + He^{-i\frac{\pi}{2}} + Ae^{i\pi} \quad (4.13)$$

A luz difratada pelas redes de fase sofrem uma mudança de fase adicional de  $\mp\pi/2$  dependendo da direção, e desta forma podemos escrever que as intensidades difratadas nas direções dos detetores 1 e 2 são respectivamente proporcionais às eficiências:

$$\eta_1 \propto |E(t)e^{i0} + H(t)e^{-i\pi} + A(t)e^{i\pi}|^2 \quad (4.14)$$

$$\eta_2 \propto |E(t)e^{i\pi} + H(t)e^{i0} + A(t)e^{i\pi}|^2 \quad (4.15)$$

onde  $E(t)$ ,  $H(t)$  e  $A(t)$  são as amplitudes dos sinais difratados, e portanto proporcionais às raízes quadradas das respectivas eficiências de difração:  $\sqrt{\eta_E(t)}$ ,  $\sqrt{\eta_H(t)}$  e  $\sqrt{\eta_A(t)}$ . Podemos supor que o apagamento das redes sejam exponenciais cujos tempos característicos sejam, respectivamente:  $\tau_E$ ,  $\tau_H$ , e  $\tau_A$ . Como estamos tomando o módulo quadrado das amplitudes, podemos também fazer uma inversão de sinais na expressão de  $\eta_2$ , para finalmente obter que:

$$\eta_1 = |\sqrt{\eta_E^0}e^{-t/\tau_E} - \sqrt{\eta_H^0}e^{-t/\tau_H} - \sqrt{\eta_A^0}e^{-t/\tau_A}|^2 \quad (4.16)$$

$$\eta_2 = |\sqrt{\eta_E^0}e^{-t/\tau_E} - \sqrt{\eta_H^0}e^{-t/\tau_H} + \sqrt{\eta_A^0}e^{-t/\tau_A}|^2 \quad (4.17)$$

Das expressões acima fica evidente que na ausência da rede de amplitude, o comportamento dos dois braços seriam idênticos, e portanto que ela é responsável pela assimetria que podemos ver nas curvas apresentadas nas Figs. 4.7 e 4.8.

Podemos observar ainda que as curvas obtidas para o Det.1 sempre iniciam com um valor menor de eficiência do que aquelas obtidas com o Det.2, para valores equivalentes de  $V_{AB}$ . Pois, na direção do Det.1, os sinais da difração pela rede de buracos e da rede de amplitude têm ambos sinais opostos ao sinal da rede de elétrons. Por outro lado, os valores máximos atingidos pelas curvas do Det.1 são sempre maiores do que os atingidos

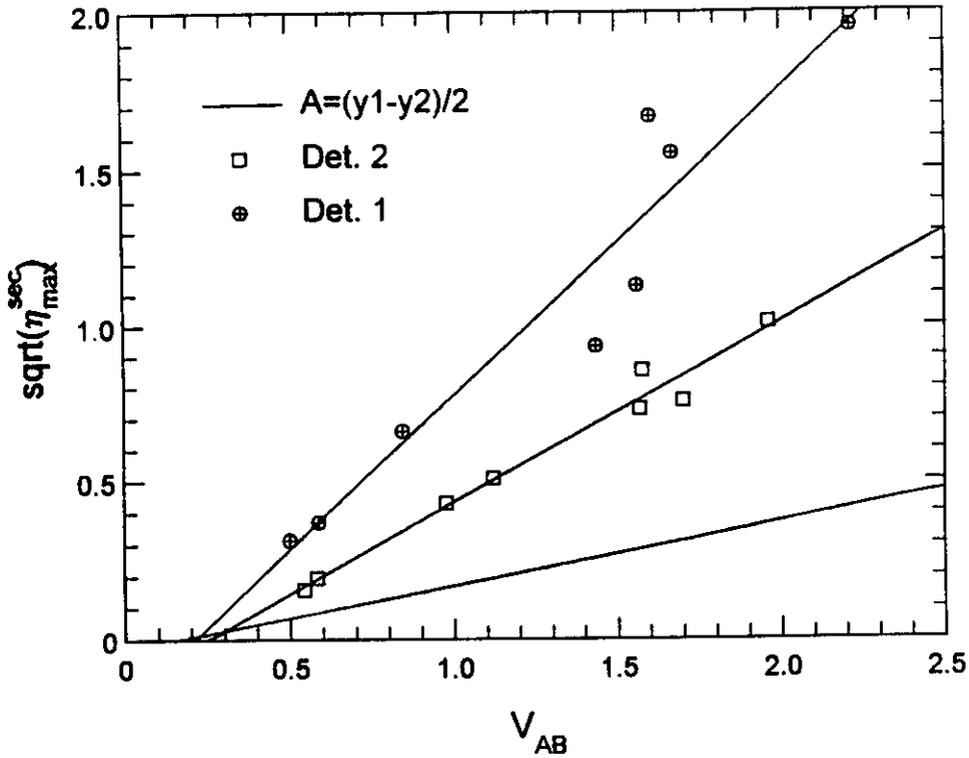


Figura 4.9: Relação entre  $V_{AB}$  e os máximos de eficiência durante o apagamento.

na direção do Det.2, pois uma vez que a rede de elétrons se apaga rapidamente, ao se tornar pequeno resta a soma dos sinais da rede de buracos e de amplitude. Enquanto que na direção do Det.2 estes sinais estão em oposição de fase, e portanto se subtraem.

Procuramos então estabelecer a relação entre o processo de escrita, a partir do valor de  $V_{AB}$ , e o processo de apagamento, de onde se pode obter  $\sqrt{\eta_A}$ . O caminho mais direto seria fazer o ajuste do modelo proposto às curvas experimentais, entretanto devido ao grande número de parâmetros livres, todas as tentativas nesse sentido foram infrutíferas. Observando que  $\tau_E \ll \tau_H, \tau_A$  consideraremos que no ponto de máximo secundário temos:

$$\eta_1 \approx |\sqrt{\eta_H^o} + \sqrt{\eta_A^o}|^2 \quad e \quad \eta_2 \approx |\sqrt{\eta_H^o} - \sqrt{\eta_A^o}|^2 \quad (4.18)$$

E portanto:

$$\sqrt{\eta_A^o} = \frac{\sqrt{\eta_1} - \sqrt{\eta_2}}{2} \quad (4.19)$$

Como os pontos experimentais obtidos nas duas direções não correspondem exatamente aos mesmos valores de  $V_{AB}$ , graficamos separadamente os dados para cada braço do in-

terferômetro e fizemos a operação diretamente no gráfico.

Vemos da Fig. 4.9 que existe uma relação linear bastante razoável entre os valores de  $\sqrt{\eta_{max}}$  e  $V_{AB}$ , como é indicado pelas expressões (4.10) e (4.12). Entretanto esperávamos que as retas passassem pela origem do gráfico. Vemos entretanto que parece haver um valor de  $V_{AB}$  até o qual a presença da rede de amplitude não causaria qualquer diferença entre os feixes. Vale dizer que a partir destes dados também é possível obter os valores de  $\eta_H$ , e pudemos verificar para os pontos na região de maiores eficiências temos  $\eta_H \approx 14 \eta_A$ . Portanto o sinal da rede fotocromica é muito pequeno em comparação ao das redes fotorrefrativas, além disso, alguma diferença de ganho entre os detetores D1 e D2 também poderia provocar um desvio deste tipo, e daí vem a dificuldade de medi-lo com precisão. Apesar disso os resultados são satisfatórios.

Podemos ainda observar que a aplicação de um campo elétrico ao cristal, seja na escrita, seja no apagamento, não altera sistematicamente a relação entre  $\sqrt{\eta_{max}}$  e  $V_{AB}$ , embora o comportamento temporal das curvas de apagamento tenha sido afetado.

## 4.5 Conclusão

A análise teórica e os resultados experimentais apresentados mostram que a técnica de Mistura Seletiva de Duas Ondas de fato permite separar os efeitos de amplitude daqueles de fase sem causar perturbações no processo de gravação. Por essa razão, este método é particularmente útil na operação de um sistema de registro estabilizado.

A independência de efeitos de fase e de amplitude obtida por este método, permite, por um lado obter redes fotocromicas até mesmo com maior eficiência do que a rede de fase, em um cristal em que o registro da rede fotocromica é muito mais lento do que o da fotorrefrativa. Uma das vantagens desse aspecto da gravação, é que no início do processo do registro estabilizado na rede lenta, se pode aplicar um campo elétrico externo ao cristal para intensificar rapidamente a rede de fase sem ter o efeito indesejável do deslocamento do padrão que ocorre no registro estabilizado na própria rede de fase.

Este método foi recentemente aplicado com sucesso na estabilização do registro em cristais de  $LiNbO_3$  [65]. Nestes cristais o efeito fotocromico é muito pequeno, no entanto

foi o suficiente para permitir a operação do sistema.

O estudo do apagamento holográfico ao longo dos braços do interferômetro mostrou a relação que existe entre o sinal de  $V_{\Sigma}^{2\Omega}$ , que é usado para monitorar o registro da rede de amplitude, e o valor de máximo de difração medido durante o apagamento.

Observamos que em nenhuma das curvas obtidas, o sinal difratado passou pelo zero. Provavelmente isto se deve a algum desvio nas relações de fase previstas. Isto seria esperado no caso de haver campo externo aplicado, no entanto, esta característica do apagamento está sempre presente e também foi observada por outros autores [50], mesmo em regime de difusão.

Uma possível explicação para esse fato – ainda não investigada – é que como os experimentos em geral são realizados com a visibilidade das franjas  $m \simeq 1$  as distribuições de elétrons e buracos na amostra não são perfeitamente senoidais [66] e podem dar origem a um campo elétrico que modificaria o perfil do campo de difusão, o que por sua vez, poderia provocar uma variação nas relações de fase relativas durante o apagamento.

# CAPÍTULO 5

## Gravação Holográfica

## Auto-Estabilizada em Cristais de

## $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

### 5.1 Introdução

Neste capítulo descrevemos a gravação auto-estabilizada de redes de difração em cristais de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Mostramos que este método permite alcançar 100% de eficiência de difração mesmo utilizando feixes de baixa intensidade de um laser de  $\text{Ar}^+$  (entre 5 e 10  $\text{mW}/\text{cm}^2$  e  $\lambda = 514.5\text{nm}$ ), e também manter indefinidamente esta condição. A evolução temporal do processo de registro da rede é muito bem descrita por uma formulação matemática simples. A partir desse experimento, avaliamos parâmetros do cristal que são comparados aos dados disponível na literatura.

As técnicas de gravação holográfica auto-estabilizadas, que já foram descritas no capítulo anterior, têm sido aplicadas ao estudo de cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  [67], e de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  [52, 68, 60] que se caracterizam por apresentar baixas eficiências de difração (entre 1 e 5%), e portanto os efeitos de auto-difração são muito pequenos e podem ser desprezados.

Neste trabalho adaptamos aquele método para o registro em cristais de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , pois estes apresentam características bastante diferentes daquelas apresentadas por cristais do tipo BSO, BTO. Enquanto a dinâmica dos portadores no BSO-BTO é dominada pela difusão, o cristal de  $\text{LiNbO}_3$ , por ser ferroelétrico, pode apresentar forte efeito fo-

tovoltaico quando dopado com Ferro, o que é equivalente ao cristal estar submetido a campos elétricos bastante intensos ( $\approx 10^7 \text{Vm}^{-1}$ ) [9]. Esse efeito provoca um deslocamento adicional de fase entre o padrão de interferência luminosa projetado sobre o cristal e a rede de modulação de índice gravada, levando esta fase para  $180^\circ$  [69].

Devido às altas eficiências de difração das redes gravadas nestes cristais, espera-se que hajam fortes efeitos associados à auto-difração durante o registro holográfico. Como por exemplo, um progressivo deslocamento, ao longo da espessura do cristal, dos planos de mesmo índice de refração – efeito esse conhecido como “bended holograms” [13]. Entretanto foi possível operar o sistema de estabilização para obter hologramas com 100% de eficiência de difração em diferentes amostras de cristais de  $\text{LiNbO}_3$ .

## 5.2 Método Experimental

A montagem experimental utilizada está mostrada na Fig. 5.1. O método de medida está baseado na modulação de fase de um dos feixes, que foi descrito no capítulo anterior (vide pg. 26)

O feixe refletido pelo espelho acoplado a um piezoelétrico (PZT) tem a sua fase modulada com uma frequência  $\Omega/2\pi$  e disto resulta que a irradiância total na face de saída do cristal, ao longo da direção  $S$ , será dada por [5, 6]:

$$I_S = |S_o \cos(\kappa d) \exp(i\psi_d \sin(\Omega t)) + i \exp(i\psi) R_o \sin(\kappa d)|^2 \quad (5.1)$$

$$\text{com} \quad \kappa d = \frac{\pi n_1 d}{\lambda \cos\theta'} \quad (5.2)$$

$$\text{e} \quad n_1 = -n^3 r_{\text{eff}} E_{\text{sc}}/2 \quad (5.3)$$

onde vemos que a irradiância total na direção do feixe  $S$  é o resultado da interferência do feixe transmitido e a difração do feixe  $R$  na direção de  $S$ . Onde  $S_o = \sqrt{I_S^o}$ ,  $R_o = \sqrt{I_R^o}$ , sendo que  $I_S^o$  e  $I_R^o$  são as irradiâncias na face de entrada do cristal. O termo  $\exp(i\psi_d \sin(\Omega t))$  está associado à modulação de fase do feixe  $S$ ,  $\theta'$  é a metade do ângulo entre os feixes incidentes dentro do cristal,  $\lambda$  o comprimento de onda no vácuo,  $r_{\text{eff}}$  o

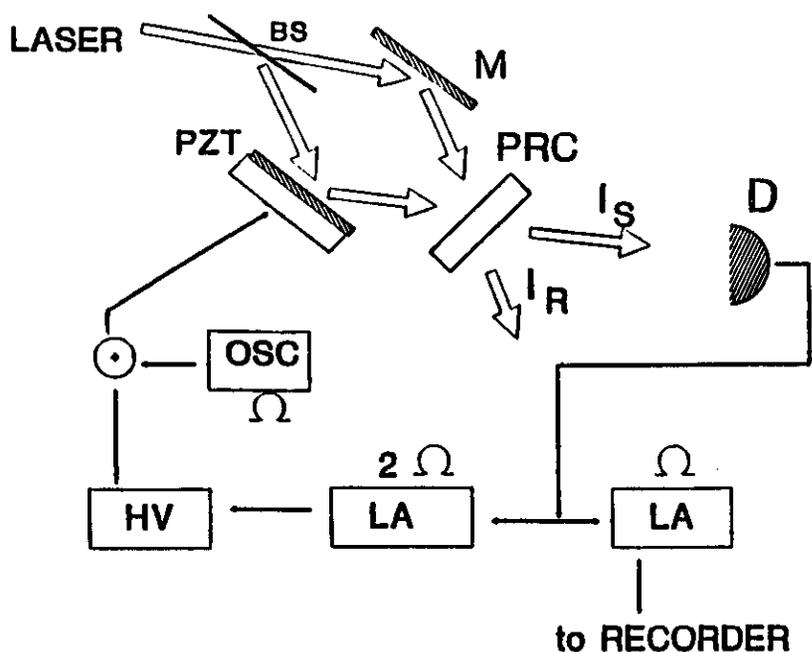


Figura 5.1: Montagem experimental para a gravação auto-estabilizada. M: espelho, PZT: espelho acoplado ao piezoelétrico, BS: divisor de feixes, PRC: cristal de  $\text{LiNbO}_3$ , D: detector, LA: amplificador lock-in, HV: amplificador de alta tensão para o PZT, OSC: oscilador

coeficiente eletroóptico efetivo,  $n$  o índice de refração no volume do cristal,  $d$  a espessura do cristal, e  $E_{sc}$  é a amplitude do campo de cargas espaciais. Devemos ainda observar que [6]:

$$\text{sen}(\kappa d) = \text{sen}\left(\frac{\pi dn^3 r_{e\pi} E_{sc}}{2\lambda \cos\theta'}\right) = \sqrt{\eta_P} \quad (5.4)$$

onde  $\eta_P$  é a eficiência de difração da rede fotorrefrativa, descontando-se as perdas por absorção.

Baseado no mesmo procedimento descrito no capítulo anterior, podemos desenvolver a Eq. (5.1) e encontrar expressões para a amplitude do primeiro ( $I^\Omega$ ), e também do segundo ( $I^{2\Omega}$ ) harmônicos em  $\Omega$ :

$$I^\Omega = \psi_d I_o(m/2) \text{sen}(2\kappa d) \text{sen}(\varphi) \quad (5.5)$$

$$I^{2\Omega} = (\psi_d/2)^2 I_o(m/2) \text{sen}(2\kappa d) \cos(\varphi) \quad (5.6)$$

onde eliminamos os efeitos da absorção do cristal.  $\varphi = \psi + 90^\circ$  (ou  $\varphi = \psi - 90^\circ$  dependendo da direção da transferência de energia no cristal),  $m = 2\sqrt{I_S^0 I_R^0} / (I_S^0 + I_R^0)$  é a modulação do padrão de franjas de interferência, e  $I_o = I_S^0 + I_R^0$ . Para cristais com efeito fotovoltaico dominante, como no presente caso,  $\psi = 180^\circ$  de modo que  $\varphi = -90^\circ$  (ou  $\varphi = 90^\circ$  como observado acima), o que leva a  $I^{2\Omega} = 0$ . Portanto isso permite que usemos  $I^{2\Omega}$  como “sinal de erro” para a operação de um sistema de estabilização negativa. Esse sinal controla a posição de um espelho que está apoiado sobre cerâmicas piezoelétricas de modo que qualquer perturbação no sistema provoca uma variação em  $\varphi$ , que ao tomar um valor diferente de  $-90^\circ$  faz  $I^{2\Omega} \neq 0$  resultando em uma voltagem sobre o piezoelétrico. Este então se moverá até que a condição  $I^{2\Omega} = 0$  seja reestabelecida.

Existem duas condições naturais em que esta situação é possível: nos casos em que  $\psi = 180^\circ$  e também para  $\psi = 0^\circ$ . O que determina se a realimentação do sistema é negativa ou positiva é o sinal (+ ou -) de  $I^{2\Omega}$  quando ocorre uma perturbação e este deixa de ser zero. Este sinal pode ser ajustado no lock-in de modo que se pode realizar tanto uma escrita quanto um apagamento estabilizado. Uma vez que seja escolhida a condição de gravação construtiva, o valor de  $\kappa d$  deve crescer até que  $\kappa d = \pi/2$  ( $\eta = 1$ ). A partir desse ponto, qualquer aumento neste valor fará mudar o sinal de  $I^{2\Omega}$  (vide Eq. (5.6)) o que provoca um apagamento estabilizado, acarretando uma diminuição no valor de  $\kappa d$  até que seja reestabelecida a situação anterior. Portanto esta é uma condição estável, e a eficiência  $\eta = 1$  se manterá inalterada enquanto a estabilização estiver operando.

Assumimos que a modulação do campo elétrico de cargas espaciais evolui temporalmente segundo uma exponencial com tempo característico  $\tau$  [70, 71] (vide Apêndice-A), deste modo as Eqs. (5.5, 5.6) podem ser escritas como:

$$V^\Omega(t) = A \text{sen}(B(1 - \exp(-t/\tau))) \quad (5.7)$$

$$V^{2\Omega}(t) = 0 \quad (5.8)$$

$$\text{onde } A = k_D \psi_d I_o m / 2 \quad (5.9)$$

$$\text{e } B = \frac{\pi d n^3 r_{\text{eff}} E_{\text{sc}}}{\lambda \cos \theta'} \quad (5.10)$$

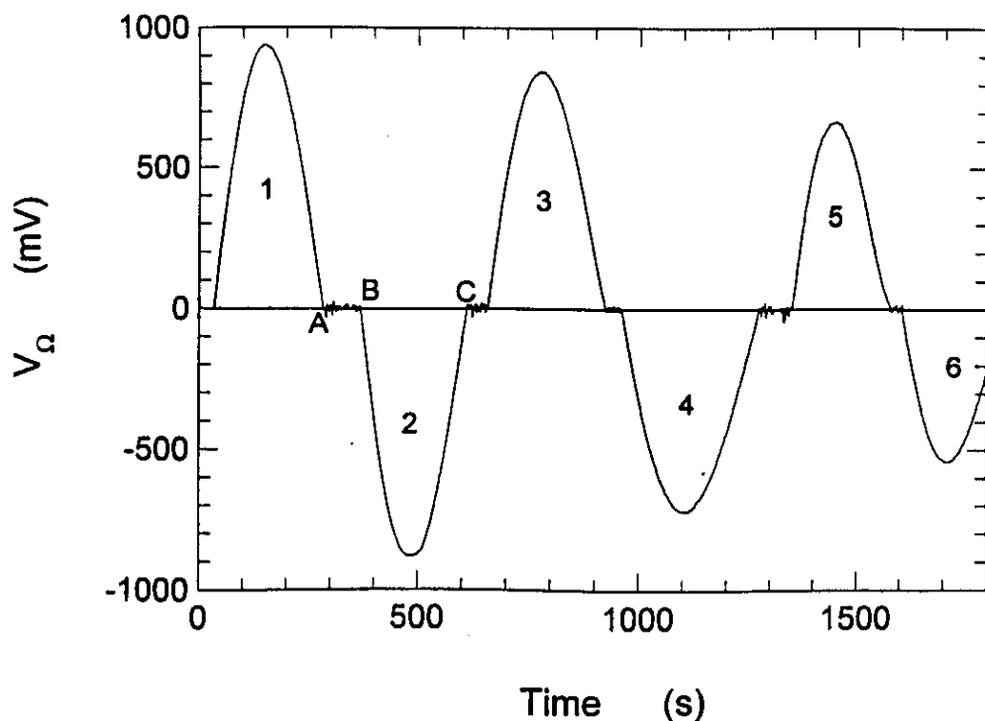


Figura 5.2: Evolução de  $V_\Omega$  durante a gravação e apagamento estabilizados em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  fortemente dopado (amostra SC#1). Foram utilizados feixes com polarização extraordinária.  $I_R = 5.1 \text{ (mW/cm}^2\text{)}$  e  $I_S = 10.0 \text{ (mW/cm}^2\text{)}$

### 5.3 Resultados

Os experimentos de gravação holográfica estabilizada foram feitos utilizando-se três amostras de cristais de  $\text{LiNbO}_3$  com diferentes graus de dopagem com ferro: a) SC#1 – fortemente dopado (valor desconhecido), b) T02-12 – 0.015% (oxidado), e c) 751-8 – 0.10%. Em todos os casos o cristal foi posicionado de modo que o seu eixo  $\vec{c}$  estivesse paralelo ao vetor  $\vec{K}$  da rede gravada.

#### a) Amostra SC#1 (IFQSC – USP)

Um padrão de interferência de luz com polarização extraordinária, ou seja, paralela ao eixo  $\vec{c}$  do cristal, foi projetado sobre toda a sua superfície. Usamos feixes de um laser de  $\text{Ar}^+$  com  $\lambda = 514.5 \text{ nm}$  e ângulo de incidência de  $\theta = 16^\circ$  no ar. O sinal  $I^\Omega$  foi medido na direção  $S$  depois do cristal e a sua evolução foi registrada durante a gravação holográfica.

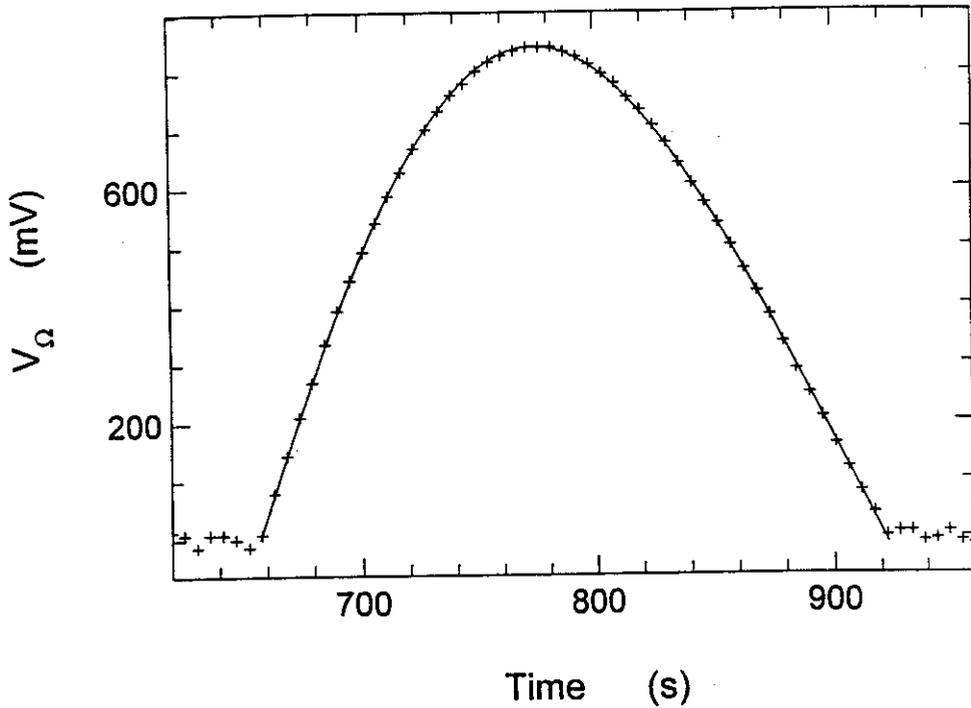


Figura 5.3: Ajuste da Eq. (5.7) ao segundo ciclo positivo mostrado na Fig. 5.2

Verificamos que a condição  $I^{2\Omega} = 0$  se manteve estável durante toda o processo de escrita, o que demonstra ser esta a condição natural de gravação nestes cristais. Se este não fosse o caso, deveríamos ter uma variação no valor de  $I^{2\Omega}$  durante o processo de gravação, fato este já verificado no caso da gravação estabilizada em um cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  quando submetido a um campo elétrico externo aplicado na direção do vetor de rede [53, 72].

Utilizamos o sinal do detector que estava posicionado na direção  $S$  depois do cristal. A evolução experimental de  $I^\Omega$  foi medida na saída do lock-in como  $V^\Omega = k_D I^\Omega$  (onde  $k_D = 24.7 \text{ V cm}^2 / \text{ mW}$  é a sensibilidade do fotodetector), e a sua evolução está mostrada na Fig. 5.2.

Quando a gravação atingiu o ponto **A**, obstruindo um dos feixes incidentes, verificamos que havia sido alcançado a condição  $\eta = 1$  (100% de eficiência). Esta situação foi mantida enquanto o sistema de estabilização esteve operando – em concordância com a discussão apresentada anteriormente. No ponto **B**, a fase de estabilização foi mudada em  $180^\circ$  no Lock-in ( $2\Omega$ ), e então  $V^\Omega$  evoluiu até o ponto **C** onde verificamos que  $\eta = 0$  novamente. O mesmo procedimento foi repetido mais algumas vezes. Da Fig. 5.2 podemos notar que os tempos de escrita e apagamento estabilizados são aproximadamente

os mesmos, indicando que nas regiões em que  $V^\Omega$  é negativo, o que obtivemos é de fato o apagamento estabilizado e não a continuidade do processo de gravação como também seria possível [65]. Verificou-se também um decaimento do valor dos máximos no decorrer do processo. A menos do dado para o ciclo número 4, os outros máximos seguem perfeitamente um decaimento exponencial com tempo característico de  $\approx 950$  seg. Atribuímos essa queda ao crescente espalhamento de luz provocado pelo cristal. Voltaremos a este ponto mais à frente.

Utilizamos então uma parte dos dados obtidos para testar o modelo apresentado. A Fig. 5.3 mostra os pontos experimentais (+) do segundo ciclo positivo da Fig. 5.2 (escolhido arbitrariamente) e a linha contínua que representa o melhor ajuste da Eq. (5.7). Em todos os demais ciclos o comportamento temporal também seguiu o modelo apresentado. O mesmo experimento foi repetido com esta amostra, porém com luz ordinariamente polarizada. Neste caso o tempo característico de escrita foi de  $\approx 1400$  seg.

#### b) Amostra T-02-12 (Osnabrück – Alemanha)

Neste experimento utilizamos apenas feixes polarizados extraordinariamente. O resultado está apresentado na Fig. 5.4. Como se vê, esta amostra é bem mais lenta do que a anterior, embora apresente maior uniformidade e menor espalhamento.

#### c) Amostra 751-8 (Osnabrück)

Em todos os casos apresentados até aqui, havíamos trabalhado com feixes de escrita cujas razões entre suas intensidades eram de  $\approx 2$ . Verificamos que as curvas obtidas para a evolução temporal de  $V^\Omega$  estão em excelente acordo ao modelo apresentado. Procuramos então reforçar as condições favoráveis ao aparecimento de efeitos associados ao fenômeno de “bended holograms”. Para tal, realizamos um experimento com a amostra 751-8, com maior dopagem, e portanto mais rápida do que a amostra T-02-12. Neste caso usamos feixes com uma razão de intensidades de  $\approx 7.3$ .

Ocorreu que, diferentemente dos outros experimentos até então realizados, neste caso foi detectado um deslocamento significativo do espelho acoplado ao PZT. Ou seja, verificamos que a condição  $V^{2\Omega} = 0$  não era mais a condição natural de registro, e tivemos que ajustar manualmente a tensão do “bias” do PZT para mantê-la durante a gravação.

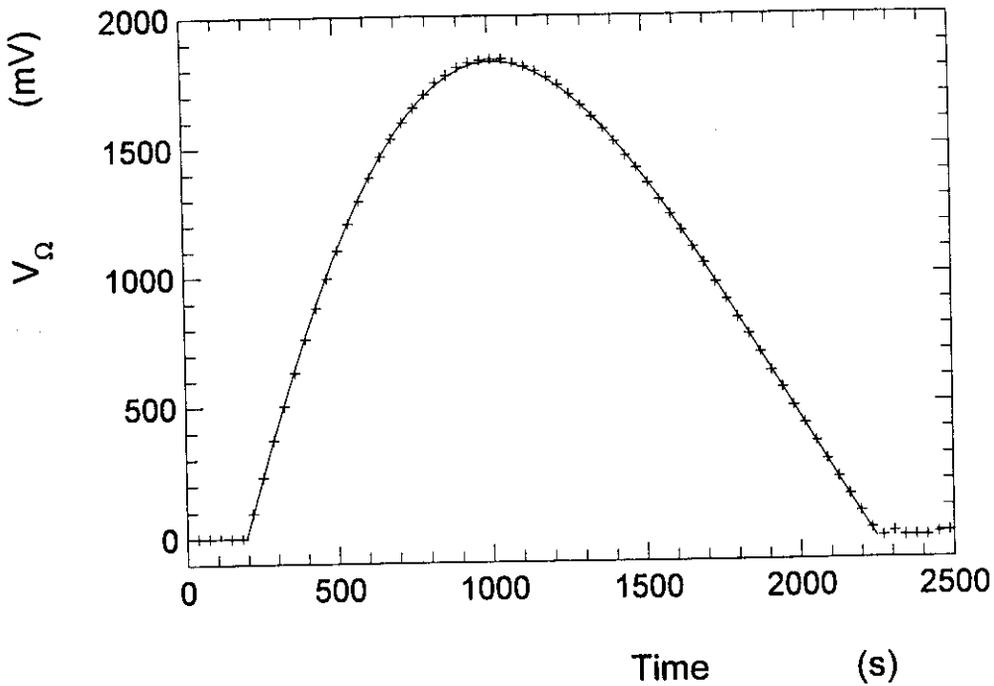


Figura 5.4: Ajuste da equação (5.7) aos dados obtidos da evolução temporal de  $V_\Omega$  para a amostra T02-12 com luz polarizada extraordinariamente.  $I_R^o = 5.0$  ( $\text{mW}/\text{cm}^2$ ),  $I_S^o = 9.5$  ( $\text{mW}/\text{cm}^2$ )

Entretanto, mesmo nestas condições o registro estabilizado funcionou, e obtivemos o valor de 100% para a eficiência de difração, com uma margem de erro menor do que 4%. A curva, mostrando a evolução deste registro está apresentada na Fig. 5.5, onde se pode ver que o acordo com a teoria ainda continua muito bom. Vê-se que o início do registro está um pouco ruidoso, isto ocorreu devido a alguns ajustes preliminares que foram feitos.

Em suma, todos os resultados estão de acordo com a Eq. (5.7), e os parâmetros que resultaram do melhor ajuste estão apresentados na Tabela 1.

Alguns dos parâmetros na Eqs. (5.7-5.10) estão diretamente relacionados a constantes fundamentais do cristal, e podem ser comparados com aqueles que apresentados na literatura. Para simplificar essa comparação, devemos escrever  $E_{sc}$  em termos do campo fotovoltaico  $E_{ph} = \kappa_{ph} I / (\sigma d)$ , e  $\tau$  em termos da constante dielétrica estática  $\epsilon_{33}^{st}$  e a fotocondutividade  $\sigma$ :

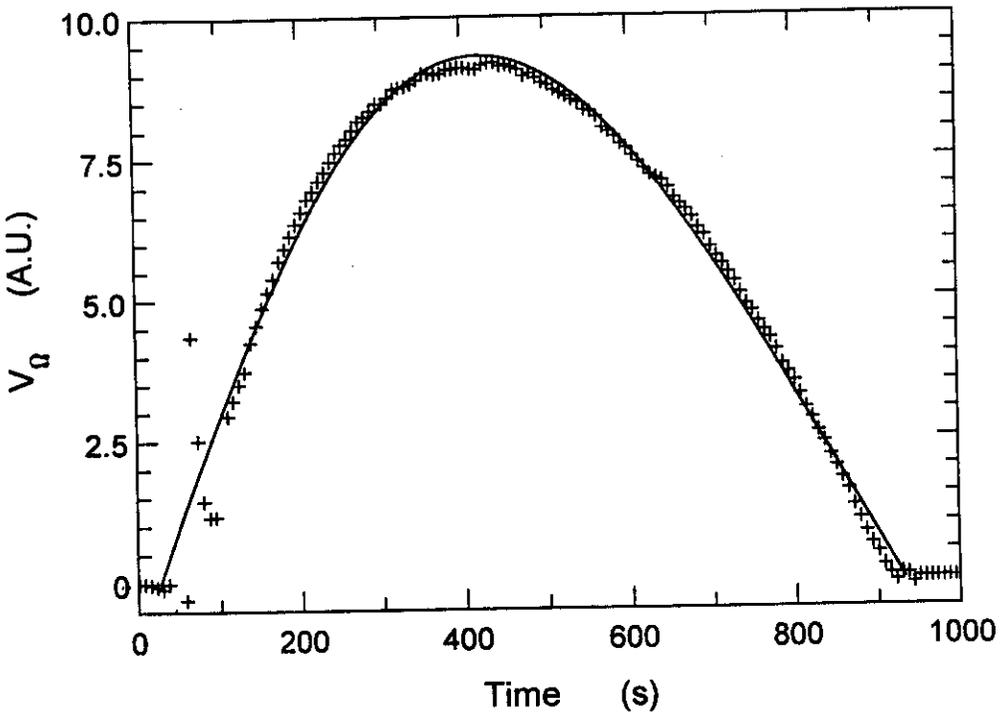


Figura 5.5: Ajuste da equação (5.7) (linha contínua) aos dados experimentais (+) obtidos da evolução temporal de  $V_\Omega$  para a amostra 751-8 com luz polarizada extraordinariamente.  $I_R^o = 5.8$  (mW/cm<sup>2</sup>),  $I_S^o = 0.8$  (mW/cm<sup>2</sup>)

$$E_{sc}^o = m\kappa_{ph}I/(\sigma d) \quad (5.11)$$

$$\tau = \epsilon_{33}^{st}\epsilon_o/\sigma \quad (5.12)$$

onde  $\kappa_{ph}$  é o coeficiente fotovoltaico de transporte [9] e  $I$  é a irradiância efetivamente absorvida [73].

Para verificar se os dados que podemos obter desse modelo estão de acordo com os dados da literatura, podemos lançar mão da definição da sensibilidade holográfica (embora esta definição sofra algumas variações entre os autores). Vamos tomar a sensibilidade ( $\mathcal{S}$ ) como a variação do índice de refração por unidade de energia absorvida por unidade de volume do cristal por unidade de modulação, no instante inicial do processo de gravação.

Temos que a variação do índice é dada por:

$$\Delta n = \frac{n_{eff}^3 r_{eff} E}{2} \quad (5.13)$$

e considerando as expressões (5.11) e (5.12), teremos:

$$S = \frac{\Delta n d}{m I_A \tau} = \frac{1}{2} n_{\text{eff}}^3 r_{\text{eff}} d \frac{\kappa_{\text{ph}}}{\epsilon_{33}^{\text{st}} \epsilon_0} \quad (5.14)$$

Rearranjando os termos e substituindo a expressão (5.10) podemos obter:

$$S = \frac{B \lambda \cos \theta'}{\tau 2\pi I} \quad (5.15)$$

**Tabela 1 – Resultados Experimentais**

Amostra	Pol.	$I_S^0$	$I_R^0$	$d$	$\alpha$	$A$	$B$	$\tau$	$S$	
									$10^{-11}$ m <sup>3</sup> /J	Exp. Teor.
SC#1	ORD	4.8	9.6	1.78	0.820	4.0	4.4	1360	0.29	0.33
	EXT	5.1	10.0		0.533	8.4	8.7	590	1.51	
TO2-12	EXT	9.5	5.0	0.94	0.202	18.2	5.7	2530	0.77	1.05
751-8	EXT	5.8	0.8	0.85	1.165	–	7.8	1760	1.46	

Os valores de  $S$  obtidos a partir dos resultados experimentais são apresentados na Tabela 1 e podemos verificar que estes tem a mesma ordem de grandeza dos valores teóricos calculados a partir da Eq. 5.14, utilizando os dados disponíveis na literatura (vide capítulo 2). Devemos ressaltar aqui que o nosso objetivo não é o de avaliar parâmetros do material com precisão, apenas utilizamos estes parâmetros como uma forma de verificar a coerência de nossos dados. Uma possível razão para as discrepâncias que encontramos nos valores de  $S$  está no fato que estamos considerando a constante fotovoltaica de fato como

invariante entre as amostras, embora se espere que esta deva depender em alguma medida da concentração de dopantes e do tratamento recebido pela amostra.

## 5.4 Conclusão

Realizamos experimentos de registro holográfico auto-estabilizado em cristais de  $\text{LiNbO}_3$  e obtivemos a gravação de redes de difração de alta eficiência. Verificamos que nossos resultados experimentais se ajustam muito bem à formulação de Kogelnik [6] para a eficiência de difração, onde a evolução temporal do processo de gravação é representada por uma exponencial.

Estes resultados são algo inesperados, pois utilizamos feixes de escrita com razões de intensidade variando entre 2 e 7, condições estas que nos levavam a esperar por um acentuado efeito de auto-difração, como a formação de “bended holograms” durante o registro holográfico. Verificamos, entretanto que as eficiências de difração se mantêm iguais para ambos os feixes, e que além disso, o modelo mais simples também explica o fato de que a condição  $\eta = 1$  pode ser mantida indefinidamente no modo de gravação estabilizada.

Quanto à queda dos máximos de  $V_\Omega$  na Fig. 5.2, existem duas possíveis explicações:

1. Aumento do espalhamento pelo cristal – este fato pôde ser verificado durante o registro. A diminuição da eficiência devido ao aumento da luz espalhada também foi verificada por outros autores [74, 75]
2. A corrente fotovoltaica geraria um acúmulo de cargas nas laterais do cristal, e este campo reverso estaria diminuindo o valor de  $E_{ph}$  dentro da amostra. Este é o modelo na Ref. [71], entretanto, como já discutimos no capítulo 2, Günter [14] – pg.212, descarta essa possibilidade ao afirmar que jamais foi verificado qualquer acúmulo de cargas nas bordas do cristal, e que estas se reequilibram através de uma corrente superficial, uma vez que a condutividade superficial é muito maior do que a volumétrica.

A nossa experiência entretanto, indica que ao se curto-circuitar o cristal, melhora a reprodutibilidade dos experimentos. Portanto deve haver alguma influência da concentração de cargas nas bordas do cristal, ou, que no caso de circuito aberto, a corrente superficial perturbe a distribuição de cargas volumétricas, o que é evitado fechando-se o circuito.

O procedimento de gravação estabilizada descrito neste trabalho pode tanto ajudar no desenvolvimento de novas aplicações, assim como ser utilizada no estudo da natureza do registro óptico em cristais fotovoltaicos. Recentemente um novo avanço nessa linha de pesquisa foi obtido por Freschi *et al* [76] que obteve modulações do índice de refração ainda maiores do que aquele necessário para se atingir  $\eta=100\%$ .

# CAPÍTULO 6

## Conclusão Final

Em continuidade ao trabalho que havíamos desenvolvido no mestrado [52, 53, 64], procuramos explorar novos aspectos do registro holográfico em diferentes cristais fotorrefrativos.

No capítulo 2 vimos as principais características, no que diz respeito a este trabalho, dos cristais de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  e de  $\text{LiNbO}_3$ . No capítulo 3 apresentamos a teoria de dois temas básicos para a aplicação na parte experimental: a) a mistura de ondas em um meio com modulação espacial de índice de refração e de coeficiente de absorção e b) as equações de transporte de cargas que se redistribuem induzidas pela projeção de um padrão de franjas de interferência sobre o meio.

No capítulo 4 utilizamos as propriedades de difração calculadas no capítulo 3 para um meio onde estão registradas simultaneamente um rede de fase e uma rede de amplitude. Vimos que é possível separar estes efeitos, e mostramos um novo método bastante promissor de detecção e controle seletivos do registro holográfico estabilizado. Utilizamos a evolução temporal do sinal difratado durante o apagamento em ambos os braços do interferômetro e vimos como este procedimento é útil na determinação dos mecanismos envolvidos.

No capítulo 5 exploramos as características do  $\text{LiNbO}_3$  para obter grandes modulações de índice de refração. Demonstramos que é possível tanto registrar quanto apagar informações holográficas nestes cristais de forma estabilizada. Utilizamos amostras bastante diferentes entre si, e também variamos as razões entre as intensidades dos feixes de escrita. Em todos os casos obtivemos boa concordância com a teoria. Verificamos que a

dependência temporal do registro holográfico nestas condições parece indicar não haver qualquer influência da auto-difração no processo.

Os novos métodos de registro holográfico, e os resultados apresentados neste trabalho abrem novas perspectivas para aplicações e também para o estudo de outros cristais fotorrefrativos, além de terem dado origem a novas questões e propostas de trabalho.

## PERSPECTIVAS FUTURAS

Embora ainda não existam dispositivos ópticos que utilizem cristais fotorrefrativos disponíveis no mercado [25], os fenômenos físicos envolvidos, e todos os materiais que apresentam esta propriedade continuam recebendo crescente atenção no meio científico.

Além das aplicações mencionadas anteriormente, podemos encontrar uma série de outras no JOSA B vol.9 de setembro-92 que foi especialmente dedicado aos materiais, efeitos e dispositivos fotorrefrativos. De onde se pode ter uma idéia da riqueza do assunto.

Dentre eles podemos citar:

- “Quantum Wells” fotorefrativos
- Polímeros fotorefrativos
- Modulação fotorefrativa de grande amplitude
- Espelhos de conjugação de fase.

No que diz respeito diretamente ao nosso trabalho, foi levantada uma questão de grande importância: saber qual é exatamente o papel da auto-difração no processo de registro holográfico. Pois, da nossa experiência com os cristais de  $\text{LiNbO}_3$  onde alcançamos altos valores para a eficiência de difração, tudo se passou como se este efeito não existisse.

Há muito que foi previsto [77], mas nunca verificado diretamente, que em determinadas condições deve ocorrer a curvatura dos planos da rede de fase no volume no cristal de  $\text{LiNbO}_3$ . Uma das possíveis conseqüências deste fenômeno, seria uma assimetria no

valor da eficiência de difração desta rede. Esta é uma questão bastante interessante, e esclarecê-la será de grande importância para a compreensão da dinâmica do registro holográfico.

Experimentos realizados recentemente demonstraram que em registros “livres” (não auto-estabilizado), quando a relação entre as intensidades dos feixes é muito diferente de 1, ocorre que ao longo do processo de registro há uma mudança de fase entre os sinais difratado e transmitido pela rede, indicando que a rede em si está se deslocando de sua posição inicial. Este fato ainda não está elucidado, mas parece ser uma indicação de que possa estar ocorrendo “bended holograms” nestes cristais. Além disso, nos dá uma mostra do papel da estabilização como controle do processo, uma vez que o registro auto-estabilizado impede este deslocamento de fase.

Na primeira parte do trabalho, nós detectamos a presença de redes de difração associadas a ao efeito fotocromico e também ao efeito fotorrefrativo em uma amostra de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ . Esta característica pode ser utilizada para a multiplexação de imagens nestes cristais, e será interessante analisarmos outras amostras para verificar quais são os fatores dos quais depende esta associação de efeitos.

# Apêndice A

Vamos analisar inicialmente as situações em que temos apenas um tipo de rede gravada em volume, primeiro o caso de uma rede fotorrefrativa, e em seguida o de uma fotocromica. Depois analisaremos o caso em que ocorre a presença simultânea dos dois tipos de rede no caso especial em que estejam defasadas de  $1/4$  de período ( $\pi/2$ ) entre si.

Tínhamos das Eqs.(3.13, 3.14) que no caso geral as EOA são:

$$\frac{d^2 R_1(z)}{dz^2} = -\frac{\aleph_+ \aleph_-}{\cos^2 \theta} m^2 R_1(z) \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{d^2 S_1(z)}{dz^2} = -\frac{\aleph_+ \aleph_-}{\cos^2 \theta} m^2 S_1(z) \quad (\text{A.2})$$

onde  $\aleph_+$  e  $\aleph_-$  estão dadas pelas Eqs.(3.15,3.16).

## A.1 Rede Fotorrefrativa

No caso vamos condiderar que não temos modulação de absorção ( $\alpha_1 = 0$ ) e portanto as constantes de acoplamento serão:

$$\aleph_+ = \left(\frac{\pi}{\lambda} n_1\right) e^{i(\phi_p + \psi)} \quad (\text{A.3})$$

$$\aleph_- = \left(\frac{\pi}{\lambda} n_1\right) e^{-i(\phi_p + \psi)} \quad (\text{A.4})$$

Fazendo  $\aleph_p = (\pi n_1 m)/(\lambda \cos \theta)$ , podemos escrever:

$$\frac{d^2 R_1(z)}{dz^2} = -(\aleph_p)^2 R_1(z) \quad (\text{A.5})$$

$$\frac{d^2 S_1(z)}{dz^2} = -(\aleph_p)^2 S_1(z) \quad (\text{A.6})$$

Propondo soluções da forma:

$$R_1(z) = A_R \exp(i\aleph_p z) + B_R \exp(-i\aleph_p z) \quad (\text{A.7})$$

$$S_1(z) = A_S \exp(i\aleph_p z) + B_S \exp(-i\aleph_p z) \quad (\text{A.8})$$

obteremos para  $z = d$  (face de saída do cristal) as seguintes amplitudes para as ondas propagantes:

$$R_1 = R_0 \cos(\aleph_p d) - i S_0 e^{i(\phi_p + \psi)} \text{sen}(\aleph_p d) \quad (\text{A.9})$$

$$S_1 = S_0 \cos(\aleph_p d) - i R_0 e^{-i(\phi_p + \psi)} \text{sen}(\aleph_p d) \quad (\text{A.10})$$

onde  $R_0$  e  $S_0$  são as suas amplitudes na face  $z = d$  quando não há nenhuma rede gravada.

E portanto teremos para as intensidades:

$$I_R = I_R^\circ \cos^2(\aleph_p d) + I_S^\circ \text{sen}^2(\aleph_p d) + 2\sqrt{I_R^\circ I_S^\circ} \text{sen}(\aleph_p d) \cos(\aleph_p d) \text{sen}(\phi_p + \psi) \quad (\text{A.11})$$

$$I_S = I_S^\circ \cos^2(\aleph_p d) + I_R^\circ \text{sen}^2(\aleph_p d) - 2\sqrt{I_R^\circ I_S^\circ} \text{sen}(\aleph_p d) \cos(\aleph_p d) \text{sen}(\phi_p + \psi) \quad (\text{A.12})$$

Se observarmos que:

$$\text{sen}^2(\aleph_p d) = \eta_P \quad e \quad \cos^2(\aleph_p d) = 1 - \eta_P \approx 1 \quad (\text{A.13})$$

podemos escrever as expressões (A.11) e (A.12) como:

$$I_R = I_R^o + I_S^o \eta_P + 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \sqrt{\eta_P} \text{sen}(\phi_p + \psi) \quad (\text{A.14})$$

$$I_S = I_S^o + I_R^o \eta_P - 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \sqrt{\eta_P} \text{sen}(\phi_p + \psi) \quad (\text{A.15})$$

## A.2 Rede Fotocrômica

De modo equivalente ao caso anterior, consideramos agora apenas a presença de uma rede fotocrômica no cristal. Fazendo  $n_1 = 0$ , teremos para as constantes de acoplamento que:

$$\aleph_+ = -i \left( \frac{\alpha_1}{4} \right) e^{i(\phi_a + \psi)} \quad (\text{A.16})$$

$$\aleph_- = -i \left( \frac{\alpha_1}{4} \right) e^{-i(\phi_a + \psi)} \quad (\text{A.17})$$

Substituindo  $\aleph_a = (\alpha_1 m)/(4 \cos \theta)$ , as EOA neste caso ficarão na forma:

$$\frac{d^2 R_1(z)}{dz^2} = (\aleph_a)^2 R_1(z) \quad (\text{A.18})$$

$$\frac{d^2 S_1(z)}{dz^2} = (\aleph_a)^2 S_1(z) \quad (\text{A.19})$$

As soluções das Eqs. acima deverão portanto ser da forma:

$$R_1(z) = A_R \exp(\aleph_a z) + B_R \exp(-\aleph_a z) \quad (\text{A.20})$$

$$S_1(z) = A_S \exp(\aleph_a z) + B_S \exp(-i\aleph_a z) \quad (\text{A.21})$$

De onde podemos obter para  $z = d$  que:

$$R_1 = R_0 \cosh(\aleph_a d) - S_0 e^{i(\phi_a + \psi)} \sinh(\aleph_a d) \quad (\text{A.22})$$

$$S_1 = S_0 \cosh(\aleph_a d) - R_0 e^{-i(\phi_a + \psi)} \sinh(\aleph_a d) \quad (\text{A.23})$$

E portanto:

$$\begin{aligned} I_R = I_R^o \cosh^2(\aleph_a d) + I_S^o \sinh^2(\aleph_a d) \\ - 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \cosh(\aleph_a d) \sinh(\aleph_a d) \cos(\phi_a + \psi) \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

$$\begin{aligned} I_S = I_S^o \cosh^2(\aleph_a d) + I_R^o \sinh^2(\aleph_a d) \\ - 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \cosh(\aleph_a d) \sinh(\aleph_a d) \cos(\phi_a + \psi) \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

e observando que:

$$\sinh^2(\aleph_a d) = \eta_A \quad e \quad \cosh^2(\aleph_a d) = 1 + \eta_A \approx 1 \quad (\text{A.26})$$

as expressões (A.24) e (A.25) podem ser reescritas como:

$$I_R = I_R^o + I_S^o \eta_A - 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \sqrt{\eta_A} \cos(\phi_a + \psi) \quad (\text{A.27})$$

$$I_S = I_S^o + I_R^o \eta_A - 2\sqrt{I_R^o I_S^o} \sqrt{\eta_A} \cos(\phi_a + \psi) \quad (\text{A.28})$$

Uma análise cuidadosa das Eqs.(A.24, A.25), em que se toma rigorosamente o valor de  $\cosh^2(\aleph_a d) = 1 + \eta_A$ , parece, a princípio, indicar um resultado incorreto. Tomemos p.ex. a Eq.(A.27), se fizermos  $I_S^o = 0$ , poderíamos, ter um feixe transmitido maior do que o incidente ( $I_R > I_R^o$ ).

O que ocorre é que fizemos uma transformação para eliminar o efeito da absorção de volume, de modo que ela deixasse de aparecer na formulação acima. Ou seja, isto é

equivalente a tomarmos os valores das intensidades somente **após** o cristal. No entanto estamos considerando o caso de um meio cuja absorção pode ser modulada pela luz, mas de modo que ela aumenta nas regiões de franja clara, e não se altera nas regiões de franja escura, o que significa que um aumento no valor de sua amplitude de modulação ( $\alpha_1$ ) implica em um aumento da absorção total efetiva, o que corresponde portanto a uma diminuição no valor de  $I_{(R,S)}^o$ .

### A.3 Rede Fotorrefrativa + Rede Fotocrômica

No caso em que temos simultaneamente uma rede fotorrefrativa e uma rede fotocrômica gravadas no cristal, se torna muito complicado encontrar uma solução para o caso geral de uma relação de fase qualquer entre as redes. No caso especial em que  $\phi_a = \pi$  (ou 0) e  $\phi_p = \pm\pi/2$  teremos:

$$N_+ N_- = \Delta \Sigma = \left( \frac{\pi n_1}{\lambda} \right)^2 - \left( \frac{\alpha_1}{4} \right)^2 \quad (\text{A.29})$$

onde:

$$\Delta = \frac{\pi n_1}{\lambda} - \frac{\alpha_1}{4} \quad \text{e} \quad \Sigma = \frac{\pi n_1}{\lambda} + \frac{\alpha_1}{4} \quad (\text{A.30})$$

E teremos soluções para as Eqs.(3.13, 3.14) da forma:

$$R_1(z) = A_R \exp\left(i\sqrt{\Delta\Sigma} \frac{m}{\cos\theta} z\right) + B_R \exp\left(-i\sqrt{\Delta\Sigma} \frac{m}{\cos\theta} z\right) \quad (\text{A.31})$$

$$S_1(z) = A_S \exp\left(i\sqrt{\Delta\Sigma} \frac{m}{\cos\theta} z\right) + B_S \exp\left(-i\sqrt{\Delta\Sigma} \frac{m}{\cos\theta} z\right) \quad (\text{A.32})$$

e como condições de contorno teremos:

$$R_1(z=0) = R_0 \quad \text{e} \quad S_1(z=0) = S_0$$

1. De onde temos imediatamente que:

$$R_0 = A_R + B_R \quad \text{e} \quad S_0 = A_S + B_S \quad (\text{A.33})$$

2. Substituindo as soluções propostas acima nas Eqs.(3.11, 3.12) e fazendo  $z=0$ , teremos:

$$-A_R + B_R = -i\sqrt{\frac{\Sigma}{\Delta}}S_0e^{-i\psi} \quad (\text{A.34})$$

$$-A_S + B_S = i\sqrt{\frac{\Delta}{\Sigma}}R_0e^{i\psi} \quad (\text{A.35})$$

Então, fazendo estas substituições nas Eqs.(A.31, A.32), teremos:

$$R_1 = R_0 \cos\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}z\right) - \sqrt{\frac{\Sigma}{\Delta}}S_0 \operatorname{sen}\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}z\right) e^{-i\psi} \quad (\text{A.36})$$

$$S_1 = S_0 \cos\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}z\right) + \sqrt{\frac{\Delta}{\Sigma}}R_0 \operatorname{sen}\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}z\right) e^{i\psi} \quad (\text{A.37})$$

que são as soluções gerais do problema.

Portanto teremos na face de saída do cristal ( $z = d$ ) que:

$$\begin{aligned} I_R = R_1^* R_1 &= I_R^o \cos^2\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}d\right) + \frac{\Sigma}{\Delta} I_S^o \operatorname{sen}^2\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{md}{\cos\theta}\right) \\ &\quad - \sqrt{\frac{\Sigma}{\Delta}} \sqrt{I_R^o I_S^o} \operatorname{sen}\left(2\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{md}{\cos\theta}\right) \cos\psi \end{aligned} \quad (\text{A.38})$$

$$\begin{aligned} I_S = S_1^* S_1 &= I_S^o \cos^2\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{m}{\cos\theta}d\right) + \frac{\Delta}{\Sigma} I_R^o \operatorname{sen}^2\left(\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{md}{\cos\theta}\right) \\ &\quad + \sqrt{\frac{\Delta}{\Sigma}} \sqrt{I_R^o I_S^o} \operatorname{sen}\left(2\sqrt{\Delta\Sigma}\frac{md}{\cos\theta}\right) \cos\psi \end{aligned} \quad (\text{A.39})$$

Considerando o caso em que temos baixas eficiências de difração, ou seja  $n_1 \ll 1$  e  $\alpha_1 \ll 1$  podemos escrever as expressões acima diretamente em função de  $\eta_P$  e  $\eta_A$ . Fazemos  $\operatorname{sen}(x) \approx x$  e  $\operatorname{senh}(x) \approx x$ , e observando que:

$$\eta_P = \operatorname{sen}^2\left(\frac{\pi n_1 md}{\lambda \cos\theta}\right) \approx \left(\frac{\pi n_1 md}{\lambda \cos\theta}\right)^2 \quad (\text{A.40})$$

$$\eta_A = \sinh^2\left(\frac{\alpha_1 md}{4 \cos\theta}\right) \approx \left(\frac{\alpha_1 md}{4 \cos\theta}\right)^2 \quad (\text{A.41})$$

vemos da Eq.(A.29) que:

$$\Delta\Sigma \left(\frac{md}{\cos\theta}\right)^2 = \eta_P - \eta_A \quad (\text{A.42})$$

Deste modo, as expressões (A.38 e A.39), para  $\eta_A, \eta_P \ll 1$ , podem ser escritas como:

$$I_R = I_R^o + (\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P})^2 I_S^o - 2(\sqrt{\eta_A} + \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_R^o I_S^o} \cos\psi \quad (\text{A.43})$$

$$I_S = I_S^o + (\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P})^2 I_R^o - 2(\sqrt{\eta_A} - \sqrt{\eta_P}) \sqrt{I_R^o I_S^o} \cos\psi \quad (\text{A.44})$$

Como foi dito anteriormente, para  $\phi_A = \pi$  (ou 0) e  $\phi_P = \pm\pi/2$ , as soluções das EOA para a rede fotorrefrativa e fotocrômica se tornam independentes. Entretanto, comparando as equações acima com as Eqs.(A.14, A.15, A.27, A.28) vemos que estas não podem ser simplesmente somadas, pois se perderia a informação sobre suas fases relativas que estão presentes nos sinais das *amplitudes* das ondas difratadas, nas parcelas intermediárias das Eqs.(A.43, A.44)

## A.4 Equações de Transporte de Cargas

Quando o tempo médio de permanência do fotoelétron na banda de condução  $\tau$ , é muito menor que o tempo de gravação do holograma  $\tau_{sc}$ , podemos desprezar a sua contribuição para a geração do campo elétrico de cargas espaciais, e considerar somente a densidade de aceitadores carregados, de maneira que podemos escrever a equação de Gauss como:

$$\vec{\nabla}_x \cdot \vec{D} = \rho(x) \quad (\text{A.45})$$

onde  $\rho(x) = qN_A(x)$  é a distribuição da densidade de cargas, sendo  $q$  a carga unitária. Usando a relação (3.24), teremos para o termo em  $e^{iKx}$ :

$$iK\epsilon\epsilon_o E_{sc} = qAN_A \quad (\text{A.46})$$

A equação de balanço para a densidade de centros aceitadores pode se escrita como:

$$\frac{\partial N_A(x)}{\partial t} = mg_o - (A + a)\frac{n_o}{\tau} \quad (\text{A.47})$$

onde  $g_o$  é a taxa de geração de fotoelétrons sob uma iluminação de irradiância uniforme  $I_o$ , e  $n_o/\tau$  a sua taxa de recombinação. O primeiro termo do lado direito de (A.47) representa a geração de fotoportadores pelo padrão luminoso, e o segundo a sua recaptura pelos centros aceitadores. Como  $\tau \ll \tau_{sc}$ , podemos considerar que há uma condição de quasi-equilíbrio entre a geração e a captura de elétrons, ou seja  $g_o \simeq n_o/\tau$ .

Por outro lado, a partir de (3.24) temos que:

$$\frac{\partial N_A(x)}{\partial t} = \frac{N_A}{2} \frac{\partial A}{\partial t} e^{iKx} \quad (\text{A.48})$$

e portanto, de (A.47) e (A.48):

$$N_A \frac{\partial A}{\partial t} = (m - (A + a)) \frac{n_o}{\tau} \quad (\text{A.49})$$

de onde obtemos que:

$$a = -N_A \frac{\tau}{n_o} \frac{\partial A}{\partial t} + (m - A) \quad (\text{A.50})$$

A Equação de Continuidade para as cargas de condução é:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \quad (\text{A.51})$$

onde:

$$\vec{J} = q\mu n \vec{E} + qD \vec{\nabla} n \quad (\text{A.52})$$

onde  $\vec{J}$  representa a densidade de corrente,  $D$  o coeficiente de difusão para os fotoelétrons e  $\mu$  a sua mobilidade.

Substituindo (A.52) em (A.51) teremos:

$$\frac{\partial n(x)}{\partial t} = -\mu \frac{\partial(nE)}{\partial x} - D \frac{\partial^2}{\partial x^2} n(x) \quad (\text{A.53})$$

Como  $\tau \ll \tau_{sc}$ , podemos considerar que  $\partial n(x)/\partial t \simeq \partial N_A(x)/\partial t$ , e portanto:

$$N_A \frac{\partial A}{\partial t} = -iK\mu n_o E_{sc} + K^2 n_o a D \quad (\text{A.54})$$

substituindo (A.50) temos:

$$N_A \frac{\partial A}{\partial t} (1 + K^2 D \tau) = (m - A) K^2 D n_o - iK\mu n_o E_{sc} \quad (\text{A.55})$$

## DEFINIÇÕES

Para colocar a expressão (A.55) numa forma mais compreensível, usaremos alguns conceitos e definições de grandezas usadas na descrição das propriedades de transporte na matéria condensada:

- $E_D = K \frac{D}{\mu} = K \frac{k_B T}{q}$

É o campo elétrico de difusão. Onde  $K$  é a constante de rede,  $D$  a constante de difusão do meio,  $\mu$  a mobilidade das cargas  $q$ ,  $k_B$  a constante de Boltzmann, e  $T$  a temperatura absoluta.

- $E_q = \frac{q N_A}{\epsilon K}$

É a amplitude máxima da modulação do campo elétrico associado ao holograma, para um dado valor de  $K$  e  $N_A$ .  $\epsilon = \epsilon \epsilon_0$  é a permissividade elétrica do meio,  $\epsilon$  a sua constante dielétrica.  $N_A$  é a densidade de centros aceitadores na amostra.

- $L_D = \sqrt{D\tau}$

É o comprimento de Difusão dos portadores. Onde  $\tau$  é o tempo de vida médio dos fotoportadores na banda de condução.

- $L_E = \mu\tau E_A$

É o Comprimento de Arraste dos fotoportadores pelo campo elétrico externo  $E_A$  aplicado ao cristal.

- $l_s = \sqrt{\frac{\epsilon k_B T}{q^2 N_A}}$

É o Comprimento de Blindagem de Debye, definido como a distância em que o potencial efetivo de uma carga  $q$ , colocada num meio com cargas livres, cai de  $1/e$ .

- $l_E = \frac{\epsilon E_A}{q N_A}$

É o Comprimento de ligação dos elétrons.

- $\tau_M = \frac{\epsilon}{q\mu n_0}$

É o Tempo de Relaxação de Maxell

Temos ainda que:

- $K^2 l_s^2 = \frac{E_D}{E_q}$  e  $K l_E = \frac{E_A}{E_q}$

- Da definição de  $E_q$  e de (A.46):

$$A = i \frac{E_{sc}}{E_q}$$

- Usando a relação de Einstein:  $D/\mu = (k_B T/q)$ , podemos obter:

$$\mu\tau = \frac{L_D^2}{(k_B T/q)}$$

Com base nas definições dadas acima podemos reescrever a Eq. (A.55). Após alguma álgebra, obtemos:

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_{sc}}{\partial t} (1 + K^2 L_D^2 - iKL_E) = & - \frac{1}{\tau_M} m (E_A + iE_D) \\ & + \frac{E_{sc}}{\tau_M} \left( 1 + \frac{E_D}{E_q} - i \frac{E_A}{E_q} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.56})$$

Esta expressão nos diz, de uma forma geral, como o campo  $E_{sc}$  evolui em função do tempo, e a sua dependência com as grandezas características do material.

Pode-se mostrar facilmente que:

$$E_{sc}(t) = E_{sat} \left( 1 - \exp \frac{t}{\tau_{sc}} \right) \quad (\text{A.57})$$

onde:

$$E_{sat} = \frac{m (E_A + iE_D)}{(1 + E_D/E_q - iE_A/E_q)} \quad (\text{A.58})$$

$$\tau_{sc} = \tau_M \frac{1 + K^2 L_D^2 - iKL_E}{1 + E_D/E_q - iE_A/E_q} \quad (\text{A.59})$$

# Referências

- [1] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, K. Nassan, “*Optically Induced Refractive Index Inhomogeneities in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$* ”, Appl. Phys. Lett. **9**, 72 (1966).
- [2] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, D. B. Fraser, “*Holographic Storage in Lithium Niobate*”, Appl. Phys. Lett. **13**, 223 (1968).
- [3] F. S. Chen, “*Optically Induced Change of Refractive Index in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$* ”, J. Appl. Phys. **40**, 3389 (1969).
- [4] J. J. Amodei, W. Phillips, D. L. Staebler, “*Improved Electrooptic Materials for Holographic Storage Applications*”, IEEE J. QE **7**, 321 (1971).
- [5] D. L. Staebler, J. J. Amodei, “*Coupled Wave Analysis of Holographic Storage in  $\text{LiNbO}_3$* ”, J. Appl. Phys. **43**, 1042 (1972).
- [6] H. Kogelnik, “*Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings*”, Bell Syst. Tech. J. **48**, 2909–2847 (1969).
- [7] D. L. Staebler, J. J. Amodei, “*Thermally Fixed Holograms in  $\text{LiNbO}_3$* ”, Ferroelectrics **3**, 107 (1972).
- [8] S. L. Hou, R. B. Lauer, R. E. Aldrich, “*Transport Processes of Photoinduced Carriers in  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$* ”, J. Appl. Phys. **44**, 2652 (1973).
- [9] A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran, “*High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in  $\text{LiNbO}_3$* ”, Appl. Phys. Lett. **25**, 233 (1974).
- [10] J.-P. Huignard, J. P. Herriau, T. Valentin, “*Time average holographic interferometry with photoconductive electrooptic  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  crystals*”, Appl. Opt. **16**, 2796 (1977).

- [11] M. Peltier, F. Micheron, “*Volume Hologram Recording and Charge Transfer Process in  $Bi_{12}SiO_{20}$  and  $Bi_{12}GeO_{20}$* ”, J. Appl. Phys. **48**, 3683 (1977).
- [12] J.-P. Huignard, J. P. Herriau, P. Aubourg, E. Spitz, “*Phase Conjugate Wavefront Generation Via Real-Time Holography in  $Bi_{12}SiO_{20}$  crystals*”, Opt. Lett. **4**, 21 (1979).
- [13] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odoulov, M. S. Soskin, V. L. Vinetskii, “*Holographic Storage in Electrooptic Crystals. I - Steady State*”, Ferroelectrics **22**, 949 (1979).
- [14] P. Günter, “*Holography, Coherent Light Amplification and Optical Phase Conjugation with Photorefractive Materials*”, Physics Reports **93**, 199–299 (1982).
- [15] S. I. Stepanov, V. V. Kulikov, M. P. Petrov, “*“Running” Holograms in Photorefractive  $Bi_{12}SiO_{20}$  Crystals*”, Opt. Comm. **44**, 19 (1982).
- [16] S. I. Stepanov, M. P. Petrov, “*Nonstationary Holographic Recording for Efficient Amplification*”, Topics in Applied Physics – Ed. P. Günter and J.-P. Huignard **61**, 263 (1988).
- [17] J.-P. Huignard, J. P. Herriau, F. Micheron, “*Coherent Selective Erasure of Superimposed Volume Holograms in  $LiNbO_3$* ”, Appl. Phys. Lett. **26**, 256 (1975).
- [18] J. Feinberg, “*Real-Time Edge Enhancement Using the Photorefractive Effect*”, Opt. Lett. **5**, 330 (1980).
- [19] M. Cronim-Golomb, B. Ficher, J. Nilsen, J. O. White, A. Yariv, “*Laser with Dynamic Holographic Intracavity Distortion Correction Capability*”, Appl. Phys. Lett. **41**, 219 (1982).
- [20] E. Ochoa, J. W. Goodman, L. Hesslink, “*Real-Time Enhancement of Defects in a Periodic Mask Using Photorefractive  $Bi_{12}SiO_{20}$* ”, Opt. Lett. **10**, 430 (1985).
- [21] G. Pauliat, J. P. Herriau, A. Delboubé, G. Roosen, J.-P. Huignard, “*Dynamic Beam Deflection Using Photorefractive Gratings in  $Bi_{12}SiO_{20}$  Crystals*”, JOSA B **3**, 306 (1986).

- [22] A. K. Powell, T. J. Hall, "Coupling Modulation in BSO with Applied AC Fields", *Ferroelectrics* **92**, 307 (1989).
- [23] N. A. Vainos, J. A. Khoury, R. W. Eason, "Real-Time Parallel Optical Logic in Photorefractive Bismuth Silicon Oxide", *Opt. Lett.* **13**, 503 (1988).
- [24] N. A. Vainos, S. I. Chaphan, R. W. Eason, "Multiplexed Permanent and Real-Time Holographic Recording in Photorefractive BSO", *Appl. Opt.* **28**, 4381 (1989).
- [25] S. I. Stepanov, "Applications of Photorefractive Crystals", *Rep. Prog. Phys.* **57**, 39-116 (1994).
- [26] N.S.-K. Kwong, Y. Tomita, A. Yariv, "Optical Tracking Filter Using Transient Energy Coupling", *JOSA B* **5**, 1788 (1988).
- [27] F. Vachss, L. Hesslink, "Synthesis of a Holographic Image Velocity Filter Using the Nonlinear Photorefractive Effect", *Appl. Opt.* **27**, 2887 (1988).
- [28] J. Khoury, V. Ryan, C. Woods, M. Cronin-Golomb, "Photorefractive Optical Lock-in Detector", *Opt. Lett.* **16**, 1442 (1991).
- [29] F. H. Mok, "Angle-Multiplexed Storage of 5000 Holograms in Lithium Niobate", *Opt. Lett.* **18**, 915 (1993).
- [30] P. Günter, J.-P. Huignard, "Photorefractive Effects and Materials", *Topics in Applied Physics* - Ed . P. Günter and J.-P. Huignard **61**, 7-73 (1988).
- [31] P. M. Garcia, Registro Holográfico em Cristais Fotorrefrativos do Tipo  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  - Mestrado, IF"GW" - UNICAMP Dez. 1990.
- [32] W. Wardzynski, T.Łukasiewicz, J.Żmija, "Reversible Photochromic Effects in Doped Single Crystals of  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  and  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ", *Opt. Comm.* **30**, 203 (1979).
- [33] J.-P. Herriau, J.-P. Huignard, "Holographic Fixing Process at Room Temperature in Photorefractive  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ", *Appl. Phys. Lett.* **49**, 1140 (1986).
- [34] G. A. Brost, R. A. Motes, J. R. Rotgé, "Intensity-Dependent Absorption and Photorefractive Effects in Barium Titanate", *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 1879 (1988).

- [35] R. B. Bylisma, "Photochromic Gratings in Photorefractive Materials", *Opt. Lett.* **13**, 853 (1988).
- [36] S. Nowak, T. Kaczor, J. Żmija, "Photochromic Phenomenon Kinetics", *Phys. Stat. Sol.(a)* **113**, 199 (1989).
- [37] R. S. Cudney, R. M. Pierce, G. D. Bacher, J. Feinberg, "Absorption Gratings in Photorefractive Crystals with Multiple Levels", *JOSA B* **8**, 1326 (1991).
- [38] M. E. Lines, A. M. Glass, *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*, Clarendon Press (1977).
- [39] K. Nassau, H. J. Levinstein, "Ferroelectric Behavior of Lithium Niobate", *Appl. Phys. Lett.* **7**, 69 (1965).
- [40] E. Krätzig, R. Sommerfeldt, "Influence of dopants on photorefractive properties of  $\text{LiNbO}_3$  crystals", *SPIE, Volume 1273, Nonlinear Optical Materials III* **2** (1990).
- [41] *Topics in Applied Physics: Photorefractive Materials and Their Applications I and II*, volume 61 and 62, Springer-Verlag (Berlin, Heidelberg) Ed. by P. Günter and J.-P. Huignard (1988).
- [42] L. Arizmendi, "Simple Holographic Method for Determination of Li/Nb Ratio and Homogeneity of  $\text{LiNbO}_3$  Crystals", *J. Appl. Phys.* **64**, 4654 (1988).
- [43] A. Yariv, *Optical Electronics*, HRW International Edition (1985).
- [44] P. V. Lenzo, E. G. Spencer, K. Nassau, "Electro-Optic Coefficients in Single-Domain Ferroelectric Lithium Niobate", *JOSA* **56**, 633 (1966).
- [45] J. F. Nye, *Physical Properties of Crystals*, Oxford University Press (1979).
- [46] M. G. Moharam, T. K. Gaylord, R. Magnusson, "Holographic Grating Formation in Photorefractive Crystals with Arbitrary Electron Transport Lengths", *J. Appl. Phys.* **50**, 5642 (1979).
- [47] J. M. Spinhirne, D. Ang, C. S. Joiner, T. L. Estle, "Simultaneous Holographic and Photocurrent Studies of Photorefractive Effect in  $\text{LiTaO}_3$  and  $\text{LiNbO}_3$ ", *Appl Phys. Lett.* **30**, 89 (1977).

- [48] K. Sutter, P. Günter, "Photorefractive Gratings in the Organic Crystal 2-Cyclo-octylamino-5-nitropyridine Doped with 7,7,8,8-Tetracyanoquinadimethane", *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2274 (1990).
- [49] G. C. Valley, "Simultaneous Electron/Hole Transport in Photorefractive Materials", *J. Appl. Phys.* **59**, 3363 (1986).
- [50] M. C. Bashaw, T.-P. Ma, R. C. Barker, S. Mroczkowski, "Introduction, Revelation, and Evolution of Complementary Gratings in Photorefractive  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ", *Phys. Rev. B* **42**, 5641 (1990).
- [51] J. Frejlich, L. Cescato, G. F. Mendes, "Analysis of an Active Stabilization System for a Holographic Setup", *Appl. Opt.* **27**, 1967 (1988).
- [52] P. M. Garcia, L. Cescato, J. Frejlich, "Phase-Shift Measurement in Photorefractive Holographic Recording", *J. Appl. Phys.* **66**, 47 (1989).
- [53] J. Frejlich, P. M. Garcia, L. Cescato, "Adaptive Fringe-Locked Running Hologram in Photorefractive Crystals", *Opt. Lett.* **14**, 1210 (1989).
- [54] J. Frejlich, "Fringe-Locked Running Hologram and Multiple Photoactive Species in  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ ", *J. Appl. Phys.* **68**, 3104 (1990).
- [55] R. M. Pierce, R. S. Cudney, G. D. Baker, J. Feinberg, "Measuring Photorefractive Trap Density Without the Electro-Optic Effect", *Opt. Lett.* **15**, 414 (1990).
- [56] J. Frejlich, "Real-Time Photorefractive Hologram Phase-Shift Measurement and Self-Diffraction Effects", *Opt. Comm.* **107**, 260 (1994).
- [57] M. P. Petrov, S. V. Miridinov, S. I. Stepanov, V. V. Kulikov, "Light Diffraction and Non-linear Image Processing in Electrooptic  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  Crystals", *Opt. Comm.* **31**, 301 (1979).
- [58] S. Mallick, D. Rouède, "Influence of Polarization Direction on Two-Wave Coupling in Photorefractive  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ : Diffusion Regime", *Appl. Phys. B* **43**, 239 (1987).
- [59] F. P. Strohkendl, R. W. Hellwarth, "Contribution of holes to the photorefractive effect in *n*-type  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ", *J. Appl. Phys.* **62**, 2450 (1987).

- [60] J. Frejlich, P. M. Garcia, "Quasipermanent Hole-Photorefractive and Photochromic Effects in  $Bi_{12}TiO_{20}$  Crystals", *Appl. Phys. A* **55**, 49 (1992).
- [61] S. Zhivkova, N. Miteva, "Holographic Recording on Photorefractive Crystals With Simultaneous Electron-Hole Transport and Two Active Centers", *J. Appl. Phys.* **68**, 3099 (1990).
- [62] S. Zhivkova, N. Miteva, "Investigations of the Characteristics of Fixed Holograms in  $Bi_{12}TiO_{20}$  Photorefractive Crystals", *Opt. Comm.* **86**, 449 (1991).
- [63] A. A. Kamshilin, M. Petrov, "Continuous Reconstruction of Holographic Interferograms Through Anisotropic Diffraction in Photorefractive Crystals", *Opt. Comm.* **53**, 23 (1984).
- [64] P. A. dos Santos, P. M. Garcia, J. Frejlich, "Transport Length and Quantum Efficiency for Photoelectron Generation in  $Bi_{12}SiO_{20}$ ", *J. Appl. Phys.* **66**, 247 (1989).
- [65] J. Frejlich, P. M. Garcia, A. A. Freschi, "Deeply Modulated Stabilized Photorefractive Recording in  $LiNbO_3:Fe$ ", *Opt. Mat. - Accepted* **4**, 101 (1995).
- [66] T. J. Hall, R. Jaura, L. M. Connors, P. D. Foote, "The Photorefractive Effect - A Review", *Progress in Quantum Electronics* **10**, 77 (1985).
- [67] P. A. M. dos Santos, L. Cescato, J. Frejlich, "Interference Term Real-Time Measurement in Stabilized Two-Wave Mixing in Photorefractives", *Opt. Lett.* **13**, 1014 (1988).
- [68] J. Frejlich, A. A. Kamshilin, P. M. Garcia, "Selective Two-Wave Mixing in Photorefractive Crystals", *Opt. Lett.* **17**, 249 (1992).
- [69] R. Rupp, "Microphotometric Investigations of Thick Refractive Index Gratings in Photorefractive Crystals", *Appl. Phys. B* **41**, 153 (1986).
- [70] D. L. Staebler, W. Phillips, "Fe-Doped  $LiNbO_3$  for Read-Write Applications", *Appl. Opt.* **13**, 788 (1974).

- [71] R. Grousson, M. Henry, S. Mallick, S. L. Xu, “*Measurement of Bulk Photovoltaic and Photorefractive Characteristics of Iron Doped LiNbO<sub>3</sub>*”, J. Appl. Phys. **54**, 3012 (1983).
- [72] J. Frejlich, P. M. Garcia, L. Cescato, “*Adaptive Fringe-Locked Running Hologram in Photorefractive Crystals: Errata*”, Opt. Lett. **15**, 1247 (1990).
- [73] R. Grousson, M. Henry, S. Mallick, “*Transport Properties of Photoelectrons in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>*”, J. Appl. Phys. **56**, 224 (1984).
- [74] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, “*Transient Energy Transfer During Hologram Formation in LiNbO<sub>3</sub> in External Electric Field*”, Opt. Comm. **23**, 338 (1977).
- [75] J.-P. Huignard, J. P. Herriau, F. Micheron, “*Optical Storage in LiNbO<sub>3</sub> with Selective Erasure Capability*”, Rev.Phys.Appliquée **10**, 417 (1975).
- [76] A. A. Freschi, J. Frejlich, “*Stabilized Photorefractive Modulation Recording Beyond 100% Diffraction Efficiency in LiNbO<sub>3</sub>:Fe Crystals*”, JOSA B **11** (1994).
- [77] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odoulov, “*Non-stationary Energy Exchange During Interactions Between Two Light Beams in Electrooptic Crystals*”, Sov. Phys. Tech. Phys. **25**, 1100 (1980).