

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
CURSO DE DOUTORADO EM FÍSICA

A COMISSÃO EXAMINADORA, ABAIXO CITADA, APROVA A DISSERTAÇÃO

**Caracterização de Cristais Fotorrefrativos e sua
aplicação à medida de vibrações.**

ELABORADA POR
Luis A. Mosquera Leiva.

COMO REQUISITO PARCIAL PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE
DOUTOR EM FÍSICA

COMISSÃO EXAMINADORA: Prof. Dr. Jaime Frejlich (IFGW - UNICAMP) - Orientador
Prof. Dra. Lucila Helena D. Cescato (IFGW - UNICAMP)
Prof. Dr. José Roberto de Franca Arruda (FEM - UNICAMP)
Prof. Dr. Mauro M. Garcia de Carvalho (IFGW - UNICAMP)
Prof. Dr. Paulo Magno de Paiva Garcia (AFA/Pirassununga)

Campinas, 07 de Novembro de 2003.

Substituir esta página pela ficha catalográfica!

Substituir esta página pela página de aprovação!

Agradecimentos

...

Agradeço

- *a toda a minha família, que me apoiou sempre.*
- *ao Prof. Dr. Jaime Frejlich, pela orientação nesse trabalho de tese.*
- *à Faculdade de Engenharia Civil e à Faculdade de Ciências da Universidad Nacional de Ingeniería de Lima - Perú.*
- *ao Prof. Dr. Aníbal Valera, do Laboratório de Óptica da Universidad Nacional de Ingeniería de Lima - Perú.*
- *ao meus colegas Ivan de Oliveira e Marcelo Caldeira*
- *aos professores Lunazzi, Lucila, Paulo Magno e Agnaldo; à Del, do Carmo, ao Alcides; aos colegas Cristiano, Elso, Noemi, Luis, Edson,...*
- *enfim, a todas as pessoas que colaboraram neste trabalho e que aqui não estão citados, meus agradecimentos mais sinceros.*

Somos especialmente gratos ao **CNPq** – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico e à **FAPESP** – Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo pelo apoio financeiro concedido, sem o qual este trabalho não seria possível. Agradecemos também ao Laboratório de Crescimento de Cristais do Instituto de Física da USP – São Carlos pelas amostras de BTO, ao Laboratório ICMCB, Bordeaux, France, ao Dr. J.C. Launay, pelas amostras de CdTe e a Lasso Tecnologia/USA, a Marvin B. Klein, pela amostra de GaAs que permitiram a realização de nossas pesquisas.

À Julia e Luis
Judith e César
Mariano e Anita

Conteúdo

1	Introdução	1
I	Cristais Fotorrefrativos: Teoria	3
2	Modelo de Transporte nas Bandas.	4
2.1	Modelo de um centro	5
2.2	Modelo de dois centros	8
3	Foto-Fem	12
3.1	Foto-Fem Interferométrica.	12
3.1.1	Foto-Fem em fotocondutores monopolares. Aproximação de estado quase-estacionário.	14
3.1.2	Tempo de vida longo dos portadores de carga	20
3.2	Foto-Fem Num Padrão de Speckle	23
3.2.1	O Padrão Speckle Estacionário	23
3.2.2	O Padrão Speckle Vibrante	25
II	Caracterização Dos Materiais	30
4	Métodos Ópticos não-holográficos.	31
4.1	Óxido de Bismuto e Titânio $Bi_{12}TiO_{20}$	31
4.2	Fotocromismo nos cristais de BTO.	34
4.3	Condutividade.	37
4.3.1	Condutividade no escuro.	38
4.3.2	Fotocondutividade.	40
5	Foto-Fem Interferométrica	44
5.1	Montagem Experimental	44
5.2	$ i^\Omega $ versus Amplitude de Modulação de Fase ($K\Delta$)	44
5.3	Resposta em Frequência da Corrente Holográfica $ i^\Omega $	49
5.4	Cálculo dos Parâmetros (σ_0/I_0) e (l_s) nos Cristais de BTO.	50
5.5	Discussão dos Resultados Experimentais	52

III	Medida De Vibrações Mecânicas	54
6	Foto-Fem e Speckle. Medida de Vibrações	55
6.1	Descrição do Experimento	55
6.1.1	Montagem Experimental	55
6.1.2	As Amostras	55
6.2	Resultados Experimentais	57
6.2.1	Caracterização do sinal	57
6.2.2	Resposta espectral de um alto-falante comercial de 8Ω , 10Watts.	67
6.3	Discussão dos resultados	69
IV	Conclusões e Perspectivas	70
V	Apêndices	72
A	Materiais Fotorrefrativos. Propriedades Ópticas e Eletro-ópticas.	73
B	Programas de ajuste de dados	74
VI	Referências Bibliográficas	80

RESUMO

Caracterização de Cristais Fotorrefrativos e sua aplicação à medida de vibrações.

Aluno: Luis A. Mosquera Leiva.

Professor Orientador: Prof. Dr. Jaime Frejlich

Neste trabalho mostramos o uso de técnicas ópticas não-holográficas e holográficas para a caracterização de materiais fotorrefrativos com ênfase no cristal $Bi_{12}TiO_{20}$ da família das sillenitas e estudamos o uso destes materiais para a medida de vibrações mecânicas.

Em termos de estudo de materiais, realizamos um trabalho inédito de caracterização de materiais que apresentam efeitos não-lineares na absorção e na fotocondutividade, utilizando técnicas ópticas holográficas e não-holográficas combinadas com medidas elétricas clássicas e com auxílio de um modelo teórico adequado.

Em termos de aplicações, desenvolvemos uma montagem experimental e um modelo teórico que permite efetivamente utilizar a técnica de Foto-Fem como instrumento prático e simples para a medida de vibrações transversais.

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
CURSO DE DOUTORADO EM FÍSICA
Tese de Doutorado
Campinas, 07 de Novembro de 2003.

ABSTRACT

In this work we report the use of non-holographic and holographic optical techniques for the characterization of photorefractive materials, with special attention to the sillenite family crystal $Bi_{12}TiO_{20}$, we also use these materials for the measurement of mechanical vibrations.

In the field of materials characterization we report original results concerning the use of optical thecniques associated with classical electric ones as applied to the materials exhibiting nonlinear absorption and fotoconductivity effects. These data were analyzed using an appropriate theoretical model.

In the field of applications we report an experimental setup and a theoretical model that will allow the actual use of photo-FEM technique as a practical and simple tool for the measurement of transverse mechanical vibrations.

Quadro de Símbolos

I_0	Irradiância Luminosa Incidente Total
I_R^0	Intensidade Luminosa Incidente do Feixe R
I_S^0	Intensidade Luminosa Incidente do Feixe S
2θ	Ângulo de Escrita Formado pelos Raios R e S
m	Visibilidade do Padrão de Interferência
Λ	Período da Rede
K	Módulo do Vetor da Rede
Δ	Amplitude de vibração
Ω	Frequência da Modulação de Fase
n	Índice de Refração (<i>bulk</i>)
r_{eff}	Coefficiente Eletro-óptico Efetivo
α	Coefficiente de Absorção
α_{li}	Coefficiente de Absorção Induzido pela Luz
σ_{ph}	Fotocondutividade
σ_d	Condutividade no Escuro
ϵ	Constante Dielétrica Estática
β	Taxa de Geração Térmica
s	Seção de Choque de Fotoionização
γ	Constante de Recombinação
μ	Mobilidade
L_D	Comprimento de Difusão
l_S	Comprimento de Debye
Φ	Eficiência Quântica de Geração de Portadores de Carga
E_{sc}	Campo Espacial de Cargas

$\vec{E}$	Campo Elétrico Total
E_0	Campo Externo Aplicado
ρ	Densidade de Cargas
N	Densidade de Elétrons Livres
N_D	Densidade de Centros Doadores
N_A	Densidade de Centros não Fotoativos
N_D^+	Densidade de Centros Doadores Ionizados
$\vec{J}$	Densidade de Corrente
$N_{\text{eff.}}$	Densidade Efetiva de Centros Fotoativos
τ_M	Tempo de Relaxamento de Maxwell
E_D	Campo de Difusão
$E_{\text{eff.}}$	Campo Efetivo
ϕ	Fase Holográfica
η	Eficiência de Difração
τ	Tempo de Vida dos Portadores Livres na Banda de Condução
D_s	Diâmetro do Speckle
ρ	Amplitude Normalizada de Vibração
M	Magnificação da Lente
q	Carga Eletrônica
J_l	Função de Bessel Ordinária de Ordem l
k_B	Constante de Boltzmann
T	Temperatura Absoluta
ε_0	Permeabilidade do Vácuo

Lista de Figuras

2.1	Modelo de um centro	6
2.2	Modelo de dois centros	9
3.1	Configuração básica do efeito Foto-Fem	14
3.2	A densidade de corrente holográfica $ j^\Omega $ no caso de pequenas amplitudes de vibração	18
3.3	Simulação da dependência da corrente holográfica com a frequência de modulação temporal. O efeito da absorção do cristal	20
3.4	Simulação da dependência da corrente holográfica com a amplitude de modulação espacial ($K\Delta$)	21
3.5	Simulação da dependência da corrente holográfica com a amplitude de modulação temporal, no caso de tempo de vida longo dos portadores de carga livres.	22
3.6	Speckle no estado estacionário	24
3.7	Campo estacionário versus o quociente N_{ph}^0/N_T	25
3.8	Campo estacionário versus a voltagem externa aplicada	26
3.9	Campo elétrico médio versus o quociente N_{ph}^0/N_T	28
3.10	Dependência da componente x do campo elétrico médio com a amplitude de vibração normalizada δ	29
3.11	Simulação da dependência da fotocorrente i^Ω com a amplitude de vibração normalizada δ	29
4.1	Estrutura cristalina do BTO	32
4.2	Espectros de Absorção Óptica e de Fotocondutividade no BTO	32
4.3	Representação esquemática das amostras de BTO	33
4.4	Arranjo experimental para a medida da Trasmistância	34
4.5	Fotocromismo no BTO. Ajuste dos dados experimentais	36
4.6	Arranjo experimental para a medida da condutividade no escuro e da fotocondutividade	37
4.7	Condutividade no escuro no cristal BTO-008	38
4.8	Resposta em frequência temporal da fotocorrente modulada	41
4.9	Fotocorrente modulada no BTO-010	42
5.1	Montagem experimental para a medição da corrente holográfica	45
5.2	Fotocorrente holográfica $ i^\Omega $ medida num cristal de BTO versus a amplitude de vibração (v_d)	46
5.3	Fotocorrente holográfica $ i^\Omega $ versus a amplitude de vibração (v_d) no BTO	47

5.4	Resposta em frequência do PZT	47
5.5	Fotocorrente holográfica $ i^\Omega $ versus a amplitude de modulação $K\Delta$ no BTO. . .	48
5.6	Fotocorrente $ i^\Omega $ versus $K\Delta$ no BTO.	48
5.7	Fotocorrente holográfica $ i^\Omega $ versus a frequência de modulação Ω nos cristais de BTO puros e dopados.	49
5.8	Fotocorrente holográfica $ i^\Omega $ versus a frequência de modulação Ω no BTO:Pb. .	49
5.9	Corrente no escuro e Fotocorrente no limite de baixas irradiâncias	52
6.1	Montagem Experimental	56
6.2	Dependência da fotocorrente i^Ω no BTO, com a distância objeto vibrante - lente	57
6.3	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função do diâmetro do speckle	58
6.4	A fotocorrente i^Ω nos cristais de BTO, CdTe, GaAs, em função da amplitude (Δ) de vibração	59
6.5	A fotocorrente i^Ω nos cristais de BTO e CdTe, em função da frequência (Ω) de vibração	60
6.6	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função da intensidade da luz para distintas frequências (Ω) de vibração	60
6.7	A fotocorrente i^Ω em função da Irradiância incidente (I_0) medidos nos cristais de: BTO, GaAs, CdTe.	61
6.8	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função da amplitude normalizada (δ) de vibração. Curvas a distintas irradiâncias.	62
6.9	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função da amplitude normalizada (δ) de vibração. curvas a distintas frequências.	62
6.10	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função da amplitude normalizada (δ) de vibração. Ajuste da curva teórica.	63
6.11	A fotocorrente i^Ω no BTO, em função da amplitude normalizada (δ) de vibração. Ajuste da curva teórica.	64
6.12	Os três primeiros harmônicos da fotocorrente versus a voltagem externa aplicada num cristal de GaAs a $\Omega = 9500\text{Hz}$	64
6.13	Os três primeiros harmônicos da fotocorrente versus a amplitude de vibração normalizada (δ) medidos no GaAs a $\Omega = 9500\text{Hz}$	65
6.14	Os três primeiros harmônicos da fotocorrente versus a voltagem externa aplicada num cristal de GaAs a $\Omega = 1490\text{Hz}$	65
6.15	Os três primeiros harmônicos da fotocorrente versus a amplitude de vibração normalizada (δ) medidos no GaAs a $\Omega = 1490\text{Hz}$	66
6.16	Resposta Espectral do Autofalante P1 (8 Ω , 10W). Medidas pela técnica de velocimetria Doppler.	67
6.17	Resposta Espectral do Autofalante P1 (8 Ω , 10W). Medida pela técnica de Foto-Fem usando o cristal de GaAs.	68
6.18	Resposta Espectral do Autofalante P1 (8 Ω , 10W). Medidas pela técnica de Foto-Fem usando o cristal de BTO.	68

Capítulo 1

Introdução

Os materiais fotorrefrativos são eletro-ópticos e fotocondutores. O número de publicações sobre a física e aplicações destes cristais tem alcançado centenas, em adição a alguns livros sobre este tópico [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]. Dentre as mais importantes possíveis aplicações do efeito fotorrefrativo podem-se mencionar: processamento de imagens, memória holográfica, conjugação de fase, holografia interferométrica dinâmica, reconhecimento do padrões, etc. Trabalhos publicados sobre a caracterização destes cristais fazem uso de técnicas holográficas e não-holográficas, determinando-se a partir destes dados, parâmetros internos dos cristais, $(\sigma_{ph}, \sigma_d, \alpha, \mu\tau, L_D, l_s, \Phi)$, no propósito de entender os processos microscópicos envolvidos no fenômeno fotorrefrativo e conhecer a performance destes cristais para as diversas aplicações.

Neste trabalho de tese, primeiro fazemos um resumo da teoria do modelo de bandas e do efeito Foto-Fem, logo mostramos o uso das distintas técnicas de medição (transmitância, condutância Dc, fotocorrente modulada, Foto-Fem) para a caracterização de cristais fotorrefrativos de BTO puros e dopados, produzidos no laboratório de crescimento de cristais do Instituto de Física de São Carlos/USP. Fazemos um estudo comparativo dos resultados achados com os resultados obtidos por técnicas holográficas desenvolvidas no laboratório de óptica da Unicamp, mostrando resultados conclusivos acerca da performance destes cristais para a gravação holográfica [10].

Uma das técnicas aplicadas no trabalho de caracterização dos cristais de BTO foi a de “Foto-Fem”. Ela detecta a distribuição de cargas espaciais fotoinduzidas, via a corrente elétrica fluindo através da amostra, em condições estacionárias ou não-estacionárias de iluminação. Sendo que, nestes experimentos, não é necessário a formação de um holograma (difração da luz não é usada aqui), pois efeitos similares podem ser observados em materiais fotocondutores que não apresentam efeito eletro-óptico. Esta técnica pode ser usada no estudo de materiais fotorrefrativos em forma paralela ao uso de técnicas holográficas e/ou como uma técnica alternativa no caso de amostras onde não é possível gravar um holograma (caso de cristais fotorrefrativos com alto grau de competição elétron-buraco, filmes finos fotorrefrativos, e materiais fotocondutores em geral que não apresentam efeito eletro-óptico). A técnica de Foto-Fem foi desenvolvida por Stepanov no final dos anos 80 [11], sendo nos anos subseqüentes aplicada na caracterização de cristais fotorrefrativos, materiais fotocondutores diversos, na medição de vibrações e deslocamentos, etc. [9]. Neste trabalho de tese, estudamos o efeito Foto-Fem e implementamos pela primeira vez esta técnica no laboratório de óptica da Unicamp. Resultados

do estudo teórico deste efeito nos levaram a complementar a teoria desenvolvida por Stepanov para o caso de fotocondutores monopolares iluminados por um padrão de luz oscilante de pequena amplitude, ao caso de grandes amplitudes de vibração. Obtivemos resultados experimentais (na caracterização dos cristais de BTO puros e dopados), que corroboraram as predições do modelo desenvolvido para este material [12].

Depois de caracterizar a técnica Foto-Fem, a usamos para medir vibrações transversais de uma superfície usando o speckle difundido por ela ao ser iluminada por luz laser. Estudo do sinal de fotocorrente gerada, ao focalizar o speckle difundido pela superfície sobre um cristal fotocondutor (BTO, CdTe, GaAs) foram feitos, mostrando-se a viabilidade de construir um dispositivo de medida de vibrações de amplo espectro de resposta em frequência (Hz-MHz) e grande sensibilidade (sub-micrométrica), com autocalibração. O modelo teórico desenvolvido por nós para este caso se restringe ao estado estacionário e reproduz bem os resultados experimentais neste regime.

São três as contribuições originais desta tese. A primeira delas, desenvolvida nos capítulos 2 e 4, mostra as potencialidades das técnicas ópticas não-holográficas, associadas ao modelamento teórico, para caracterizar materiais fotocrômicos. Dessa forma foi feito um estudo detalhado e comparativo dos cristais de $Bi_{12}TiO_{20}$ puros e dopados produzidos no Brasil. A segunda contribuição, mostrada nos capítulos 3 e 5, representa um avanço no modelamento matemático para o efeito Foto-Fem holográfico no caso de fotocondutores monopolares iluminados por um padrão de luz oscilante de grande amplitude. Isto permitiu-nos utilizar esta técnica para caracterizar materiais fotorrefrativos, pela primeira vez, de forma quantitativa e com precisão. Três artigos foram escritos sobre a caracterização dos materiais: [10, 12, 13]. A terceira contribuição deste trabalho está detalhada nos capítulos 3 e 6 e se refere ao efeito Foto-Fem em padrões de luz tipo “speckle”. Nestes capítulos realizamos um modelamento teórico detalhado e mostramos que a técnica Foto-Fem (Speckle) pode ser utilizada com grande vantagem em aplicações de detecção de vibrações mecânicas. Os resultados experimentais confirmaram o nosso modelo teórico e temos excelentes perspectivas de chegarmos a um instrumento operacional e prático para medida de vibrações transversais.

A apresentação deste trabalho está dividida em quatro partes. A primeira delas traz uma revisão teórica do modelo de transporte por bandas e do efeito Foto-Fem, reportando algumas das contribuições importantes recém mencionadas. Na segunda parte, descrevemos as técnicas experimentais utilizadas na caracterização dos cristais de BTO, mostrando resultados conclusivos e muito relevantes sobre a performance destes cristais na gravação holográfica. Na terceira parte mostramos o uso da técnica Foto-Fem (Speckle) na medida de vibrações; resultados do desenvolvimento teórico e experimental são discutidos. Na quarta parte estão as conclusões gerais e discutimos as perspectivas desta linha de pesquisa.

Parte I

Cristais Fotorrefrativos: Teoria

Capítulo 2

Modelo de Transporte nas Bandas.

Cristais fotocondutores e eletro-ópticos são chamados fotorrefrativos. Nesses materiais podemos gravar informação luminosa na forma de uma modulação de índice de refração, segundo o seguinte mecanismo: Um padrão de interferência incide no material excitando portadores de carga (elétrons e/ou buracos) de centros doadores das regiões iluminadas para a banda de condução ou valência. Na banda eles se difundem ou são arrastados por um campo elétrico externo até serem presos em centros aceitadores (presentes no volume do material) nas regiões escuras. Devido a isso forma-se uma modulação de cargas espaciais no volume do material e conseqüentemente cria-se um campo elétrico que modula o índice de refração do material via o efeito eletro-óptico. Como a excitação dos portadores de carga no volume do material depende da distribuição de luz no interior do cristal e o fenômeno envolve transporte de cargas, a absorção, a condutividade no escuro e a fotocondutividade são propriedades fundamentais destes materiais. A absorção afeta a distribuição de luz no interior do material, enquanto que a condutividade determina o transporte e o relaxamento dos portadores de carga [7].

A relação entre os parâmetros macroscópicos e microscópicos destes cristais assim como sua relação com o fenômeno fotorrefrativo, vêm sendo estudados desde o descobrimento deste efeito, em 1966, por Ashkin et al [1]. Neste capítulo, desenvolvemos o modelo de bandas de energia, considerando um e dois centros fotoativos, e usaremos as relações entre os parâmetros $(\alpha, \sigma_d, \sigma_{ph}, \tau_{sc})$ macroscópicos e microscópicos $(N_D, \mu, \tau, L_D, l_s)$, para caracterizar nossos cristais de BTO.

No modelo de transporte nas bandas para os cristais fotorrefrativos temos pelo menos oito parâmetros do material que controlam a formação da rede de índice de refração. Os parâmetros são os seguintes: a constante dielétrica (ϵ), o índice refração do material (n), o coeficiente eletro-óptico efetivo (r_{eff}), a seção transversal para fotoionização (s), a densidade de doadores (N_D), a densidade de aceitadores que compensam o número de doadores ionizados no escuro (N_A), a mobilidade (μ) e o coeficiente de recombinação (γ). Os parâmetros ϵ , n , r , são propriedades intrínsecas dos cristais fotorrefrativos, os parâmetros restantes dependem do conteúdo de impurezas e/ou defeitos no cristal e podem ser ajustados através da dopagem do cristal durante seu crescimento ou por tratamentos de oxidação-redução. Os parâmetros μ e τ aparecem quase sempre como o produto $\mu \tau$, e somente em casos muito particulares eles

são importantes separadamente.

No desenvolvimento de um modelo para a formação da densidade de cargas espaciais em um material fotorrefrativo, é necessário postular um sistema de centros na banda proibida, desde onde podemos excitar portadores de cargas para a banda de condução e/ou valência, onde eles se difundem até serem presos em centros aceitadores. Estes processos microscópicos de geração e recombinação determinam as propriedades macroscópicas dos cristais, como sua absorção, condutividade, e sua sensibilidade holográfica, pois elas dependem fortemente da concentração dos centros fotoativos e seus estados de valência.

Muitos centros foram identificados, mas a influência sobre o transporte de carga induzido pela luz e o envolvimento nos processos fotorrefrativos permanecem obscuros em muitos casos [7, 14, 15, 16]. Alguns materiais exibem um comportamento que pode ser entendido usando o chamado modelo de *um centro/um estado de valência/um portador de carga*, entretanto outros materiais podem requerer um modelo de dois centros, um modelo de *um centro/dois estados de valência*, etc. Nós observamos um forte efeito fotocrômico e não linearidade na condutividade dos cristais de BTO iluminados por luz laser de comprimentos de onda $\lambda = 532$ nm e $\lambda = 633$ nm, e neste trabalho de tese mostramos que o modelo de dois centros explica bem estes efeitos observados.

2.1 Modelo de um centro

O modelo de um centro foi originalmente proposto por Chen [17] e Peterson et al. no ano de 1969 [18] para o $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$, no início das pesquisas sobre o efeito fotorrefrativo. Equações com termos para a geração e recombinação de portadores livres foram desenvolvidas por Amodei em 1971 [19], mas foi em 1975 que Vinetskii e Kukhtarev mostraram soluções analíticas completas das equações de Amodei usando a aproximação quase-estacionária [20]. As previsões deste modelo mostraram-se em bom acordo com os resultados experimentais obtidos em $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ [21, 22] e desde então foi amplamente aceito e aplicado a outros materiais [6, 23, 24, 25, 26, 27].

A figura (2.1) mostra o modelo de um centro, num diagrama de bandas de energia. Portadores de carga são excitados desde centros doadores (N_D) situados na banda proibida, por luz de comprimento de onda (λ) adequado, em direção da banda de condução (elétrons) ou de valência (buracos). Uma vez geradas, as cargas fotoexcitadas movimentam-se por difusão ou pela ação do campo elétrico externo aplicado (E_0), recombinando-se em um instante posterior nos centros aceitadores N_D^+ . No modelo mais simple de *um só centro/um portador de carga*, as cargas e o campo elétrico de cargas espaciais originados, são determinados pelas equações de taxa de geração - recombinação, e as equações de continuidade e Poisson :

$$\frac{\partial N(x, t)}{\partial t} = G - R - \frac{1}{e} \nabla \cdot \vec{J} \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial N_D^+(x, t)}{\partial t} = G - R \quad (2.2)$$

$$G = (N_D - N_D^+(x, t)) \left(\frac{sI}{h\nu} + \beta \right) \quad (2.3)$$

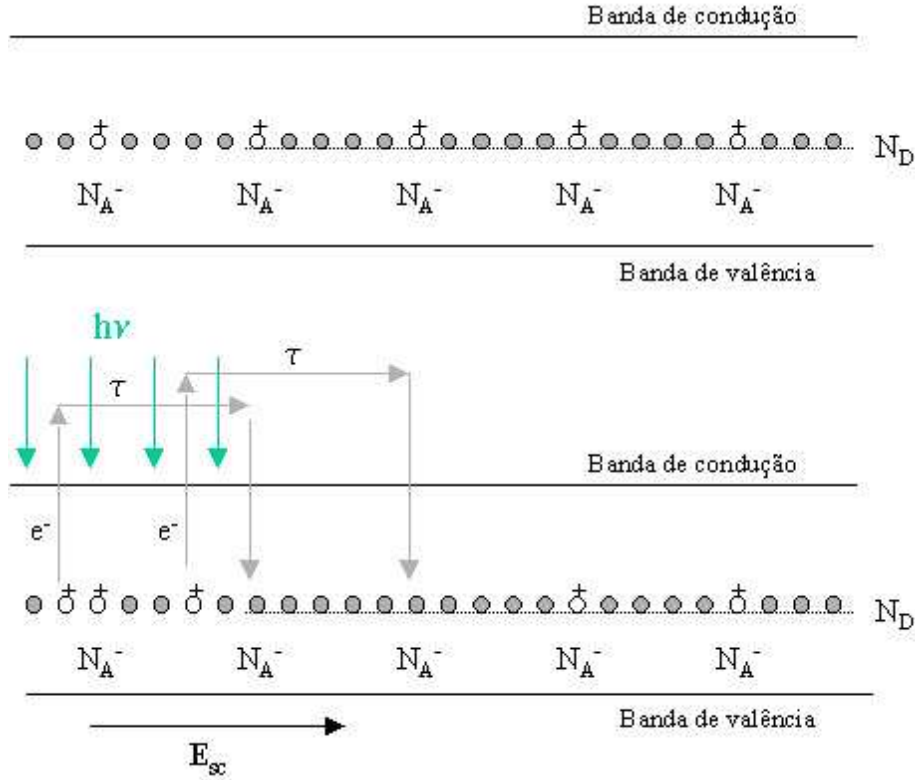


Figura 2.1: *Modelo de níveis de energia no qual um só conjunto de centros dá origem a elétrons na banda de condução. N_A são centros não-fotosensíveis que compensam os centros doadores ionizados N_D^+ no escuro.*

$$R = \gamma N_D^+(x, t) N(x, t) \quad (2.4)$$

$$\vec{J} = e\mu N(x, t) \vec{E}(x, t) + eD \nabla N(x, t) \quad (2.5)$$

$$\nabla \cdot (\epsilon_0 \epsilon E(\vec{x}, t)) = e(N_D^+(x, t) - N(x, t) - N_A^-) \quad (2.6)$$

onde e é o valor absoluto da carga do elétron, $N(x, t)$ é a densidade de elétrons livres na banda de condução, N_D é a densidade de doadores, $N_D^+(x, t)$ é a densidade de doadores ionizados, N_A^- é a densidade de centros não fotoativos que compensam os centros aceitadores inicialmente carregados N_D^+ , β é a taxa de geração térmica, (s) é a seção de choque de fotoionização, γ é a constante de recombinação, μ é a mobilidade, k_B é a constante de Boltzmann, (T) é a temperatura, ϵ_0 é a permeabilidade do vácuo, ϵ é a constante dielétrica estática e ∇ é o operador diferencial. As equações (2.1, 2.2), são equações de conservação da carga. As equações (2.3, 2.4) descrevem a geração e recombinação dos fotoelétrons respectivamente, a equação (2.5) descreve a corrente de carga em termos do arraste (o primeiro termo) e de difusão (o segundo termo) e a equação (2.6) mostra a relação entre a densidade de carga e o campo elétrico de cargas espaciais.

No caso de iluminação uniforme e na condição de estado estacionário, as derivadas espaciais e temporais são iguais a zero, logo : $G = R$ e $\nabla \cdot \vec{J} = 0$, implicando:

$$(N_D - N_D^+)(\frac{sI}{h\nu} + \beta) = \gamma N_D^+ N \quad (2.7)$$

desde que :

$$\tau = (\gamma N_D^+)^{-1} \quad (2.8)$$

Onde τ é o tempo de vida do fotoelétron ¹ Então, a concentração de elétrons livres N no estado estacionário, é obtida desde :

$$N = (N_D - N_D^+) \tau (\frac{sI}{h\nu} + \beta) \quad (2.9)$$

a geração de fotoelétrons expressa em termos da luz absorvida:

$$(N_D - N_D^+)s = \alpha \Phi \quad (2.10)$$

onde, Φ é a eficiência quântica para a geração de fotoelétrons, N fica expressa como:

$$N = \tau (\frac{\alpha \Phi I}{h\nu}) + (N_D - N_D^+) \beta \tau \quad (2.11)$$

Tem-se então duas contribuições que originam N : uma primeira contribuição devida a fotogeração (N_{ph}), e uma segunda devida a geração térmica (N_d) e dessa forma N pode-se escrever : $N = N_{ph} + N_d$, onde:

$$N_d = (N_D - N_D^+) \beta \tau \quad (2.12)$$

$$N_{ph} = (N_D - N_D^+) (\frac{sI}{h\nu}) \tau \quad (2.13)$$

A condutividade do material é avaliada a partir da expressão:

$$\sigma = q\mu N = q\mu(N_{ph} + N_d) = \sigma_{ph} + \sigma_d \quad (2.14)$$

obtendo-se para a fotocondutividade (σ_{ph}) e a condutividade no escuro (σ_d) as expressões:

$$\sigma_{ph} = q(N_D - N_D^+) (\frac{sI}{h\nu}) \mu \tau \quad (2.15)$$

$$\sigma_d = q(N_D - N_D^+) \beta \mu \tau \quad (2.16)$$

No caso de excitação térmica desprezível ($\beta \ll \frac{sI}{h\nu}$), o modelo de um centro prevê para a condutividade uma dependência linear com a intensidade da luz e ausência de mudanças observáveis na absorção α do material, devido a que α é determinado pelo produto $(N_D - N_D^+)s$ e as mudanças induzidas pela luz em $(N_D - N_D^+)$ são desprezíveis.

¹O parâmetro τ na equação (2.8) é uma constante. Nós assumimos que a irradiâncias I , não modifica significativamente os valores de $(N_D - N_D^+)$ e N_D^+ .

2.2 Modelo de dois centros

Em 1987 Motes e Kim [28] descobriram que ao iluminar um cristal de BaTiO₃ originava-se um incremento de sua absorção que desaparecia poucos segundos depois de apagar a luz. Em 1988 Brost et al.[29] explicaram este efeito usando o modelo de dois centros, desenvolvido por Valley em 1983 para explicar o apagamento de hologramas fotorrefrativos envolvendo duas constantes de tempo [30]. Este modelo foi confirmado por muitos experimentos e é capaz de explicar as dependências não lineares típicas da fotocondutividade com a intensidade da luz e as mudanças observadas na absorção destes cristais.

O modelo está essencialmente relacionado com a presença de centros rasos, N_{D2} (shallow traps) que influenciam a absorção e a condutividade elétrica nesses materiais. Na figura (2.2) mostramos o modelo de dois centros em um diagrama de bandas de energia² Aqui temos uma grande concentração de centros fotoativos profundos N_{D1} e uma pequena concentração de centros fotoativos rasos N_{D2} . A distribuição relativa entre os centros rasos cheios e vazios é fortemente afetada pela luz, mas a distribuição dos centros profundos não, pelo menos para as iluminações moderadas usadas nos experimentos com luz de onda não pulsada (cw).

No escuro, a concentração dos centros vazios N_{D2}^+ é muito maior que a concentração dos centros cheios ($N_{D2} - N_{D2}^+$) devido a excitação térmica, e o nível raso se encontra quase vazio. Quando iluminamos o material, elétrons são excitados desde os centros profundos N_{D1} para a banda de condução, onde migram e logo são capturados pelos centros N_{D1}^+ , N_{D2}^+ . Devido a pequena energia de ativação térmica, os elétrons capturados no nível raso são facilmente reexcitados e a concentração N_{D2}^+ permanece grande. Mais a medida que a intensidade da luz aumenta, N_{D2}^+ começa a decrescer e os centros rasos começam a ficar cheios, podendo-se alcançar saturação. Este processo origina uma diminuição ou aumento da absorção do material, dependendo de se a seção eficaz dos centros rasos (s_1) for menor (bleaching), ou maior (anti-bleaching) que a seção eficaz dos centros profundos (s_2).

As concentrações dos centros rasos e centros profundos, assim como dos elétrons livres N , na banda de condução, são dadas pelas equações :

$$\frac{\partial N_{D1}^+}{\partial t} = (N_{D1} - N_{D1}^+)(\frac{s_1 I}{h\nu} + \beta_1) - \gamma_1 N_{D1}^+ N \quad (2.17)$$

$$\frac{\partial N_{D2}^+}{\partial t} = (N_{D2} - N_{D2}^+)(\frac{s_2 I}{h\nu} + \beta_2) - \gamma_2 N_{D2}^+ N \quad (2.18)$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial N_{D1}^+}{\partial t} + \frac{\partial N_{D2}^+}{\partial t} \quad (2.19)$$

Na condição de equilíbrio quase-estacionário, isto é $dN/dt = 0$, e expressando N em função das concentrações dos centros rasos e profundos, cheios e vazios:

$$N = \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)(\frac{s_1 I}{h\nu} + \beta_1) + (N_{D2} - N_{D2}^+)(\frac{s_2 I}{h\nu} + \beta_2)}{\frac{1}{\tau_1} + \gamma_2 N_{D2}^+} \quad (2.20)$$

²nós vamos assumir um só tipo de portadores de carga (elétrons) envolvidos no processo.

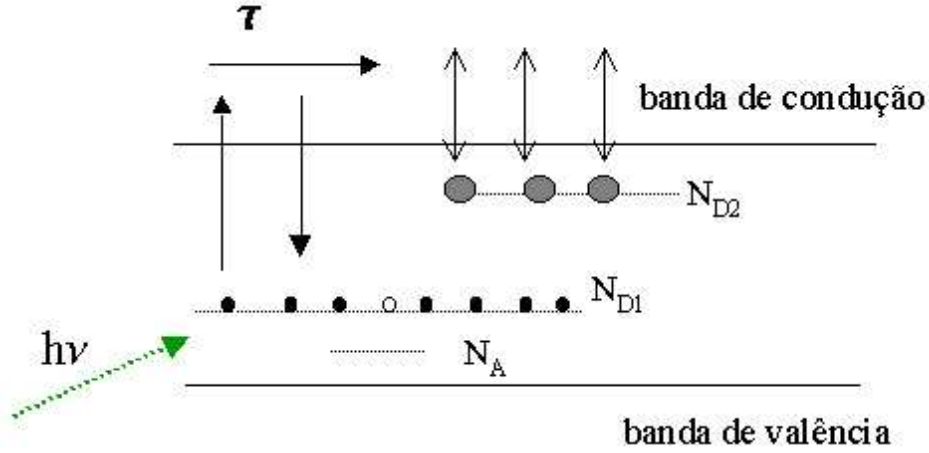


Figura 2.2: *Modelo de dois centros. Elétons são excitados pela luz desde os centros profundos N_{D1} , para a banda de condução. Alguns dos elétrons são recapturados pelos centros profundos N_{D1}^+ e outros pelos centros rasos N_{D2}^+ e relaxam mais lentamente para os centros profundos. As distintas seções eficazes de absorção dos centros rasos e profundos, origina o efeito fotocromico.*

Em forma análoga ao caso do modelo anterior de um só centro (equações: 2.12, 2.13), pode-se escrever N como, $N = N_{ph} + N_d$, onde:

$$N_d = (N_{D1} - N_{D1}^+)\beta_1\tau + (N_{D2} - N_{D2}^+)\beta_2\tau \quad (2.21)$$

$$N_{ph} = [(N_{D1} - N_{D1}^+)s_1 + (N_{D2} - N_{D2}^+)s_2]\frac{I}{h\nu}\tau \quad (2.22)$$

sendo:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_1} + \gamma_2 N_{D2}^+ \quad (2.23)$$

Neste caso se observa que tanto N_d como N_{ph} são afetados por um termo proporcional à quantidade de centros rasos cheios ($N_{D2} - N_{D2}^+$), que por sua vez depende da intensidade da luz incidindo sobre o cristal. Os casos limites de irradiâncias tendendo a zero e a valores muito altos, tais que a saturação dos centros rasos seja alcançada, são interessantes e fáceis de examinar:

Se:

$$I \rightarrow 0 \Rightarrow N_{D2}^+ \Rightarrow N_{D2} \quad (2.24)$$

então:

$$N \rightarrow \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)(\frac{s_1 I}{h\nu} + \beta_1)}{\frac{1}{\tau_1} + \gamma_2 N_{D2}} \quad (2.25)$$

E se:

$$I \rightarrow \infty \Rightarrow N_{D2}^+ \Rightarrow 0 \quad (2.26)$$

então:

$$N \rightarrow \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)(\frac{s_1 I}{h\nu} + \beta_1) + N_{D2}(\frac{s_2 I}{h\nu} + \beta_2)}{\frac{1}{\tau_1}} \quad (2.27)$$

A discussão anterior mostra que ambas, a condutividade no escuro (σ_d) e a fotocondutividade (σ_{ph}) exibem dois níveis:

um valor baixo para pequenas irradiâncias:

$$\sigma_d = q\mu \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)\beta_1}{\frac{1}{\tau_1} + \gamma_2 N_{D2}} \quad (2.28)$$

$$\sigma_{ph} = q\mu \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)s_1}{\frac{1}{\tau_1} + \gamma_2 N_{D2}} \frac{I}{h\nu} \quad (2.29)$$

e um valor alto para grandes irradiâncias:

$$\sigma_d = q\mu \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)\beta_1 + N_{D2}\beta_2}{\frac{1}{\tau_1}} \quad (2.30)$$

$$\sigma_{ph} = q\mu \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+)s_1 + N_{D2}s_2}{\frac{1}{\tau_1}} \frac{I}{h\nu} \quad (2.31)$$

Também, a absorção, α , do cristal pode-se escrever como uma soma de duas contribuições, uma primeira, devida aos centros rasos, e uma segunda, devida aos centros profundos:

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_{li} \quad (2.32)$$

sendo:

$$\Phi\alpha_0 = (N_{D1} - N_{D1}^+)s_1 \quad (2.33)$$

$$\alpha_{li} = (N_{D2} - N_{D2}^+)s_2 \quad (2.34)$$

Onde Φ é a eficiência quântica e indica a fração de fótons absorvidos, envolvidos na geração de fotoelétrons. Substituindo a equação (2.20) na equação (2.18), e olhando para a condição de equilíbrio estacionário no N_{D2}^+ ($dN_{D2}^+/dt = 0$), é obtida a relação:

$$(N_{D2} - N_{D2}^+) = \frac{N_{D2}\gamma_2(N_{D1} - N_{D1}^+)(\frac{s_1 I}{h\nu} + \beta_1)}{\frac{\beta_2}{\tau_1} + \gamma_2(N_{D1} - N_{D1}^+)\beta_1 + [\gamma_2(N_{D1} - N_{D1}^+)\frac{s_1}{h\nu} + \frac{1}{\tau_1}s_2/(h\nu)]I} \quad (2.35)$$

a qual, substituída na equação (2.34) resulta em uma expressão para a absorção induzida pela luz (α_{li}):

$$\alpha_{li} = \frac{aI + d}{bI + c} \approx \frac{aI}{bI + c} \quad (2.36)$$

onde:

$$a = \tau_1\gamma_2 N_{D2}(N_{D1} - N_{D1}^+)s_2 \frac{s_1}{h\nu} \quad (2.37)$$

$$b = \tau_1\gamma_2(N_{D1} - N_{D1}^+)\frac{s_1}{h\nu} + \frac{s_2}{h\nu} \quad (2.38)$$

$$c = \beta_2 + \tau_1 \gamma_2 \beta_1 (N_{D1} - N_{D1}^+) \approx \beta_2 \quad (2.39)$$

$$d = \tau_1 \gamma_2 N_{D2} (N_{D1} - N_{D1}^+) s_2 \beta_1 \approx 0 \quad (2.40)$$

Note que as aproximações nas equações (2.36), (2.39) e (2.40) foram feitas considerando desprezível a excitação térmica desde os níveis profundos ($\beta_1 \approx 0$). Neste caso, os valores limites de α_{li} para $I \rightarrow 0$ e para $I \rightarrow \infty$, deduzidas da equação (2.36), são respectivamente:

$$\lim_{I \rightarrow 0} \alpha_{li} = 0 \quad (2.41)$$

e

$$\lim_{I \rightarrow \infty} \alpha_{li} = N_{D2} s_2 \frac{(N_{D1} - N_{D1}^+) \tau_1 \gamma_2 s_1}{(N_{D1} - N_{D1}^+) \tau_1 \gamma_2 s_1 + s_2} \approx N_{D2} s_2 \quad (2.42)$$

Capítulo 3

Foto-Fem

3.1 Foto-Fem Interferométrica.

Em 1975, Vinetskii e Kukhtarev [31] predisseram voltagens fotoinduzidas aparecendo como resultado de rápidos deslocamentos espaciais do padrão de interferência em regime de difusão (ou seja, sem campo elétrico externo aplicado ao cristal), em um experimento de gravação holográfica em cristais fotorrefrativos. Mas só em 1986, Stepanov et al. publicaram os primeiros experimentos sobre as correntes holográficas medidas em cristais de BSO [32]. Este efeito (hoje conhecido como o efeito “Foto-Fem” ou de “non-steady-state photoelectromotive force”) foi proposto originalmente com o propósito de sua aplicação à detecção de rápida modulação de fase óptica em frentes de onda complicadas (um importante exemplo desta aplicação foi feita para o sensor hidroacústico interferométrico de fibra óptica desenvolvido por T.J. Hall et al.[33]), posteriormente muitas aplicações interessantes dos fotodetetores baseados no efeito “Foto-Fem” foram desenvolvidos, como por exemplo mencionamos: a detecção de vibrações transversais e deslocamentos de superfícies difusoras [34, 35], “phase-locking” de lasers independentes [36], perfilometria laser [37], detecção de ondas ultra-sônicas induzidas por laser [38].

Um trabalho amplo acerca do efeito Foto-Fem, consistente na descrição da teoria desenvolvida até então, dos materiais fotorrefrativos e fotocondutores estudados fazendo uso da técnica, da revisão das aplicações conhecidas, foi publicado por Stepanov no ano 2001[9]. Nesta parte do trabalho de tese nós ampliamos o modelo teórico do efeito Foto-Fem para o caso de grandes amplitudes de vibração de padrões de interferência, em materiais fotocondutores monopolares, ausente na teoria desenvolvida por Stepanov, mostrando com nossos resultados experimentais a confiabilidade de nossos cálculos, e determinando além disto, parâmetros importantes do processo de transporte de carga nos cristais de BTO.

Em poucas palavras, o sinal foto-fem é gerado na seguinte forma: Um padrão de interferência $I(x)$ (fig 3.1a) produz uma distribuição de campo elétrico $\vec{E}_{sc}(x)$ desfasada um quarto

de período espacial ($\Lambda/4$) de $I(x)$ (fig 3.1b) na ausência de campo externo. Não existe corrente elétrica através da amostra curto-circuitada neste estado inicial. Se pode afirmar que a ausência de corrente é o resultado da excitação da fotocondutividade (localizado basicamente nos máximos do padrão de interferência) nas camadas interiores da amostra onde o campo elétrico de carga espacial $\vec{E}_{sc}(x)$ é igual a zero. Assumindo agora que o padrão de luz é deslocado rapidamente ($\Lambda/4$) desde sua posição original para a direita, fica claro pela fig (3.1b) que agora todos os máximos do padrão de interferência coincidem com os máximos positivos do campo de carga espacial (para fotocondutividade tipo n). Neste experimento imaginário, assumimos que justo após este rápido deslocamento do padrão de luz, $\vec{E}_{sc}(x)$ permanece inalterado (pois necessita um tempo τ_{sc} característico para alcançar sua nova posição). Como resultado desta nova diferença de fase relativa entre a luz e o campo de carga espacial, a fotocondutividade (que segue todos os rápidos deslocamentos do padrão de luz) é excitada nas partes da amostra, onde o campo é positivo, produzindo-se um pulso positivo de corrente através da amostra, estimado em $\Delta j \sim \sigma_0 E_D$. Deslocando o padrão de luz para a esquerda se obtém um resultado similar, porém produzindo-se agora um pulso negativo de corrente. Agora se introduzirmos deslocamentos periódicos do padrão de luz (i.e. oscilações) com frequência Ω , resulta uma corrente de saída A_c com a amplitude avaliada anteriormente e frequência Ω . Quando a frequência de vibração Ω é muito menor que τ_{sc}^{-1} , o campo de carga espacial pode seguir o movimento do padrão de luz, resultando que a fotocondutividade e o campo de cargas espaciais mantenham a defasagem de $\Lambda/4$, resultando em uma corrente (A_c) nula. Então a análise do sinal de corrente foto-fem em função da frequência, o período da rede e a intensidade da luz, podem nos permitir encontrar o tempo característico τ_{sc} da formação do campo de cargas espaciais e os parâmetros relacionados, como o comprimento de difusão dos portadores de carga, o comprimento de Debye, e a fotocondutividade específica dos materiais. Estes atributos em adição à possibilidade de detectar o sinal dos portadores de carga diretamente a partir do sinal da corrente foto-fem, mostram também que esta técnica é flexível e informativa para avaliar importantes características da fotocondutividade em diversos materiais.

A técnica Foto-Fem já foi utilizada para caracterizar alguns cristais inorgânicos fotorefrativos : $Bi_{12}SiO_{20}$ [32], $GaAs:Cr$ [11], $KNbO_3$ [39], $Bi_{12}TiO_{20}$ [40], $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ [41], $CdMnZnTe:V$ [42], assim como também polímeros orgânicos fotorrefrativos [43], mas de forma pouco quantitativa.

A influência da absorção da luz foi publicada em [44] para condições particulares e para frequências grandes ($\Omega\tau_{sc} \gg 1$) somente. Alguns experimentos usando padrões de interferência oscilantes foram publicados em [45, 43, 32], porém usando toscas aproximações no caso de amplitudes grandes de oscilação. Nesta parte da tese nós desenvolvemos uma cuidadosa formulação para (j^0), a densidade de corrente Dc, o primeiro (j^Ω) e segundo ($j^{2\Omega}$) termos harmônicos em Ω da densidade de fotocorrente holográfica para materiais com considerável absorção, incluindo o caso de grandes amplitudes Δ de vibração do padrão de interferência.

Um Δ grande amplifica sensivelmente a resposta foto-fem. O efeito da absorção sobre a fotocondutividade e o tempo de resposta holográfico τ_{sc} é tomado em conta para descrever nossos dados experimentais adequadamente no intervalo total de $\Omega\tau_{sc}$ estudado.

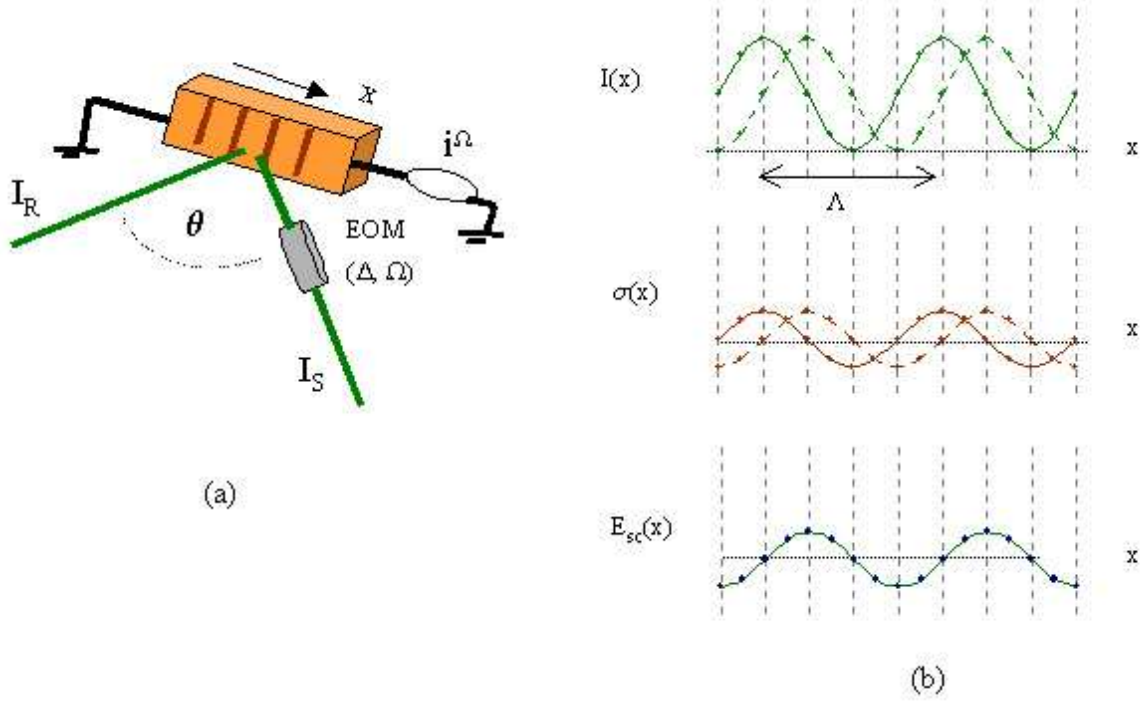


Figura 3.1: (a) Configuração básica para a observação do sinal foto-fem em uma amostra fotocondutora curto-circuitada iluminada por um padrão de interferência oscilante. EOM é o modulador de fase eletro-óptico controlado por um sinal senoidal de frequência Ω . (b) Padrão de interferência $I(x)$, fotocondutividade $\sigma(x)$, e o campo elétrico de cargas espaciais $E_{sc}(x)$ mostrando suas fases relativas sob condições de iluminação de estado estacionário (curvas contínuas). O rápido deslocamento espacial do padrão de interferência $I(x)$ um quarto de período espacial ($\Lambda/4$) à direita, resultando em uma diferença de fase nula entre a fotocondutividade $\sigma(x)$ e o campo de carga espacial $E_{sc}(x)$, é ilustrada pelas linhas pontilhadas.

3.1.1 Foto-Fem em fotocondutores monopolares. Aproximação de estado quase-estacionário.

Fazemos uso da teoria de bandas e do modelo de um só centro¹. As equações de Poisson, de continuidade, de densidade de corrente, e as equações de taxa de geração e de recombinação, ficam expressas neste modelo pelas equações (2.1-2.6).

Se o fotocondutor é iluminado com uma irradiância da forma:

$$I = I(x, t) = I_0 + \frac{I_0}{2}(m(t)e^{iKx} + cc) \quad (3.1)$$

e se $|m(t)| \ll 1$, podemos escrever:

$$N(x, t) = N_0 + \frac{N_0}{2}(a(t)e^{iKx} + cc) \quad (3.2)$$

¹assumimos que os elétrons são os únicos portadores de carga envolvidos no efeito.

$$N_D^+(x, t) = N_D^+ + \frac{N_D^+}{2}(A(t)e^{iKx} + cc) \quad (3.3)$$

$$N_D^+ = N_A^- + N_0 \cong N_A^- \quad (3.4)$$

$$E(x, t) = E_0 + \frac{1}{2}(E_{sc}(t)e^{iKx} + cc) \quad (3.5)$$

Considerando o tempo de vida dos elétrons muito menor que o tempo de relaxamento dielétrico do material e o tempo de modulação do padrão de luz: ($\tau \ll \tau_{sc}, 1/\Omega$), então:

$$\frac{\partial N(x, t)}{\partial t} = 0 \quad (3.6)$$

usando esta condição nas equações: (2.1-2.6) e (3.1-3.5), se deduzem as relações:

$$a(t)(1 + K^2 L_D^2 - iK L_E) = m(t) + iK \mu \tau (1 - \frac{l_s^2}{L_D^2}) E_{sc}(t) \quad (3.7)$$

$$A(t) = \frac{iK \epsilon \epsilon_0}{e N_D^+} E_{sc}(t) + \frac{N_0}{N_D^+} a(t) \approx \frac{iK \epsilon \epsilon_0}{e N_D^+} E_{sc}(t) \quad (3.8)$$

$$\frac{\partial E_{sc}(t)}{\partial t} + \frac{1}{\tau_{sc}} E_{sc}(t) = -\frac{E_{\text{eff}}}{\tau_{sc}} m(t) \quad (3.9)$$

com:

$$\tau_{sc} = \frac{(1 + K^2 L_D^2 - iK L_E)}{(1 + K^2 l_s^2 - iK l_E)} \tau_M \quad (3.10)$$

$$E_{\text{eff}} = \frac{E_0 + iE_D}{(1 + K^2 l_s^2 - iK l_E)} \quad (3.11)$$

onde:

$$\tau_M = \frac{\epsilon \epsilon_0}{\sigma_0} \quad (3.12)$$

$$E_D = \frac{KD}{\mu} = K \frac{K_B T}{q} \quad (3.13)$$

$$Eq = \frac{q N_{\text{Deff}}}{K \epsilon \epsilon_0} = \frac{E_D}{K^2 l_s^2}, \quad N_{\text{Deff}} = \frac{N_D^+(N_D - N_D^+)}{N_D} \quad (3.14)$$

$$LE = \mu \tau E_0, \quad L_D = \sqrt{D \tau}, \quad K l_E = \frac{E_0}{E_q} \quad (3.15)$$

Onde E_q é o campo de carga espacial de saturação; L_E , L_D , e l_s são os comprimentos de arraste, difusão, e de Debye, respectivamente, para os elétrons fotogerados; ϵ é a constante dielétrica, ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo, q é o valor absoluto da carga do elétron e $K = 2\pi/\Lambda$ é o vector da rede.

Padrão de interferência oscilatório

A visibilidade do padrão de interferência $m(t)$ pode-se escrever neste caso:

$$m(t) = m_0 e^{iK\Delta \sin \Omega t} \quad (3.16)$$

ou seja:

$$m(t) = m_0 \sum_{l=-\infty}^{l=\infty} J_l(K\Delta) e^{i(l\Omega t + \phi)} \quad (3.17)$$

e a equação (3.9) fica expressa:

$$\frac{\partial E_{sc}(t)}{\partial t} + \frac{1}{\tau_{sc}} E_{sc}(t) = -\frac{m_0 E_{\text{eff}}}{\tau_{sc}} \sum_{l=-\infty}^{l=\infty} J_l(K\Delta) e^{i(l\Omega t + \phi)} \quad (3.18)$$

sendo sua solução:

$$E_{sc}(t) = -m_0 E_{\text{eff}} \sum_{l=-\infty}^{l=\infty} \frac{J_l(K\Delta) e^{i(l\Omega t + \phi)}}{1 + il\Omega \tau_{sc}} \quad (3.19)$$

Substituindo esta solução na equação (3.7), obtém-se:

$$a(t) = \sum_{l=-\infty}^{l=\infty} \frac{m_0 J_l(K\Delta) (1 + il\Omega t_M)}{(1 + K^2 l_s^2 - iK l_E) (1 + il\Omega \tau_{sc})} e^{i(l\Omega t + \phi)} \quad (3.20)$$

Por outro lado, é possível mostrar² que a densidade total de corrente fluindo através dos eletrodos localizados nas faces laterais da amostra, pode-se escrever como:

$$j(t) = \frac{1}{L} \int_0^L e\mu \mathcal{N}(x, t) E_{sc}(x, t) dx \quad (3.21)$$

onde L é a distância entre os eletrodos. Quando $\mathcal{N}(x, t)$ e $E_{sc}(x, t)$ definidos pelas equações (3.2) e (3.5) são substituídos na equação (3.21), a expressão para a densidade de corrente fica:

$$j(t) = \sigma_0 E_0 + \frac{\sigma_0}{4} [a(t) E_{sc}^*(t) + a^*(t) E_{sc}(t)] \quad (3.22)$$

onde $\sigma_0 = e\mu N_0$. Usando-se agora as expressões de $E_{sc}(t)$ e $a(t)$ dadas pelas equações (3.19) e (3.20), a densidade de corrente fica expressa como:

$$j(t) = \sigma_0 E_0 + \frac{\sigma_0}{4} (j^0 + j^\Omega + j^{2\Omega} + \dots) \quad (3.23)$$

onde:

$$j^0 = \sigma_0 E_0 + \frac{\sigma_0}{4} [(a^0 \overline{E_{sc}^0} + a^\Omega \overline{E_{sc}^\Omega} + a^{-\Omega} \overline{E_{sc}^{-\Omega}} + a^{2\Omega} \overline{E_{sc}^{2\Omega}} + a^{-2\Omega} \overline{E_{sc}^{-2\Omega}} + \dots) + cc] \quad (3.24)$$

²Na integração da densidade de corrente j (dada na equação 2.5), na configuração de curto-circuito, a contribuição do termo de difusão para condições de fronteira cíclica se faz zero [45].

$$j^\Omega = \frac{\sigma_0}{4} [(a^0(\overline{E_{sc}^\Omega} + \overline{E_{sc}^{-\Omega}}) + a^\Omega(\overline{E_{sc}^0} + \overline{E_{sc}^{2\Omega}}) + a^{-\Omega}(\overline{E_{sc}^0} + \overline{E_{sc}^{-2\Omega}}) + a^{2\Omega}\overline{E_{sc}^\Omega} + a^{-2\Omega}\overline{E_{sc}^{-\Omega}} + \dots) + cc] \quad (3.25)$$

$$j^{2\Omega} = \frac{\sigma_0}{4} [(a^0(\overline{E_{sc}^{2\Omega}} + \overline{E_{sc}^{-2\Omega}}) + a^\Omega\overline{E_{sc}^{-\Omega}} + a^{-\Omega}\overline{E_{sc}^\Omega} + a^{2\Omega}\overline{E_{sc}^0} + a^{-2\Omega}\overline{E_{sc}^0} + \dots) + cc] \quad (3.26)$$

a partir das equações (3.24-3.26), e usando-se as expressões para $E_{sc}(t)$ e $a(t)$ dadas nas equações (3.19)e (3.20), acha-se para o caso $E_0 = 0$:

$$\begin{aligned} j^0 &= 0 \\ j^{2\Omega} &= 0 \\ j^\Omega &= \frac{\sigma_0}{2} (a^0\overline{E_{sc}^{-\Omega}} + \overline{a_0}E_{sc}^\Omega + a^\Omega\overline{E_{sc}^0} + \overline{a^\Omega}E_{sc}^0 + \overline{a^{-\Omega}}E_{sc}^{-2\Omega} + \overline{a^\Omega}E_{sc}^{2\Omega} \\ &\quad + a^{2\Omega}\overline{E_{sc}^\Omega} + a^{-2\Omega}\overline{E_{sc}^{-\Omega}} + \dots) \end{aligned} \quad (3.27)$$

Substituindo as expressões dadas nas equações (3.19)e (3.20) na expressão anterior, e (considerando a expansão até termos de segunda ordem ($\pm 2\Omega$) mostrados na equação (3.27)), o primeiro harmônico da densidade de corrente fica dado, em forma explícita:

$$j^\Omega = -\frac{\sigma_0 m_0^2 E_D J_1(K\Delta)\Omega\tau_M}{(1 + K^2 l_s^2)^2} Re[(\frac{J_0(K\Delta)}{(1 + i\Omega\tau_{sc})} + \frac{3J_2(K\Delta)}{(1 + 2i\Omega\tau_{sc})(1 - i\Omega\tau_{sc})})e^{i\Omega t}] \quad (3.28)$$

Esta equação (3.28) se reduz à Eq.(72) da Ref.[9] para a condição $K\Delta \ll 1$. Neste caso a análise de j^Ω fica trivial:

$$j^\Omega = -\frac{m_0^2 \Delta}{2} \frac{\sigma_0}{(1 + K^2 l_s^2)(1 + K^2 L_D^2)} E_D Re[(\frac{-\Omega/\Omega_0}{1 + i\Omega/\Omega_0} e^{i\Omega t})] \quad (3.29)$$

Para valores pequenos de Ω , o sinal cresce linearmente com Ω , e para frequências $\Omega \gg \Omega_0$ o sinal alcança saturação, sendo a frequência de corte característica $\Omega_0 = \tau_{sc}^{-1}$. A dependência com a frequência espacial, também obtida da equação (3.29), mostra que na aproximação de baixa frequência de modulação ($\Omega \leq \tau_{sc}^{-1}$), o sinal cresce linearmente com K , o qual reflete o crescimento geral do campo de difusão $E_D \propto K$.

Para altas frequências de modulação ($\Omega \geq \tau_{sc}^{-1}$) o sinal inicialmente cresce com K pela mesma razão, e para $K = L_D^{-1}$, o sinal alcança seu máximo absoluto (caso $K^2 l_s^2 \ll 1$), logo ele decai com $1/K$ devido à difusão dos portadores de carga. Estas análises são mostrados no gráfico (3.2).

Voltando à equação (3.28), o cálculo da parte real nos leva a expressar $j^\Omega(t)$ como:

$$\begin{aligned} j^\Omega &= -\frac{\sigma_0 m_0^2 E_D J_1(K\Delta)\Omega\tau_M}{(1 + K^2 l_s^2)^2 (1 + \Omega^2 \tau_{sc}^2) (1 + 4\Omega^2 \tau_{sc}^2)} \\ &\times \{ [(J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta))(1 + 2\Omega^2 \tau_{sc}^2) + 2J_0(K\Delta)\Omega^2 \tau_{sc}^2] \cos\Omega t \\ &+ \Omega\tau_{sc} [(J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta)) + 4J_0(K\Delta)\Omega^2 \tau_{sc}^2] \sin\Omega t \} \end{aligned} \quad (3.30)$$

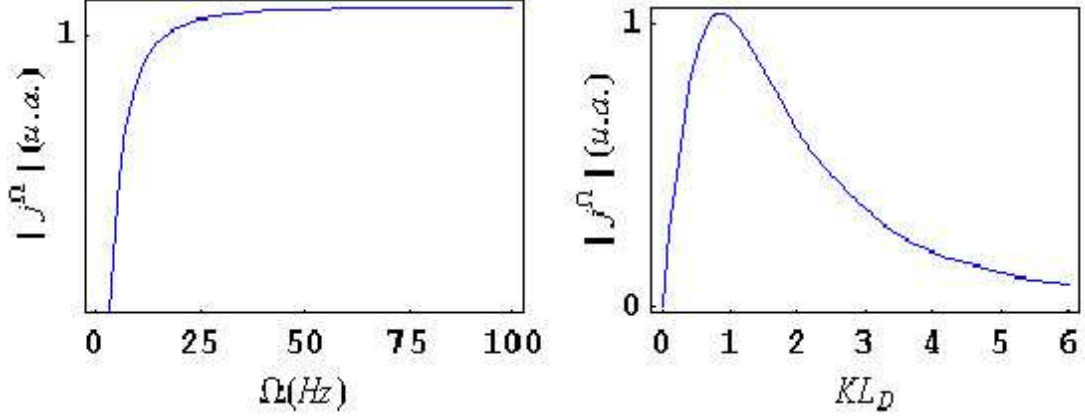


Figura 3.2: O módulo da densidade de corrente j^Ω dada pela equação (3.29), no caso de pequena amplitude de vibração ($K\Delta \ll 1$), é mostrada em função da frequência temporal Ω e em função da frequência espacial K . $\Omega_0 = 5$ Hz, $K = 10^7 \text{ m}^{-1}$, $L_D = 0.15 * 10^{-6}$ m e $l_s = 0.05 * 10^{-6}$ m correspondem ao gráfico em função da frequência. $\Omega\tau_{sc} = 1$, $L_D/l_s = 2.5$, correspondem ao gráfico em função de KL_D .

A expressão (3.30) para j^Ω depende somente de dois grupos de parâmetros do material, um dos quais é τ_{sc} , já definido na equação (3.10) e o outro é:

$$\mathcal{A} \equiv \frac{\sigma_0 \tau_{sc}}{(1 + K^2 L_D^2)(1 + K^2 l_s^2)} = \frac{\epsilon \epsilon_o}{(1 + K^2 l_s^2)^2} \quad (3.31)$$

a partir de $\mathcal{A}$ é possível calcular l_s (assumindo que ϵ é conhecido). De $\mathcal{A}/\tau_{sc}^2$ por sua vez, é possível computar $\sigma_0/(1 + K^2 L_D^2)$ o que nos permite achar σ_0 sempre que L_D seja conhecido. A amplitude $|j^\Omega|$ calculada a partir da equação (3.30) é:

$$\begin{aligned} |j^\Omega| &= \frac{\sigma_0 m_0^2 E_D J_1(K\Delta) \Omega \tau_M}{(1 + K^2 l_s^2)^2 (1 + \Omega^2 \tau_{sc}^2) (1 + 4\Omega^2 \tau_{sc}^2)} \\ &\times \left\{ [(J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta))(1 + 2\Omega^2 \tau_{sc}^2) + 2J_0(K\Delta) \Omega^2 \tau_{sc}^2]^2 \right. \\ &\left. + \Omega^2 \tau_{sc}^2 [(J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta)) + 4J_0(K\Delta) \Omega^2 \tau_{sc}^2]^2 \right\}^{1/2} \end{aligned} \quad (3.32)$$

o módulo do primeiro harmônico temporal da fotocorrente $|j^\Omega|$ (medida pelo amplificador Lock-in), é particularmente interessante em duas condições limites: $\Omega\tau_{sc} \gg 1$ e $\Omega\tau_{sc} \ll 1$, sempre para $\Omega\tau \ll 1$. No primeiro caso a expressão se simplifica a:

$$\begin{aligned} |j_\infty^\Omega| &\simeq \frac{\sigma_0 |m|^2 E_D}{(1 + K^2 L_D^2)(1 + K^2 l_s^2)} J_1(K\Delta) J_0(K\Delta) \\ &\simeq \frac{\mathcal{A}}{\tau_{sc}} E_D J_1(K\Delta) J_0(K\Delta) \end{aligned} \quad (3.33)$$

que é independente de Ω . Na outra condição limite, $\Omega\tau_{sc} \ll 1$, a expressão (3.32) nos leva a:

$$\begin{aligned} |j_0^\Omega| &\simeq \Omega \epsilon \epsilon_o \frac{|m|^2 E_D}{(1 + K^2 l_s^2)^2} J_1(K\Delta) (J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta)) \\ &\simeq \Omega \mathcal{A} |m|^2 E_D J_1(K\Delta) (J_0(K\Delta) + 3J_2(K\Delta)) \end{aligned} \quad (3.34)$$

que é linearmente dependente de Ω .

As expressões nas equações (3.28), (3.32), (3.33), e (3.34) são diferentes das já reportadas na literatura [45, 32, 43] no caso de grandes amplitudes de modulação, onde a parte dependente de $K\Delta$ em $|j^\Omega|$ é freqüentemente aproximada pela expressão $J_0(K\Delta)J_1(K\Delta)$. Tal aproximação é adequada para o limite de alta freqüência $\Omega\tau_{sc} \gg 1$, como se deduz da equação (3.33), entretanto pode levar a considerável erro no caso $\Omega\tau_{sc} \ll 1$, representado pela equação (3.34). Nesta última condição a aproximação reportada anteriormente produz, para $K\Delta = 1$ radiano, um valor que é ~ 1.4 vezes menor que o calculado a partir da equação (3.34). Esta distinta relação com a freqüência temporal pode confundir a análise teórica da dependência em freqüência dos dados experimentais. Curiosamente, o uso de $K\Delta/2$ (usualmente aceita somente para a condição $K\Delta \ll 1$) em vez de $J_0(K\Delta)J_1(K\Delta)$ resulta em uma muito melhor aproximação, ainda para relativamente grandes amplitudes de modulação: para o mesmo $K\Delta = 1$ radiano, o resultado é somente $\sim 3\%$ menor que o valor exato, mas o erro se incrementa fortemente ao incrementar $K\Delta$.

Em muitos materiais fotorrefrativos, os efeitos produzidos pela absorção da luz não podem ser desprezados. A matéria foi analisada previamente em [44] para o caso $\Omega\tau_{sc} \gg 1$. Nós vamos analisar nosso sinal³ em uma ampla faixa de freqüência, pelo que consideraremos também o efeito da absorção sobre o tempo de resposta holográfico, além do óbvio efeito sobre a fotocondutividade. Devido à absorção do material, a irradiância decresce exponencialmente ao longo da espessura da amostra (que consideraremos orientada na direção do eixo z), então a variação da fotocondutividade e do tempo de resposta, de acordo as equações (2.31) e (3.10) ficaram expressas:

$$\sigma_0(z) = \sigma_0(0) e^{-\alpha z} \quad (3.35)$$

$$\tau_{sc}(z) = \tau_{sc}(0) e^{\alpha z} \quad (3.36)$$

onde $\sigma_0(0)$ e $\tau_{sc}(0)$ são os valores no plano de entrada ao interior da amostra e α é o coeficiente de absorção efetivo. A expressão de $|j^\Omega|$ dada na equação (3.32) é também dependente de z , pois contém os termos $\sigma_0(z)$ e $\tau_{sc}(z)$, assim a escreveremos como $|j^\Omega(z)|$ para deixar indicado explicitamente esta dependência.

O valor da fotocorrente medida experimentalmente está dada pela expressão:

$$|i^\Omega| = H \int_0^d |j^\Omega(z)| dz \quad (3.37)$$

onde H é a altura e d a espessura da amostra. O ajuste teórico⁴ da equação (3.37) para nossos dados experimentais leva-nos a obter os parâmetros $\mathcal{A}$ e τ_{sc} , definidos pelas equações (3.31) e (3.10). l_s é determinado para o limite $\Omega\tau_{sc} \leq 1$, na equação (3.34), enquanto que σ_0 é determinado para o limite $\Omega\tau_{sc} \geq 1$, na equação (3.33).⁵

Simulações da fotocorrente obtida pela equação (3.37), usando valores dos parâmetros conhecidos por outras técnicas para o BTO puro, são mostrados nas figuras (3.3) e (3.4).

³Nós vamos a considerar que o campo de cargas espaciais acha-se orientado na direção $\vec{K}$

⁴O cálculo da integral na equação (3.37) e o programa de ajuste de dados são mostrados no apêndice B

⁵É interessante mencionar que a equação (3.34) independe da absorção, fato que deve certamente facilitar o processamento de dados, trabalhando nas adequadas condições experimentais.

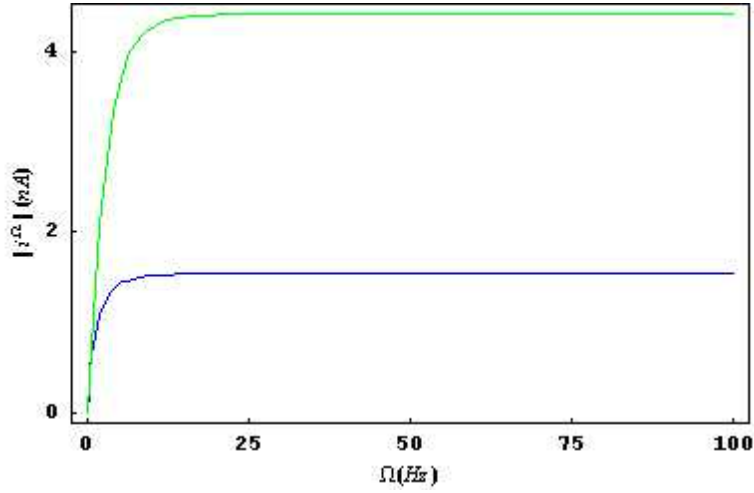


Figura 3.3: O módulo da fotocorrente $|i^\Omega|$ dada pela equação (3.37), considerando a absorção do material (curva azul) e sem considerar a absorção (curva verde), é mostrada em função da frequência temporal Ω . Os dados usados nesta simulação foram: $L_D = 0.15 \cdot 10^{-6} \text{ m}$, $l_s = 0.05 \cdot 10^{-6} \text{ m}$, $\sigma_{ph} = 1.27 \cdot 10^{-10} \text{ m}\Omega^{-1}\text{W}^{-1}$, $\alpha = 1292 \text{ m}^{-1}$ (para $\lambda = 532 \text{ nm}$), $I_0 = 396 \text{ Wm}^{-2}$, $m_0 = 0.6$ e $K\Delta = 1.1 \text{ rad}$. Para um suposto cristal de BTO de espessura $d = 2.05 \text{ mm}$ e altura $H = 7 \text{ mm}$.

3.1.2 Tempo de vida longo dos portadores de carga

Consideraremos agora como mudam os resultados previamente obtidos para os fotocondutores monopolares, no caso de alta frequência (Ω) de modulação e/ou alta intensidade da irradiância. Neste caso não podemos supor que $\Omega\tau \ll 1$ e por isso:

$$\frac{\partial N(x, t)}{\partial t} \neq 0 \quad (3.38)$$

e das equações (2.1-2.6) e (3.1-3.5), resulta:

$$\tau \dot{a}(t) = m(t) - (1 + K^2 L_D^2 - iKL_E)a(t) + iK\mu\tau(1 - \frac{l_s^2}{L_D^2})E_{sc}(t) \quad (3.39)$$

$$\begin{aligned} \frac{\tau}{(1 + K^2 L_D^2 - iKL_E)} \ddot{E}_{sc}(t) + [1 + \frac{\tau}{\tau_{sc}(1 + K^2 l_s^2 - iKL_E)}] \dot{E}_{sc}(t) + \frac{1}{\tau_{sc}} E_{sc}(t) \\ = -\frac{E_{eff}}{\tau_{sc}} m(t) \end{aligned} \quad (3.40)$$

as soluções das equações (3.39) e (3.40), no caso em que $m(t) = m_0 e^{iK\Delta \sin \Omega t}$, são:

$$E_{sc}(t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} \frac{-m_0 J_l(K\Delta)(E_0 + iE_D)e^{il\Omega t}}{1 + K^2 l_s^2 - iKl_E + il\Omega[\tau + \tau_M(1 + K^2 L_D^2 - iKL_E)] - l^2 \Omega^2 \tau \tau_M} \quad (3.41)$$

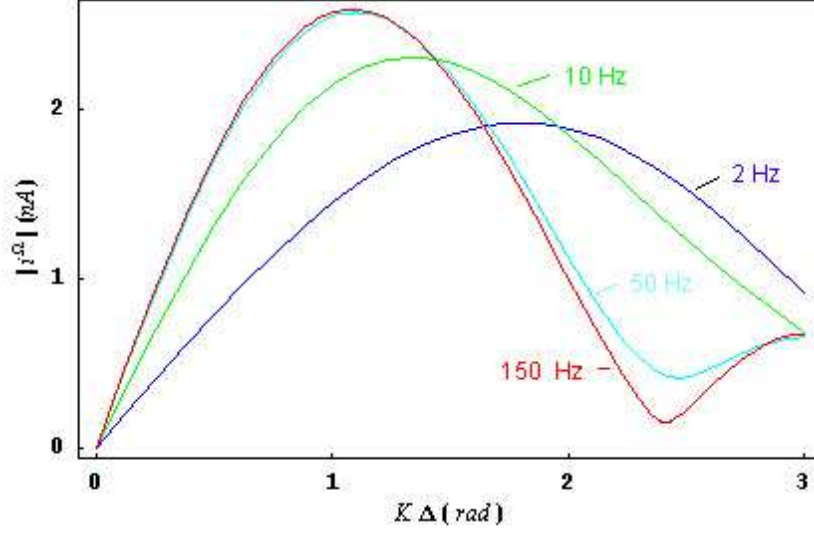


Figura 3.4: O módulo da fotocorrente $|i^\Omega|$ dada pela equação (3.37) é mostrado em função da amplitude de modulação ($K\Delta$), para diferentes frequências temporais. A posição do máximo depende da frequência no caso em que $\Omega\tau_{sc} \ll 1$, e no caso $\Omega\tau_{sc} \gg 1$ o máximo fica definido em $K\Delta = 1.1$ rad. A simulação foi feita para um cristal de BTO com as mesmas características usadas na simulação dada no gráfico 3.3, e para as mesmas condições de irradiância ($\tau_{sc} = 0.022$ s).

$$a(t) = \sum_{l=-\infty}^{\infty} \frac{-m_0 J_l(\Delta)(1 + i l \Omega \tau_M) e^{i l \Omega t}}{1 + K^2 l_s^2 - i K l E + i l \Omega [\tau + \tau_M (1 + K^2 L_D^2 - i K L_E)] - l^2 \Omega^2 \tau \tau_M} \quad (3.42)$$

a partir das equações (3.24-3.26), e usando-se as expressões para $E_{sc}(t)$ e $a(t)$ dadas nas equações (3.41) e (3.42), acha-se para o caso $E_0 = 0$:

$$\begin{aligned} j^0 &= 0 \\ j^{2\Omega} &= 0 \\ j^\Omega &= -\frac{\sigma_0 m_0^2 J_1(K\Delta) E_D \Omega \tau_M}{(1 + K^2 l_s^2)^2} \\ &\times \operatorname{Re} \left\{ \frac{J_0(K\Delta) e^{i\Omega t}}{[1 + i\Omega (\frac{\tau}{1+K^2 l_s^2} + \tau_{sc}) - \frac{\Omega^2 \tau \tau_M}{1+K^2 l_s^2}]} \right. \\ &+ \left. \frac{3 J_2(K\Delta) e^{i\Omega t}}{[1 + 2i\Omega (\frac{\tau}{1+K^2 l_s^2} + \tau_{sc}) - \frac{4\Omega^2 \tau \tau_M}{1+K^2 l_s^2}][1 - i\Omega (\frac{\tau}{1+K^2 l_s^2} + \tau_{sc}) - \frac{\Omega^2 \tau \tau_M}{1+K^2 l_s^2}]} \right\} \quad (3.43) \end{aligned}$$

A equação (3.43) se reduz a equação (3.28) no caso em que o tempo de vida dos portadores de carga livres é desprezível ($\tau \rightarrow 0$).

No caso de pequena amplitude de modulação ($K\Delta \ll 1$), o módulo do primeiro harmônico da densidade de corrente holográfica, deduzida a partir da equação (3.43), fica dado por:

$$|j^\Omega| = \frac{\sigma_0 m_0^2 E_D J_0(K\Delta) J_1(K\Delta)}{(1 + K^2 l_s^2)^2} \frac{\Omega \tau_M}{\sqrt{(1 - \frac{\Omega^2 \tau \tau_M}{1 + K^2 l_s^2})^2 + \Omega^2 (\frac{\tau}{1 + K^2 l_s^2} + \tau_{sc})^2}} \quad (3.44)$$

A figura (3.5) mostra o efeito do tempo de vida grande dos portadores de carga na resposta em frequência do primeiro harmônico da densidade de corrente holográfica para o caso de pequenas amplitudes de modulação. Neste caso se observa que o sinal decresce para frequências altas.

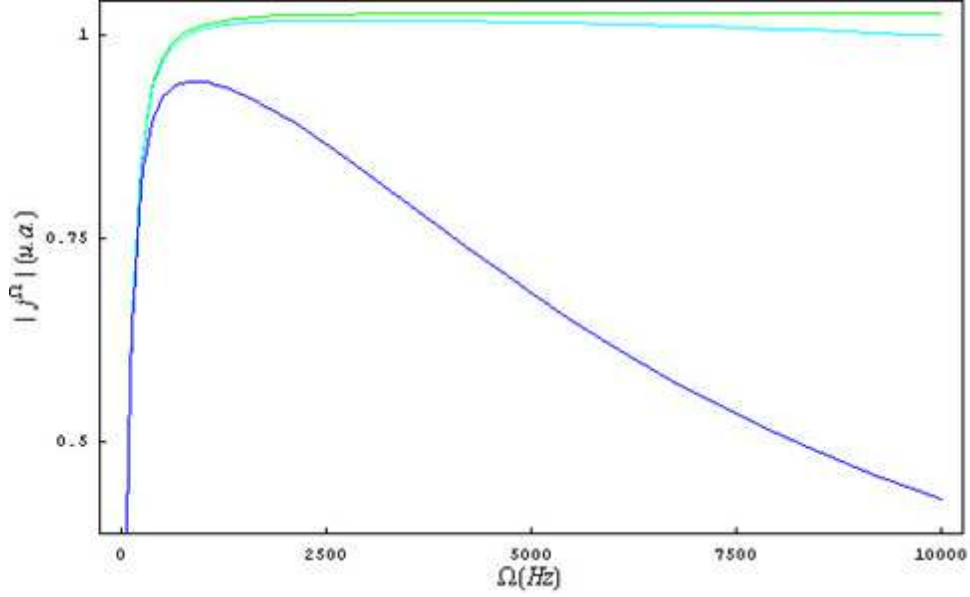


Figura 3.5: O módulo da densidade de fotocorrente $|j^\Omega|$ dada pela equação (3.44) é mostrado em função da frequência de modulação (Ω), para três diferentes tempos de vida dos portadores de carga livres ($\tau = 1 * 10^{-9} s$: curva verde, $\tau = 1 * 10^{-5} s$: curva celeste, e $\tau = 1 * 10^{-4} s$: curva azul). A posição do primeiro máximo depende do valor de τ_{sc} e o valor da frequência no início da caída do sinal depende do valor de τ . O valor de $\tau_{sc} = 0.001 s$ foi usado nas três curvas.

3.2 Foto-Fem Num Padrão de Speckle

Superfícies rugosas iluminadas por luz coerente geram um padrão speckle. Pode-se descrever o speckle como uma distribuição granular e aleatória da intensidade da luz. A análise do movimento de padrões speckle constitui um método óptico simples que permite medir deslocamentos, deformações, e vibrações de superfícies rugosas. A aplicação de cristais fotorrefrativos e o uso de padrões speckle gravados em tempo real já foram reportados [46, 47, 48, 49, 50, 51], mas não existe, até esta data, um trabalho publicado fazendo uso da técnica Foto-Fem usando um padrão speckle e onde se ache o desenvolvimento teórico do efeito para permitir autocalibrar as medições feitas e/ou caracterizar os cristais fotorrefrativos usados. Nesta seção da tese apresentamos um modelo teórico para o efeito Foto-Fem nos casos de um padrão de iluminação speckle gaussiano estacionário e vibrante. O estudo da dependência em função da amplitude de vibração do primeiro harmônico da fotocorrente, calculada no caso do padrão speckle vibrante, no regime de difusão, é feito, achando-se para o caso de não saturação de um cristal monopolar, (baixa irradiância), e na região de alta frequência ($\Omega\tau_{sc} \gg 1$), um máximo bem definido do sinal, o que permitiria autocalibrar um dispositivo de medida baseado neste fenômeno.

No capítulo 6 da terceira parte da tese, mostramos o uso desta técnica e o ajuste de nossos resultados experimentais com o modelo teórico aqui desenvolvido.

3.2.1 O Padrão Speckle Estacionário

No modelo de um centro e no caso estacionário ($\frac{\partial(N_D^+)}{\partial t} = \frac{\partial N}{\partial t} = 0$), das equações (2.1-2.6), se deduz:

$$\nabla \cdot \vec{j} = 0 \Rightarrow \vec{j} = \vec{j}_0 = cte \quad (3.45)$$

Das equações (3.45) e (2.5), resolvendo para o campo elétrico, temos:

$$\vec{E} = \frac{\vec{j}_0}{e\mu N} - \frac{D}{\mu} \nabla(N) \quad (3.46)$$

Por outro lado, como $\frac{\partial(N_D^+)}{\partial t} = 0$, as taxas de geração e recombinação são iguais ($G = R$), pelo que das equações (2.3 e 2.4), temos:

$$N = \frac{(N_D - N_D^+)}{\gamma N_D^+} \frac{sI}{h\nu} + \frac{(N_D - N_D^+)}{\gamma N_D^+} \beta = N_I + N_T \quad (3.47)$$

A equação (3.47) mostra explicitamente os dois termos que contribuem para a densidade de portadores de cargas livres na banda de condução (N): um primeiro termo devido a fotoionização (N_I) e um segundo termo devido a excitação térmica (N_T), e onde a dependência espacial do N está dada pela dependência espacial da irradiância (I).

Um padrão speckle originado por luz coerente espalhada por uma superfície rugosa usualmente tem uma estrutura espacial bem definida com visibilidade perto de 1, tendo-se separação das áreas iluminadas com as áreas não iluminadas. Em primeira aproximação, o padrão speckle pode considerar-se formado de um conjunto de distribuições gaussianas de luz cujos diâmetros estão distribuídos ao redor de um diâmetro médio de speckle. Então:

$$I = I_0 e^{-\frac{x^2+y^2}{D_s^2}} \quad (3.48)$$

onde D_s é o diâmetro médio do speckle. Assim pode-se escrever N em coordenadas normalizadas ($x = X/D_s$, $y = Y/D_s$) como:

$$N = N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2)} + N_T \quad (3.49)$$

substituindo a expressão de N dada pela eq.(3.49), na eq.(3.46), o campo elétrico fica dado por:

$$\vec{E} = \frac{\vec{j}_0}{e\mu N_{ph}^0 (e^{-(x^2+y^2)} + N_T/N_{ph}^0)} + \frac{2D}{\mu D_s} \frac{(x, y, 0)e^{-(x^2+y^2)}}{(e^{-(x^2+y^2)} + N_T/N_{ph}^0)} \quad (3.50)$$

A irradiância e a distribuição dos portadores livres N , na banda de condução têm simetria cilíndrica. O campo elétrico tem simetria cilíndrica no caso de que o campo elétrico externo aplicado (E_0) seja zero, pois neste caso j_0 é zero. A figura (3.6) mostra a densidade de portadores livres na banda de condução (N), eq.(3.49), o campo elétrico (E), eq.(3.50), e a densidade de carga total $\rho = (N_D^+ - N - N_A)$, ao longo do eixo normalizado x , sem campo externo aplicado. Neste gráfico é observado que o campo elétrico é zero na posição do máximo da densidade de portadores livres. As figuras (3.7 e 3.8) mostram o campo elétrico eq.(3.50) ao

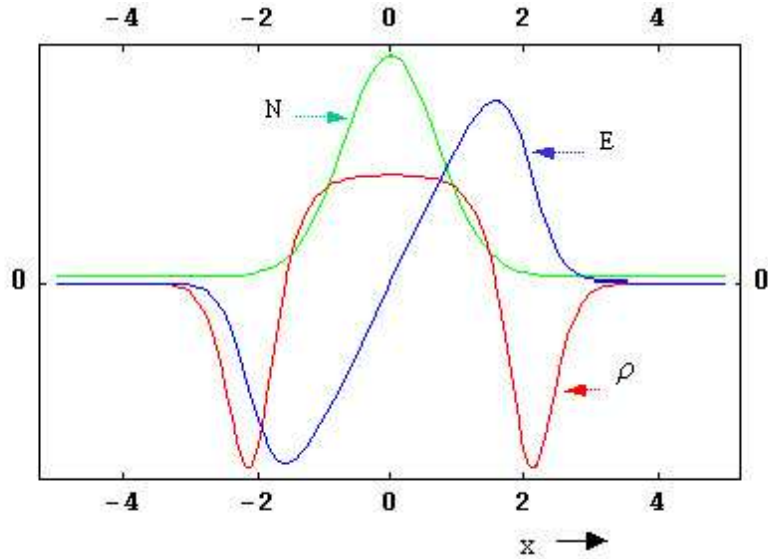


Figura 3.6: A densidade de portadores livres (N), a distribuição do campo elétrico (E) sem campo externo aplicado ($V_0 = 0$), e a distribuição da densidade de carga (ρ) em função da coordenada normalizada x . O valor $N_{ph}^0/N_T = 0.02$ foi usado neste gráfico.

longo do eixo normalizado x , em função do quociente N_{ph}^0/N_T e da voltagem externa aplicada V_0 respectivamente. O quociente N_{ph}^0/N_T determina a posição e amplitude do máximo do campo elétrico.

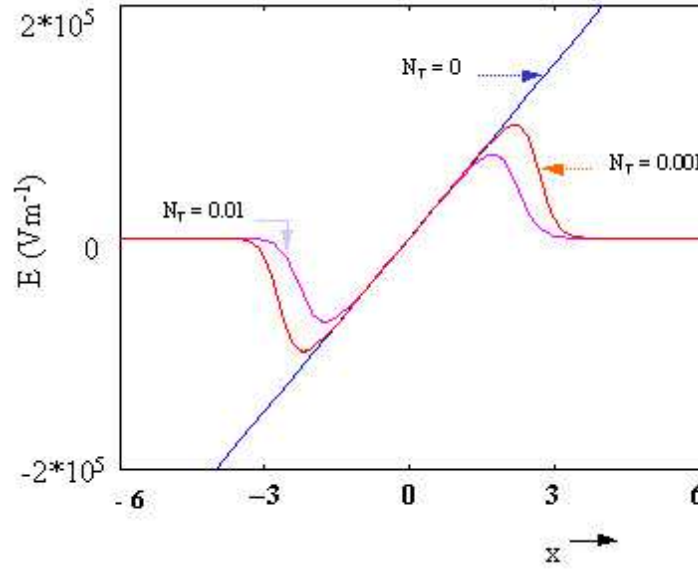


Figura 3.7: A componente x do campo elétrico (E) dado pela Eq.(3.50), para três valores distintos do quociente N_{ph}^0/N_T em função da coordenada normalizada x . $V_0 = 0$, $D_s = 1 \mu m$ foram usados.

A densidade total de corrente $\vec{j}$ da eq.(2.5) para uma configuração de curto-circuito, com uma voltagem V_0 aplicada aos eletrodos colados nos lados da amostra e separados por uma distancia L , pode-se escrever:

$$j = \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} e\mu N E dx \quad (3.51)$$

Substituindo a expressão para o campo dado pela eq.(3.46) e tendo em conta a simetria espacial da função N , a densidade de corrente j fica, no caso estacionário, $j = j_0$, onde:

$$\int_{-L/2}^{L/2} E dx = V_0 = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{j_0 dx}{e\mu N} \quad (3.52)$$

Observando-se a dependência linear da densidade de corrente com a voltagem externa aplicada.

3.2.2 O Padrão Speckle Vibrante

Considerando um deslocamento Δ do padrão speckle ao longo do eixo x , a intensidade da luz, I , dada pela equação (3.48) fica:

$$I = I_0 e^{-(y^2 + (x + \delta \sin \Omega t)^2)} \quad (3.53)$$

onde $\delta \equiv \frac{\Delta}{D_s}$.

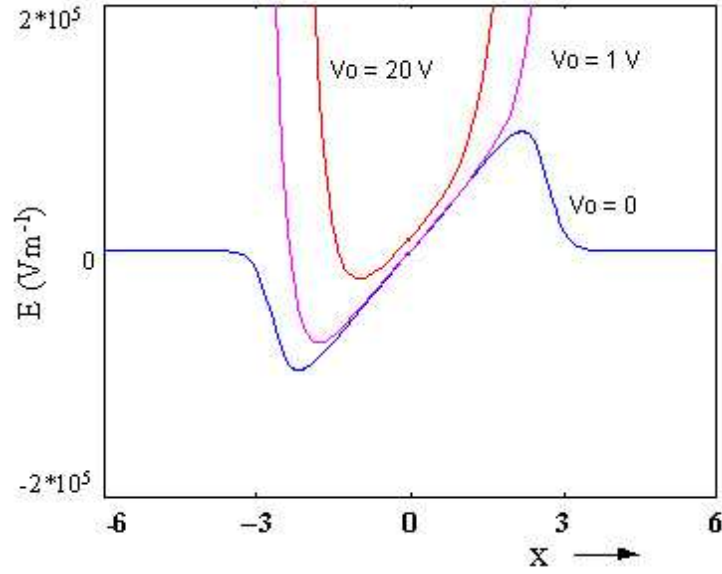


Figura 3.8: A componente x do campo elétrico (E) dado pela Eq.(3.50) para três valores distintos da voltagem externa aplicada (V_0), em função da coordenada normalizada x . O valor $N_{ph}^0/N_T = 0.001$ foi usado, para um diâmetro de speckle médio $D_s = 1 \mu m$ e para uma distância entre os eletrodos de $1mm$.

A equação (3.53) pode ser escrita como:

$$I = I_0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} \quad (3.54)$$

de modo que a densidade de portadores de carga livres N fica dada por:

$$N = N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} + N_T \quad (3.55)$$

Na aproximação de alta frequência ($\Omega \tau_{sc} \gg 1$) podemos considerar que N vibra na presença de um campo estacionário médio $\vec{E}$ que pode ser descrito por:

$$\vec{E} = \frac{\vec{j}_0}{e\mu \langle N \rangle} - \frac{D \langle \nabla(N) \rangle}{\mu \langle N \rangle} \quad (3.56)$$

Onde:

$$\langle N \rangle = N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1(x, \delta) + N_T \quad (3.57)$$

com:

$$f_1(x, \delta) = \frac{\Omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\Omega} e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} dt \quad (3.58)$$

$$\langle \nabla(N) \rangle = -\frac{2}{D_s} N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} (x f_1(x, \delta) + \delta f_2(x, \delta), y f_1(x, \delta), 0) \quad (3.59)$$

com:

$$f_2(x, \delta) = \frac{\Omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\Omega} \sin \Omega t e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} dt \quad (3.60)$$

Numa configuração de curto-circuito, a densidade de corrente, j , ao longo do eixo x , fica expressada como:

$$\begin{aligned} j &= \frac{e\mu}{L} \int_{-L/2}^{L/2} [N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} + N_T] \\ &\times \left[\frac{j_0}{e\mu N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} + \frac{2D}{\mu D_s} \frac{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} (x f_1 + \delta f_2)}{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} \right] dx \end{aligned} \quad (3.61)$$

como:

$$\begin{aligned} e^{-(2x\delta \sin \Omega t - \frac{\delta^2}{2} \cos 2\Omega t)} &= 1 \\ &+ \frac{\delta^4}{16} + x^2 \delta^2 - \frac{x^2 \delta^4}{4} + \dots \\ &+ \left[-2x\delta + \frac{x\delta^3}{2} - x^3 \delta^3 + \frac{x\delta^5}{8} + \dots \right] \sin \Omega t \\ &+ \left[\frac{\delta^2}{2} - x^2 \delta^2 + \frac{x^2 \delta^4}{2} + \frac{\delta^6}{64} + \dots \right] \cos 2\Omega t \end{aligned} \quad (3.62)$$

Então, as componentes da densidade de corrente j ao longo do eixo x , escrita em termos dos harmônicos da frequência de vibração (Ω) ficam expressadas na forma:

$$\begin{aligned} \frac{j^0}{e\mu N_{ph}^0} &= \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} \left[e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} \left(1 + \frac{\delta^4}{16} + x^2 \delta^2 - \frac{x^2 \delta^4}{4} \right) + \frac{N_T}{N_{ph}^0} \right] \\ &\times \left[\frac{j_0}{e\mu N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} + \frac{2D}{\mu D_s} \frac{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} (x f_1 + \delta f_2)}{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} \right] dx \end{aligned} \quad (3.63)$$

$$\begin{aligned} \frac{j^\Omega}{e\mu N_{ph}^0} &= \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} \left[e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} \left(-2x\delta + \frac{x\delta^3}{2} - x^3 \delta^3 + \frac{x\delta^5}{8} \right) \right] \\ &\times \left[\frac{j_0}{e\mu N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} + \frac{2D}{\mu D_s} \frac{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} (x f_1 + \delta f_2)}{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} \right] dx \end{aligned} \quad (3.64)$$

$$\begin{aligned} \frac{j^{2\Omega}}{e\mu N_{ph}^0} &= \frac{1}{L} \int_{-L/2}^{L/2} \left[e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} \left(\frac{\delta^2}{2} - x^2 \delta^2 + \frac{x^2 \delta^4}{2} + \frac{\delta^6}{64} \right) \right] \\ &\times \left[\frac{j_0}{e\mu N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} + \frac{2D}{\mu D_s} \frac{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} (x f_1 + \delta f_2)}{N_{ph}^0 e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + N_T} \right] dx \end{aligned} \quad (3.65)$$

A partir da equação (3.64), pode-se calcular o primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω). Em particular, no caso do regime de difusão ($V_0 = 0$), a fotocorrente (i^Ω) fica:

$$\begin{aligned} \frac{i^\Omega}{e\mu N_{ph}^0} &\propto E_D \int_{-H/2}^{H/2} \int_{-L/2}^{L/2} e^{-2(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} \left(-2x\delta + \frac{x\delta^3}{2} - x^3\delta^3 + \frac{x\delta^5}{8}\right) \\ &\times \frac{(xf_1 + \delta f_2)}{e^{-(x^2+y^2+\frac{\delta^2}{2})} f_1 + \frac{N_T}{N_{ph}^0}} dy dx \end{aligned} \quad (3.66)$$

A componente x do campo elétrico médio é mostrada nas figuras (3.9 e 3.10), em função do quociente ($\frac{N_T}{N_{ph}^0}$), e da amplitude de vibração δ .

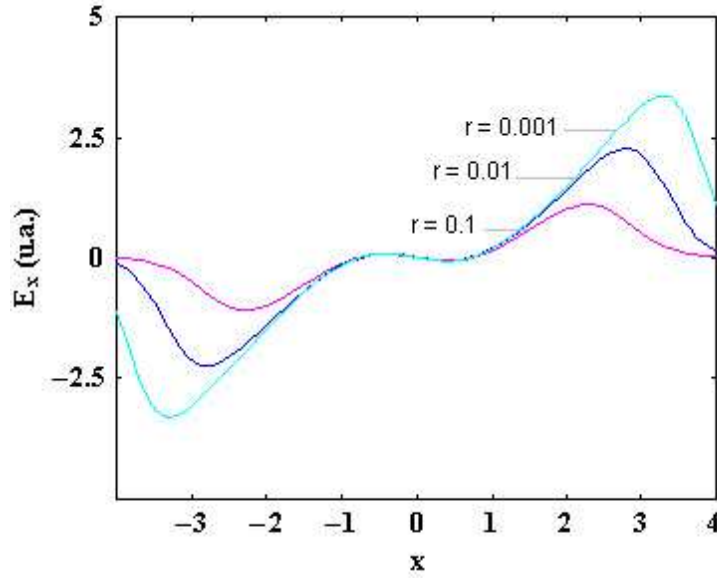


Figura 3.9: O campo elétrico médio (E_x), para três valores distintos do quociente $r = \frac{N_T}{N_{ph}^0}$, e para $\delta = 1.5$ é mostrado em função da coordenada normalizada x . r , δ determinam a posição e amplitude do máximo do campo elétrico.

Simulações da fotocorrente obtida pela equação (3.66), em função da amplitude de vibração δ , para distintos valores do quociente ($\frac{N_T}{N_{ph}^0}$), são mostrados na figura (3.11). Um máximo bem definido da fotocorrente i^Ω pode ser observado aqui para o valor de $\delta = 0.76$, de modo que o conhecimento do tamanho médio do grão speckle (D_s) pode-nos levar ao cálculo da amplitude de vibração (Δ) do padrão speckle: $\Delta = \delta D_s$, possibilitando a autocalibração nesta técnica.

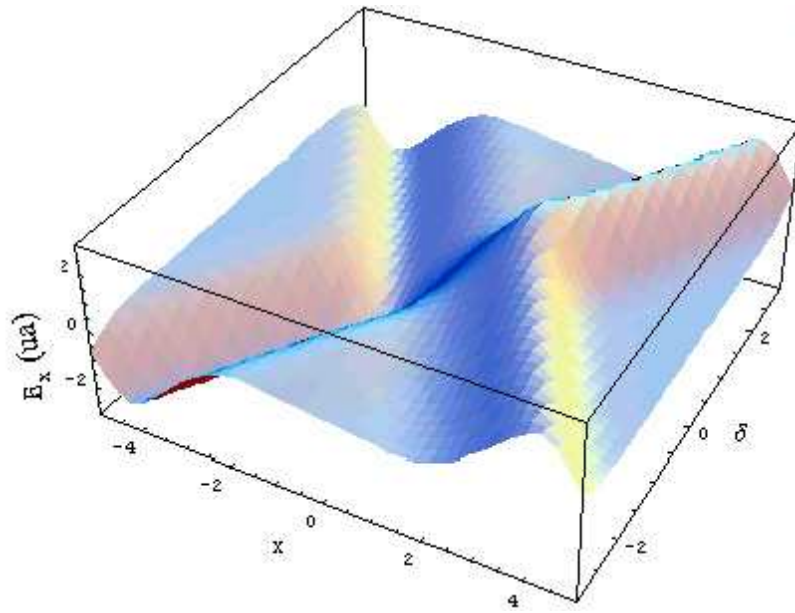


Figura 3.10: O campo elétrico médio(E_x), em função da coordenada normalizada x e em função da amplitude de vibração δ . O valor $\frac{N_T}{N_{ph}^0} = 0.01$ foi usado nesta simulação.

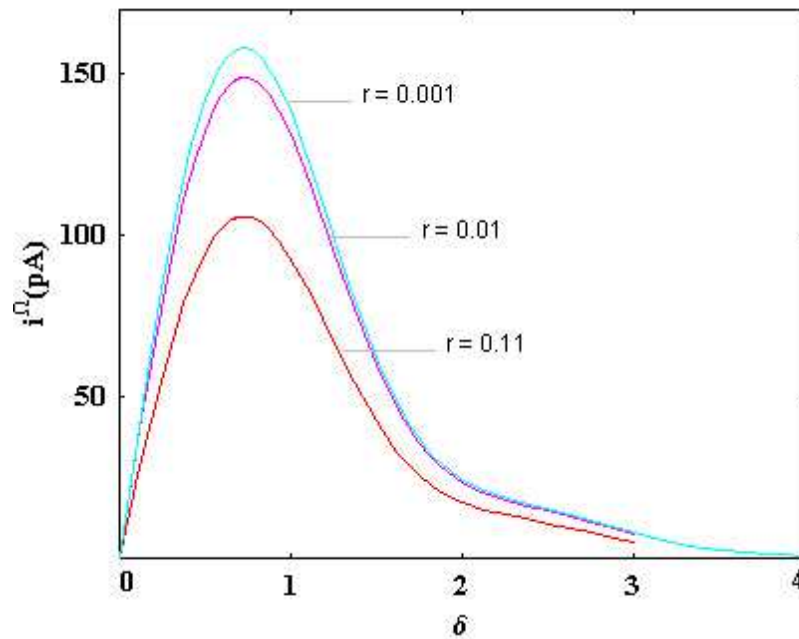


Figura 3.11: Dependência do primeiro harmônico da fotocorrente i^Ω com a amplitude de vibração normalizada δ , para distintos valores do quociente $r = \frac{N_T}{N_{ph}^0}$. Os máximos da fotocorrente correspondem a $\delta = 0.76$

Parte II

Caracterização Dos Materiais

Capítulo 4

Métodos Ópticos não-holográficos.

4.1 Óxido de Bismuto e Titânio $Bi_{12}TiO_{20}$.

Cristais com a fórmula química de $Bi_{12}MO_{20}$, onde $M = Ge, Si, \text{ ou } Ti$ (BGO, BSO, BTO), são conhecidos como Silenitas. Estes cristais exibem propriedades notáveis: eles são piezo-elétricos, elétrico e elasto-ópticos, ópticamente ativos e fotocondutores. Devido a essas propriedades eles podem ser usados em uma variedade de aplicações assim como holografia em tempo real ou em processamento de imagens. Cristais da família Silenita são importantes devido à sua rápida resposta temporal, e, no caso de BTO, à sua grande sensibilidade no vermelho.

As silenitas cristalizam no sistema cúbico, corpo centrado, no grupo espacial $I23$ (figura 4.1). O parâmetro da rede, no caso do BTO, é $a = 10.145 \text{ \AA}$ (Angström). Os átomos de titânio ocupam os vértices e o centro da célula cúbica e são tetraedralmente coordenados com átomos de oxigênio ($Ti-O = 1.71 \text{ \AA}$). Os átomos de Bismuto são heptacoordenados: cinco átomos de oxigênio formam um arranjo octaedral incompleto, com $Bi-O: 2.07 \text{ \AA}$, o restante dos átomos de oxigênio são eletrostaticamente coordenados com o par eletrônico $6S^2$ em Bi^{3+} a distâncias de $3.17 \text{ \AA}$, do Bismuto [52]. A vacância de Titânio na rede é sugerida como defeito intrínseco no BTO. A natureza deste defeito foi definido como um defeito complexo formado pelo par $(Bi_{Ti}^{3+} + h_0^+)$. Este defeito intrínseco é associado com a ocupação imprópria do tetraedricamente coordenado sítio Ti^{4+} por um Bi^{3+} acoplado com um buraco h^+ na vizinhança do tetraedro formado pelos átomos de oxigênio. Este defeito é considerado o centro aceitador responsável de condução tipo p e é também considerado responsável do aumento na absorção, na região de $2.2 - 2.8 \text{ eV}$, perto da borda de absorção intrínseca do cristal, cujo gap de energia é de 3.1 eV à temperatura ambiente (figura 4.2) [53].

Os cristais de BTO estudados aqui, foram crescidos¹ orientados na direção $[001]$, usando o método de “top seed solution” e a técnica “pulling”, a temperaturas na faixa de 900 a $950 \text{ } ^\circ C$, a partir da solução de Bi_2O_3 e TiO_2 com uma maior concentração de Bi_2O_3 [55,

¹No Laboratório de Crescimento de Cristais do Instituto de Física de São Carlos/USP

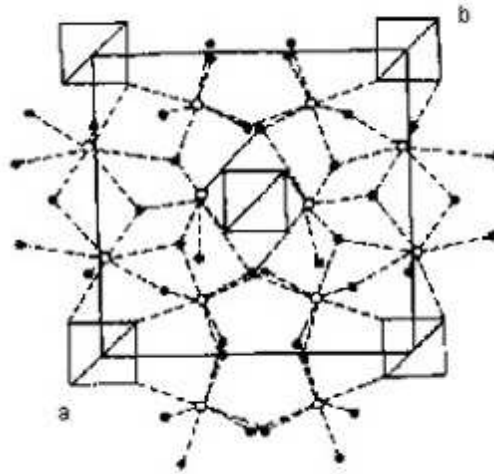


Figura 4.1: *Célula unitária do BTO mostrando o tetraedro ao redor dos átomos de Titânio. Os círculos pretos representam átomos de oxigênio e os círculos brancos, átomos de Bismuto. Reproduzido de ref.[52]*

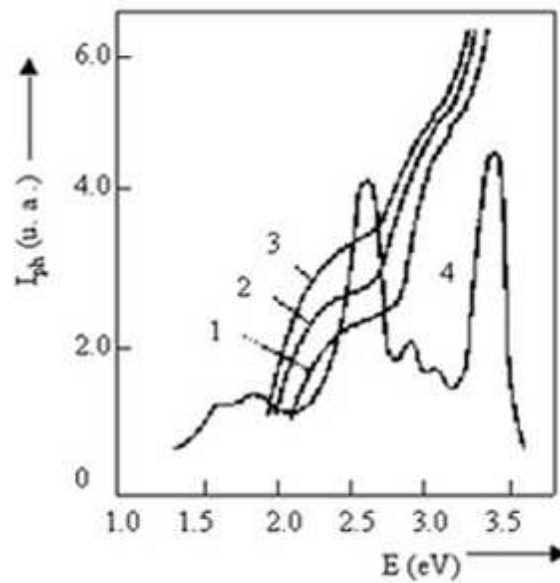


Figura 4.2: *Espectros de absorção e fotocondutividade do BTO. Espectros de absorção a: (1) $T = 90K$, (2) $T = 300K$, (3) $T = 400K$ e (4) Espectro de fotocondutividade a $T = 300K$. Reproduzido de ref.[54]*

53]. Estudos das propriedades elétricas e dielétricas, caracterização óptica e magnética destes cristais assim como estudos dos defeitos intrínsecos e dos parâmetros de crescimento destes

cristais de BTO foram feitos no Laboratório de Crescimento de Cristais do Instituto de Física de São Carlos/USP.

Em BTO puro, a anisotropia do espectro de ressonância paramagnética eletrônica (EPR) foi relacionada à presença de impurezas de Fe^{3+} . Medições usando a técnica “impedance spectroscopy” levaram a determinar uma energia de ativação de 0.99 eV, uma resistividade de $8.5 \times 10^{14} \Omega cm$ e uma permitividade elétrica $\epsilon = 50$ para o BTO a temperatura ambiente[56].

Cristais de $Bi_{12}TiO_{20}$ puros (etiquetados BTO-008 ,BTO-010, BTO-011 e BTO-013) foram analisados, assim como também os cristais dopados:

- $Bi_{12}Ti_{0.7}Ga_{0.3}O_{20}$ etiquetado BTO:Ga(30),
- $Bi_{12,04}Ti_{0.76}V_{0.16}O_{20}$ etiquetado BTVO-002,
- $Bi_{12}Ti_{0.9}Ce_{0.1}O_{20}$ etiquetado BTO:Ce,
- $Bi_{12}Ti_{0.9}Pb_{0.1}O_{20}$ etiquetado BTO:Pb.

Todos os cristais foram preparados usando a técnica “top seed solution” [56, 55, 57], usando procedimentos similares e a mesma composição química, exceto pelos dopantes. A figura (4.3) mostra uma representação esquemática e a tabela (4.1) lista as dimensões das amostras utilizadas em nossos experimentos.

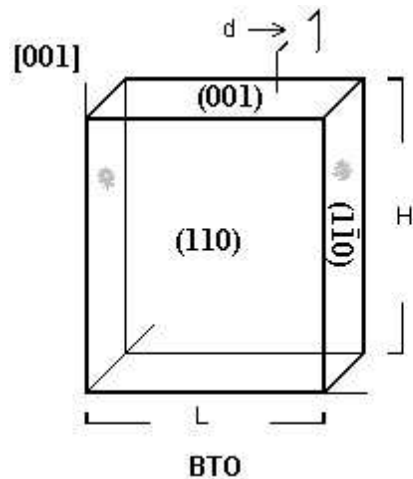


Figura 4.3: *Representação esquemática das amostras de BTO utilizadas em nossos experimentos.*

Mudanças na absorção e na condutividade induzidas pela luz nestes cristais, foram analisados em experimentos de transmitância e fotocorrente, respectivamente, como descrevemos a seguir.

Tabela 4.1: **BTO - Amostras**

	d	L	H
	(mm)		
BTO-008	3.45	3.95	6.0
BTO-010	8.1	5.95	6.05
BTO-11	2.05	6.20	7.0
BTO-13	2.35	6.95	10.25
BTO:Ce	6.05	6.05	7.55
BTO:Pb	6.0	6.05	7.5

4.2 Fotocromismo nos cristais de BTO.

Determinamos a absorção dos cristais de BTO puros e dopados, por medida direta da transmitância usando o arranjo experimental mostrado na figura (4.4).

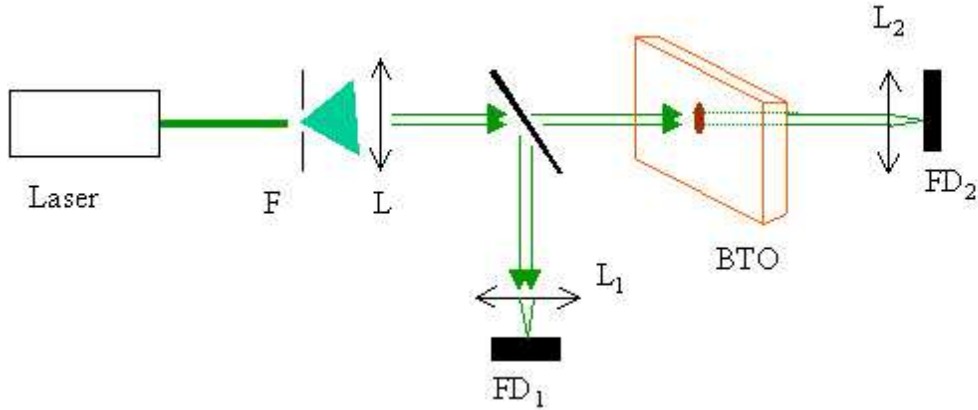


Figura 4.4: Um feixe laser é expandido, filtrado e colimado pelos componentes F e L . O feixe colimado é dividido em dois, um dos feixes é focalizado pela lente L_1 no fotodetector FD_1 e é usado para medir a irradiância incidente sobre o cristal, I_0 , o segundo feixe é levado a incidir normalmente sobre o cristal, e a irradiância transmitida I^t é medida pelo fotodetector FD_2 .

As medidas de α_0 e α_{li} foram feitas de uma maneira simples: um feixe laser de seção transversal de irradiância uniforme foi projetado sobre o cristal de BTO e a irradiância transmitida I^t foi medida como função da irradiância incidente I_0 . Ambas as irradiâncias foram corrigidas por seus respectivos valores no interior do cristal como segue:

$$I(0) = I_0(1 - R) \frac{\cos \theta}{\cos \theta_i} \quad (4.1)$$

$$I(d) = \frac{I^t}{1 - R} \frac{\cos \theta}{\cos \theta_i} \quad (4.2)$$

onde R é a reflectância na interface, θ e θ_i são os ângulos de incidência ao exterior e no interior da amostra (que são zero no nosso caso), respectivamente. Toda a luz transmitida pelo cristal é focalizada sobre um fotodetector para evitar possíveis efeitos de lente produzidos por as amostras espessas, devido a seu alto índice de refração ($n \approx 2.6$).

A irradiância transmitida é calculada para estas condições, a partir da intensidade incidente $I(0)$ como segue:

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -(\alpha_0 + \alpha_{li})I \quad (4.3)$$

$$\alpha_0 + \alpha_{li} = \frac{(\alpha_0 b + a)I + \alpha_0 c}{bI + c} \quad (4.4)$$

cujas solução é:

$$\frac{a}{\alpha_0 b + a} \ln \frac{(\alpha_0 b + a)I + \alpha_0 c}{(\alpha_0 b + a)I^t + \alpha_0 c} + \ln \frac{I^t}{I(0)} = -\alpha_0 d \quad (4.5)$$

que pode ser simplificada para as condições limites:

$$I^t = I(0) e^{-\alpha_0 d} \quad \text{para} \quad I(0) \Rightarrow 0 \quad (4.6)$$

$$I^t = I(0) e^{-(\alpha_0 + \frac{a}{b})d} \quad \text{para} \quad I(0) \Rightarrow \infty \quad (4.7)$$

A figura (4.5) mostra (pontos pretos) um resultado típico da medida de transmitância em um cristal puro de BTO (etiquetado BTO-010), onde a relação não linear entre I^t e $I(0)$ é evidente.

Ajuste teórico dos dados experimentais com a equação (4.5), como é mostrado na figura (4.5), com $R = 0.2$ e $\theta \approx 0$ proporcionaram²:

$$\alpha_o = 662 m^{-1} \quad \frac{a}{b} = 198 m^{-1} \quad \frac{c}{b} = 0.75 W/m^2 \quad (4.8)$$

expresando estes resultados em termos dos parâmetros do modelo de dois centros nas Eq.(2.33) e Eqs.(2.36-2.39):

$$\Phi \alpha_o \approx (N_{D1} - N_{D1}^+) s_1 \quad (4.9)$$

$$\frac{a}{b} \approx N_{D2} s_2 \quad (4.10)$$

$$c/b \approx \frac{\beta_2 h \nu}{\tau_1 r_2 (N_{D1} - N_{D1}^+) s_1} \quad (4.11)$$

²Os diversos programas de ajuste de dados usados na tese são mostrados no apêndice B.

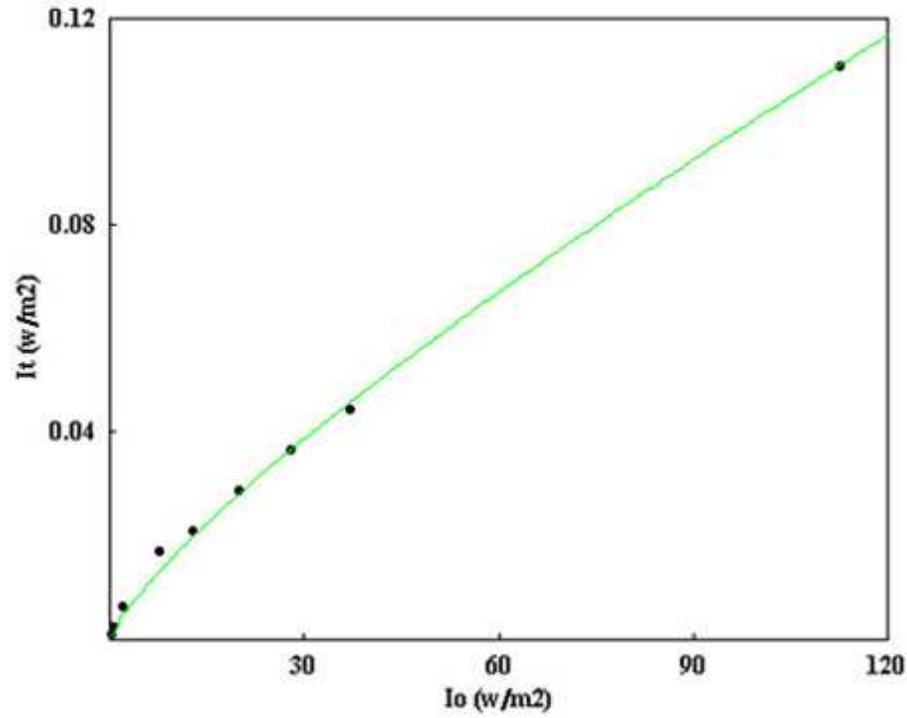


Figura 4.5: Irradiância transmitida I^t versus irradiância incidente I_0 , medidas usando um feixe laser uniforme de 532nm de comprimento de onda, na amostra BTO-010. A curva verde representa o melhor ajuste teórico dos dados experimentais (pontos pretos), usando a equação (4.5).

dados experimentais correspondentes aos distintos cristais analisados são apresentados na tabela (4.2). Para comparação, uma das amostras foi também analisada no comprimento de onda $\lambda = 633$ nm, mostrando menor absorção, mas exibindo um comportamento fotocromico similar.

Tabela 4.2: Parâmetros de absorção medidos nos cristais de BTO

mostra	BTO-010	BTO-011	BTO-013	BTO:Ce	BTO:Pb
α_o (m^{-1})	662 (49.1**)	658	583	430	473
a/b (m^{-1})	198 (22.7**)	242	226	138	250
c/b (W/m^2)	0.75 (1.7**)	0.7	0.34	0.7	0.29

(**): 633nm comprimento de onda

Os dados na tabela (4.2) mostraram que os cristais de BTO dopados e não dopados exibem forte efeito fotocromico, caracterizado (na saturação) pelo quociente a/b .

O efeito fotocromico é desprezível para uma irradiância muito menor que c/b , enquanto que para uma irradiância muito maior, a saturação da absorção é alcançada. Esta irradiância limite

é comparativamente pequena (umas poucas centenas de $\mu W/cm^2$) para os cristais analisados.

4.3 Condutividade.

Pode-se medir a condutividade (σ) usando-se duas técnicas: holográfica ou elétrica. A primeira está baseada na gravação de um holograma e na medida do tempo necessário para seu apagamento. Na medida da fotocondutividade (σ_{ph}) utiliza-se iluminação uniforme, e na medida da condutividade no escuro (σ_d), avalia-se o relaxamento do campo de cargas espaciais no cristal mantido no escuro. O tempo de relaxação é $\tau_{sc} \propto \tau_M = \epsilon\epsilon_0/\sigma$, onde ϵ é a constante dielétrica, ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo, e σ , é a condutividade. O método foi descrito em detalhe, com especial atenção enfocada na influência da absorção sobre o tempo de resposta do cristal ao longo da espessura do cristal [58].

O método elétrico para medir a condutividade está baseado na medida direta da corrente originada na amostra iluminada (fotocondutividade) ou não iluminada (condutividade no escuro), sujeita a ação de um campo elétrico externo. O arranjo experimental usado para medir a condutividade no escuro e a fotocondutividade, é mostrado na figura (4.6). Um amplificador operacional é usado como um conversor de transimpedância para transformar a pequena corrente originada em voltagem, que é medida usando um instrumento adequado: um simples voltímetro, no caso da corrente (DC) no escuro, ou um amplificador lock-in sintonizado em frequência e fase para medir a fotocorrente modulada, como será descrito mas adiante.

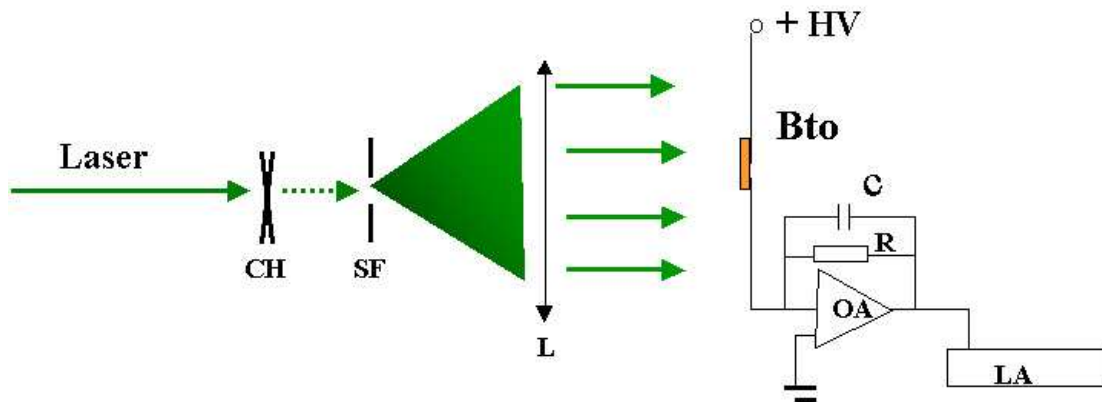


Figura 4.6: Arranjo esquemático para a medida da condutividade no escuro e da fotocondutividade. O feixe laser é modulado a frequência Ω , usando-se o chopper (CH), logo o feixe é filtrado e expandido, usando-se um filtro espacial (SF), e colimado, usando-se uma lente (L). O feixe chopado, expandido, e uniforme incide sobre a amostra, que produz uma fotocorrente sob a ação de uma voltagem (HV). Um amplificador operacional (OA) com uma resistência de feedback (R) e capacitor (C) transforma a corrente numa voltagem que é lida usando-se um lock-in amplificador sintonizado na frequência Ω e na fase do sinal (para o caso da fotocondutividade), ou um simples voltímetro (no caso da condutividade no escuro).

4.3.1 Condutividade no escuro.

As condutividades no escuro dos cristais de BTO são muito pequenas, nós medimos correntes do ordem de 10^{-13} Ampères, para campos elétricos externos aplicados de 0 a 4 KV/cm. Devido a isto, a superfície dos cristais e os suportes tiveram que ser cuidadosamente limpos para evitar correntes parasitas. A figura (4.7) mostra a corrente (Dc) medida no escuro para um cristal de BTO puro (rotulado BTO-008). A partir dos dados obtidos para a amostra não exposta previamente a luz (círculos), achou-se $\sigma_d = 7.8 \times 10^{-14}(\Omega m)^{-1}$, enquanto que, a partir dos dados correspondentes a mesma amostra, mas previamente exposta a luz até alcançar a saturação (quadrados), achou-se $\sigma_d = 9.6 \times 10^{-14}(\Omega m)^{-1}$. Em ambos casos a corrente foi não-linear para campos aplicados maiores que aproximadamente 4 KV/cm, como pode-se observar na figura menor inserida na figura (4.7), isto provavelmente se deve a algum tipo de limitação de carga espacial ligada à presença de uma muito baixa concentração de cargas livres no volume da amostra. Este efeito não foi detectado nos experimentos de fotocondutividade onde esperava-se que a densidade de cargas livres fosse muito maior que no escuro.

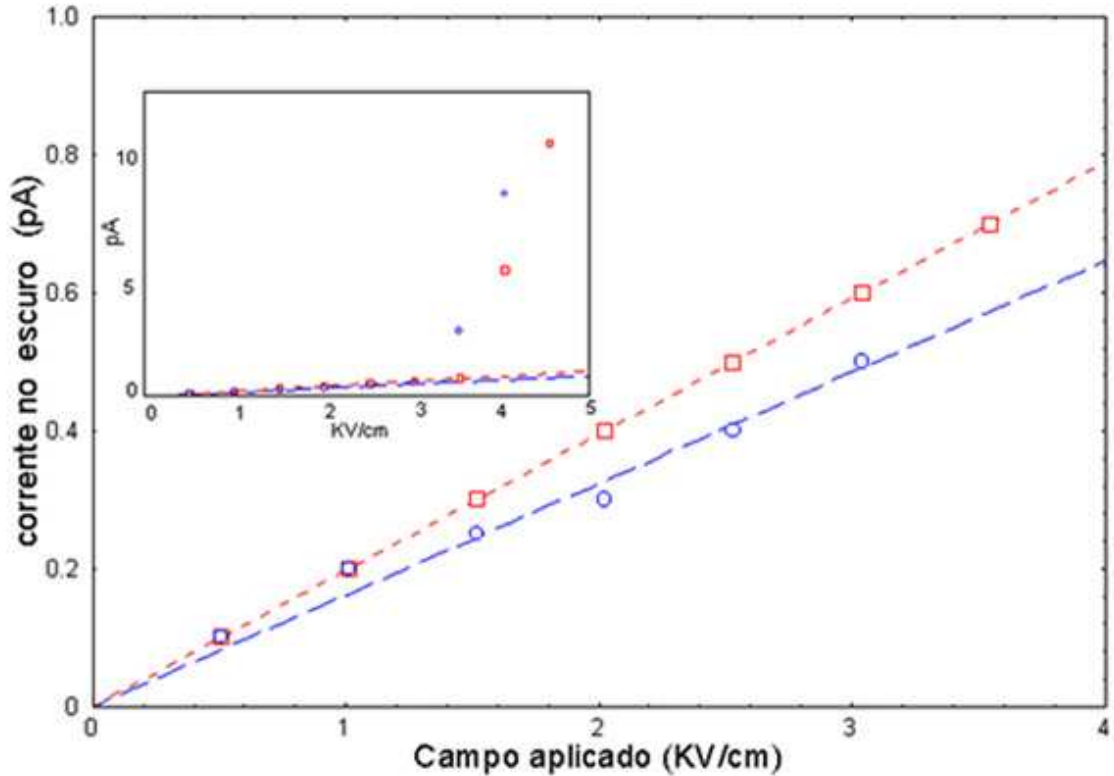


Figura 4.7: Condutividade no escuro: corrente Dc medido no escuro para o BTO-008 não exposto previamente a luz (círculos), e para a mesma amostra previamente saturada (quadrados). As retas mostradas são os melhores ajustes dos dados, levando a $\sigma_d = 7.8 \times 10^{-14}/(\Omega m)$ para o primeiro e $\sigma_d = 9.6 \times 10^{-14}/(\Omega m)$ para o segundo caso. A figura inserida mostra a relação não linear aparecendo para grandes valores do campo aplicado.

As condutividades no escuro (σ_d), medidas para as distintas amostras, estão relacionadas na tabela (4.3). Nesta tabela mostra-se também, para fins de comparação, os valores de σ_d calculados a partir de técnicas holográficas (holog.) e de impedância complexa transcritos das refs. [56, 10].

É interessante notar que os valores calculados para σ_d , pelas diferentes técnicas, são aproximadamente similares para os cristais de BTO não-dopados. Para as amostras dopadas (BTO:Pb e BTO:Ce) entretanto, a técnica de impedância Ac leva a resultados diferentes. Aqui é conveniente lembrar que a técnica holográfica proporciona o valor mais aproximado de σ_d , pois esta técnica não é afetada pelo grau de limpeza dos suportes ou das amostras, pela qualidade dos eletrodos ou outras fontes de correntes parasitas, enquanto que a técnica de impedância Ac requer que as medidas sejam feitas a alta temperatura e o resultado seja obtido por extrapolação à temperatura ambiente, usando a lei de Arrhenius, pelo que esta técnica é um bom método para a medida da energia de ativação do cristal, mas é menos confiável para a medida de σ_d .

Tabela 4.3: **Condutividade no escuro medida nos cristais de BTO**

amostra	σ_d ($10^{-14}/(\Omega m)$)						
	BTO-008	BTO-011	BTO-013	BTO:Ce	BTO:Pb	BTO:Ga(30)	BTO:V-002
holog.		3.5 ± 1.5	5 ± 3	500 ± 300	60 ± 40		
Dc <i>elec.</i> (d) ^a	7.8				20		
Dc <i>elec.</i> (s) ^b	9.6				24		
Ac imped.		11.8^c		104^e	3^e	34×10^{5d}	6×10^{4e}

^a(d) centros rasos vazios

^b(s) centros rasos cheios

^c ref.[56]

^d ref.[59]

^e dados fornecidos pelo Laboratório de Crescimento de Cristais do Instituto de Física de São Carlos/USP

Nossos dados experimentais da condutividade no escuro nos cristais de BTO-008 e BTO:Pb mostraram que a saturação dos centros rasos só leva a um incremento do 20% na condutividade, razão pela qual nestes cristais, a saturação dos centros rasos não mostrou ser muito relevante no processo de transporte de carga no escuro. Também era de se esperar que os centros de impurezas rasos (responsáveis da condutividade no escuro), não deviam desaparecer, e pelo contrário provavelmente deviam incrementar-se ao se dopar os cristais com algumas impurezas, e σ_d dos cristais dopados deveria permanecer inalterada ou (muito provavelmente) deveria aumentar. Esta expectativa foi confirmada pelos dados experimentais na tabela (4.3), onde se observa que todas as amostras dopadas exibem valores de σ_d muito maiores. A única exceção foi obtida na medida de impedância Ac no BTO:Pb que se mostrou em contradição com os outros resultados.

4.3.2 Fotocondutividade.

A fotocondutividade foi medida usando a técnica de “Fotocorrente Modulada”, descrita por Gerwens et al.[60]. Como é mostrado na figura 4.6, o cristal é iluminado com uma irradiância espacialmente uniforme, retangularmente modulada no tempo (com frequência angular Ω), sendo o termo fundamental desta irradiância:

$$I = I_0 + I_0 \frac{2}{\pi} \cos(\Omega t) \quad (4.12)$$

Quando esta luz modulada incide sobre o cristal fotorrefrativo e um campo elétrico externo Dc é aplicado, resulta uma fotocorrente modulada no tempo, cujo termo harmônico fundamental tem a forma [60]:

$$i_{ph}(t) = I_{ph} \frac{2/\pi}{\sqrt{1 + \Omega^2 \tau_{eff}^2}} \cos(\Omega t + \phi) \quad (4.13)$$

onde

$$\tan(\phi) = -\Omega \tau_{eff} \quad (4.14)$$

que pode ser medida usando um amplificador lock-in sintonizado na frequência Ω e na fase do sinal. O parâmetro τ_{eff} na equação (4.14) depende do tempo de vida dos fotoelétrons e também do tempo de resposta do circuito eletrônico de medida. O termo $\sqrt{1 + \Omega^2 \tau_{eff}^2}$ é experimentalmente determinado para cada frequência Ω usada no experimento. Uma curva típica de resposta em frequência do sinal de fotocorrente, é mostrada na figura (4.8). A figura (4.9) mostra a fotocorrente tipicamente medida i_{ph} versus a irradiância $I(0)$ para uma amostra de BTO (rotulada:BTO-010). Os quadrados representam a fotocorrente medida para a amostra não saturada, enquanto os círculos mostram os dados obtidos para a mesma amostra previamente saturada. A fotocorrente medida i_{ph} pode ser formulada a partir das equações (2.20 - 2.23) e (2.32 - 2.34) em termos dos parâmetros experimentais e do cristal como segue:

$$di_{ph} = \sigma_{ph}(z) E_0 H dz \quad (4.15)$$

$$i_{ph} = E_0 H \frac{q\mu\tau}{h\nu} I(0) \int_0^d [\Phi\alpha_0 + \alpha_{li}(z)] e^{-[\alpha_0 + \alpha_{li}(z)]z} dz \quad (4.16)$$

onde E_0 é o campo elétrico aplicado e H é a altura (medida ao longo do eixo [001] do cristal) da amostra, com uma superfície, $H \times d$ dos eletrodos. Substituindo a expressão correspondente de α_{li} na equação (4.16), e integrando a expressão resultante, pode-se obter o coeficiente da fotocondutividade no plano de entrada ao interior da amostra :

$$\frac{\sigma_{ph}(0)}{I(0)} = \frac{q\mu\tau}{h\nu} (\Phi\alpha_0 + \alpha_{li}(0)) \quad (4.17)$$

Dados para a amostra não saturada (representados por quadrados) no limite de $I(0) \rightarrow 0$ são ajustados usando-se a equação (4.16) com $\alpha_{li} = 0$, como é mostrado na figura inserida na figura (4.9), levando a um coeficiente angular de $69.2 \text{ pA } m^2/W$. Deste resultado o valor $\sigma_{ph}(0)/I(0) = 47.5 * 10^{-12} m/(\Omega W)$ é obtido e mostrado na tabela (4.4). Para a amostra saturada os dados (representados por círculos) correspondentes às altas irradiâncias são ajustados

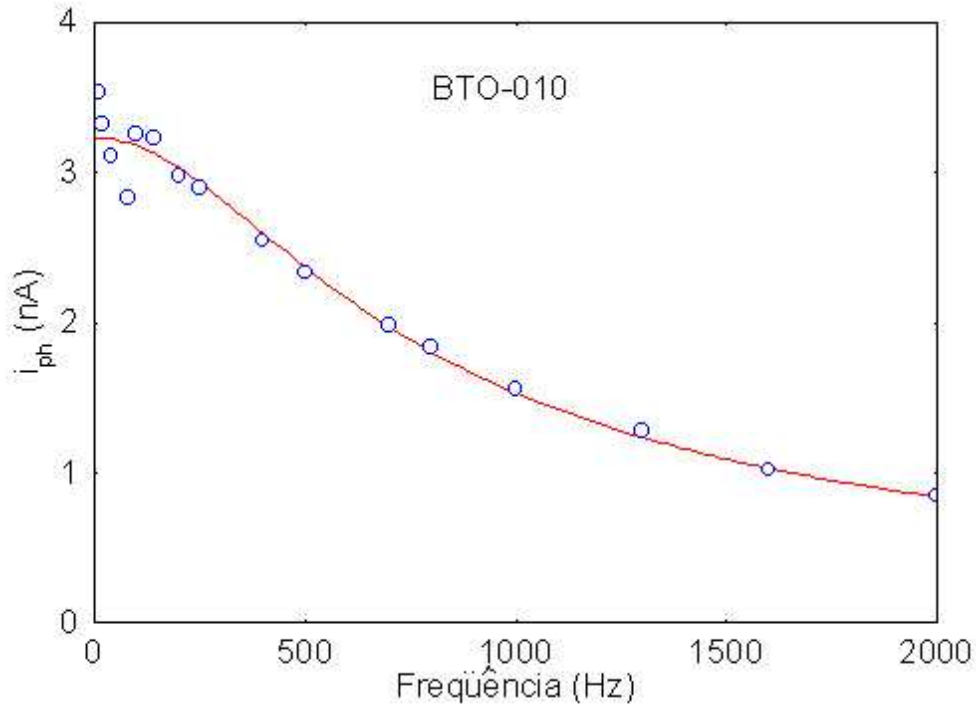


Figura 4.8: *Resposta em frequência da fotocorrente num cristal de BTO puro etiquetado (BTO-010) (marcas circulares). A voltagem aplicada entre os eletrodos da amostra foi de 200 volt. O cristal foi iluminado com uma irradiância uniforme de $I_0 = 6.41 \text{ mW/cm}^2$ de um feixe laser de comprimento de onda, $\lambda = 532 \text{ nm}$. O valor de τ_{eff} que se ajustou (4.16) aos dados experimentais (curva vermelha) foi: $\tau_{\text{eff}} = 2.96 * 10^{-4} \text{ s}$.*

usando a equação (4.16) com $\alpha_{li} \rightarrow a/b$, levando a um coeficiente angular de $138 \text{ pA m}^2/\text{W}$, obtendo-se deste resultado o valor $\sigma_{ph}(0)/I(0) = 122.6 * 10^{-12} \text{ m}/(\Omega \text{W})$, como é mostrado na tabela (4.4) para a condição limite $I \rightarrow \infty$. O procedimento é repetido para as outras amostras e os resultados são mostrados na tabela (4.4). Para fins de comparação a fotocondutividade foi também medida a 514.5 nm (BTO-011) e a 633 nm (BTO-010). Nós encontramos uma grande dependência da fotocondutividade com o comprimento de onda, provavelmente devido a dependência das seções transversais de absorção (s_1 e s_2) com o comprimento de onda do feixe laser. Nossos experimentos mostraram claramente (tabela 4.4) que a fotocondutividade é sempre consideravelmente maior para os cristais com centros rasos saturados, tanto para cristais de BTO dopados como não dopados. O fato provavelmente indica que o termo $N_{D2}s_2$ é, em geral, suficientemente grande comparado com $(N_{D1} - N_{D1}^+)s_1$ na equação (2.31).

Eficiência Quântica e o produto $\mu\tau$.

Dos valores da condutividade e absorção dos cristais, para os limites de alta e baixa irradiância, é possível determinar alguns parâmetros relevantes destes cristais. τ , na equação

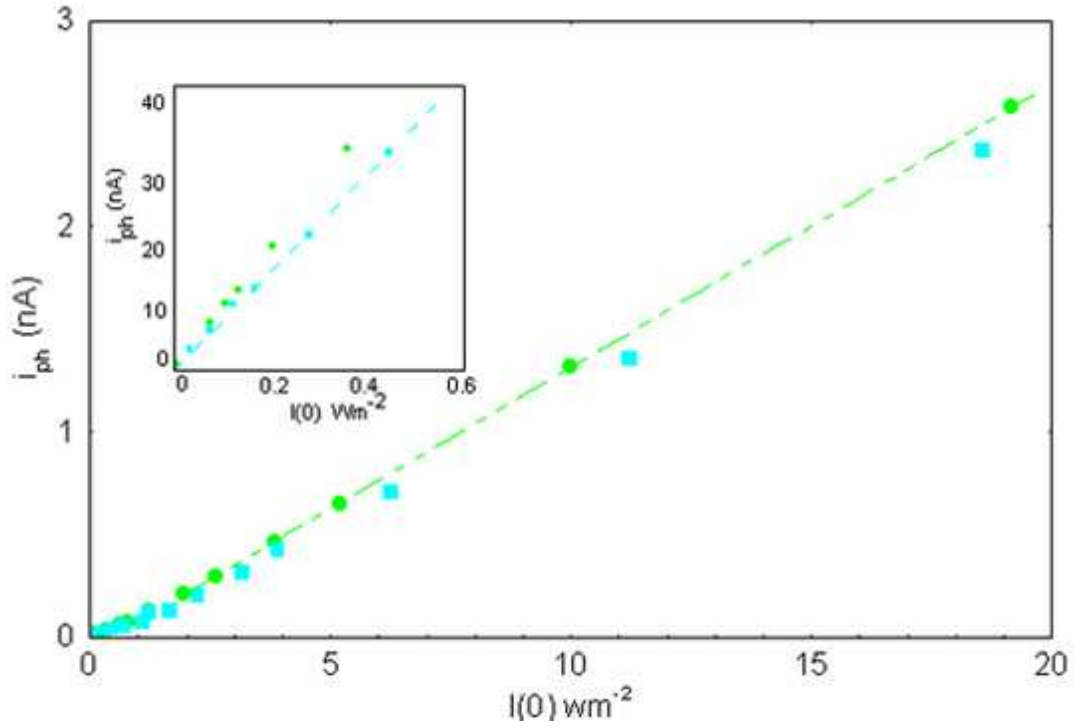


Figura 4.9: *Fotocorrente como função da irradiância incidente $I(0)$ sobre o plano de entrada ao interior do cristal BTO-010, medida usando um feixe laser uniforme, modulado no tempo, de comprimento de onda $\lambda = 532\text{nm}$. Uma voltagem de 2000 volts foi aplicado ao cristal e a fotocorrente obtida foi medida usando um amplificador lock-in sintonizado na frequência e fase do sinal. Os dados representados por quadrados correspondem à amostra não saturada e os dados representados por círculos correspondem à amostra previamente saturada. A linha para os dados representados por círculos é o melhor ajuste para a região linear de alta intensidade, provendo um coeficiente angular de $138 \text{ pA m}^2/\text{W}$. A linha para os dados representados por quadrados (na figura inserida) mostra o melhor ajuste para a amostra não saturada no limite $I(0) \rightarrow 0$ fornecendo um coeficiente angular de $69.2 \text{ pA m}^2/\text{W}$. Destes dados, os valores na tabela (4.4) foram computados para o BTO-010.*

(4.17) é dependente da intensidade da luz, como é indicado na equação (2.23). Assumindo que $\gamma_2 N_{D2} \tau_1 \ll 1$ na equação (2.23) (isto é, se desprezamos a influência dos centros rasos no tempo de vida dos elétrons) τ na equação (4.17) pode ser imaginado constante, e neste caso pode-se calcular o produto $\mu\tau$ como segue:

$$\frac{h\nu}{q} \left(\lim_{I \rightarrow \infty} \frac{\sigma_{ph}(0)}{I(0)} - \lim_{I \rightarrow 0} \frac{\sigma_{ph}(0)}{I(0)} \right) / \lim_{I \rightarrow \infty} \alpha_{li} = \mu\tau \quad (4.18)$$

A partir das equações (4.17) e (4.18), a eficiência quântica (Φ), pode ser calculada como :

$$\left(\lim_{I \rightarrow 0} \frac{\sigma_{ph}(0)}{I(0)} \right) / \left(\frac{q\mu\tau\alpha_o}{h\nu} \right) = \Phi \quad (4.19)$$

Tabela 4.4: **Coefficiente de fotocondutividade e parâmetros derivados medidos no BTO. ($\lambda = 532\text{nm}$).**

amostra	BTO-010	BTO-011	BTO-013	BTO:Ce	BTO:Pb
$\lim_{I \rightarrow 0} \frac{\sigma_{\text{ph}}(0)}{I(0)} \ (10^{-12} m/(\Omega W))$	47.5 (1.8 ^b)	52.2	65.5	0.56	53.5
$\lim_{I \rightarrow \infty} \frac{\sigma_{\text{ph}}(0)}{I(0)} \ (10^{-12} m/(\Omega W))$	122.6 (7.2 ^b)	127.4 (10 ³ ^a)	317.7	8.72	230.7
$\mu\tau \ (m^2/V \times 10^{-12})$	0.88 (0.47 ^b)	0.72	2.58	0.14	1.66
Φ	0.19 (0.16 ^b)	0.25	0.10	0.02	0.16

^a $\lambda = 514.5\text{nm}$ (ref. [58])

^b $\lambda = 633\text{nm}$

Tabela 4.5: **Figura de Mérito**

amostra	BTO-008	BTO-010	BTO-011	BTO-013	BTO:Ce	BTO:Pb
$\lim_{I \rightarrow \infty} \frac{\sigma_{\text{ph}}(0)}{I(0)} / \sigma_d \ (m^2/W)$		3503	3640	6354	2	385
$\sqrt{\eta}/d \ (m^{-1})$	1.39(*)				0.27(*)	0.49(*)

(*): $\lambda = 514.5 \text{ nm}$

Os termos $\mu\tau$ (calculado da equação (4.18)) e Φ (calculado da equação (4.19)) são mostrados na tabela (4.4). O valor $\mu\tau = 0.72 \times 10^{-12} m^2/V$ achado para o BTO-011 nos permite calcular o comprimento de difusão dos portadores de carga, $L_D = \sqrt{\mu\tau k_B T/q} = 0.14 \mu m$, (onde k_B é a constante de Boltzman, T é a temperatura absoluta, e q é a carga do elétron). O valor achado para L_D mostrou-se em bom acordo com o valor $L_D = 0.14 \pm 0.01 \mu m$ citado na ref.[61] para a mesma amostra, usando a técnica holográfica conhecida como “Feedback-controlled running hologram”. A definição de Φ dada na equação (2.33) é algo diferente da equação: $\Phi'(\alpha_0 + \alpha_{li})$ que é implicitamente usada em muitos artigos acerca de fotorrefrativos. O valor $\Phi = 0.25$ achado para o cristal de BTO-011, mostrado na tabela (4.4), pode ser convertido no valor Φ' de maneira simples: $\Phi'(\alpha_0 + \alpha_{li}) = \Phi\alpha_0 + \alpha_{li}$. No caso de alta irradiância, $\alpha_{li} = a/b$, pelo que $\Phi' = (\Phi\alpha_0 + a/b)/(\alpha_0 + a/b) = 0.45$, que é 20% maior que o valor (0.36) já reportado na Ref. [61], para a mesma amostra e para o mesmo comprimento de onda.

Capítulo 5

Foto-Fem Interferométrica

5.1 Montagem Experimental

A montagem experimental é mostrada esquematicamente na figura (5.1), onde um padrão senoidal de franjas de interferência é projetado sobre o plano cristalográfico (110) do cristal de $Bi_{12}TiO_{20}$, cujo eixo [001] é perpendicular ao plano de incidência e a $\vec{K}$. O ângulo entre os feixes que interferem (em ar) é 51° , e o comprimento de onda é $\lambda = 0.5145 \mu\text{m}$. A visibilidade $|m|$ do padrão de franjas é computada do quociente das amplitudes das ondas que interferem, tendo-se em conta sua direção de polarização, que está no plano de incidência. O espelho piezoelétrico (PZT), localizado em um dos feixes que interferem, é alimentado por uma voltagem senoidal:

$$v(t) = v_d \sin \Omega t \quad (5.1)$$

produzindo uma modulação de fase de amplitude $K\Delta$ (em radianos):

$$K\Delta = K_{\text{PZT}} v_d \quad (5.2)$$

onde K_{PZT} é a resposta do elemento piezoelétrico na frequência Ω . A amplitude do primeiro harmônico da fotocorrente $|i^\Omega|$ é medido, com um amplificador Lock-in EG&G Modelo 5210, como uma função de v_d para distintas frequências Ω .

5.2 $|i^\Omega|$ versus Amplitude de Modulação de Fase ($K\Delta$)

Resultados experimentais típicos obtidos para o primeiro harmônico da fotocorrente $|i^\Omega|$, medidos num mesmo cristal de BTO, são mostrados nas figuras (5.2) e (5.3) para duas irradiâncias I_0 distintas. Dos resultados mostrados no gráfico (5.2), se deduz que para $\Omega \geq 50$ Hz o valor de $|i^\Omega|$ deve ser aproximadamente I_∞^Ω pois, visto que todas as curvas que satisfazem esta condição, nesta figura, tem aproximadamente o mesmo máximo (que corresponde ao máximo para o produto $J_0(K\Delta)J_1(K\Delta)$, que ocorre para $K\Delta = 1.1\text{rad}$). As abcissas destes máximos, entretanto, são diferentes devido a que a resposta do PZT depende da frequência. Nós usamos este fato para calibrar o PZT, e o resultado é mostrado na figura (5.4), onde nós assumimos que a resposta do PZT se mantém aproximadamente constante abaixo de ≈ 50 Hz. A figura

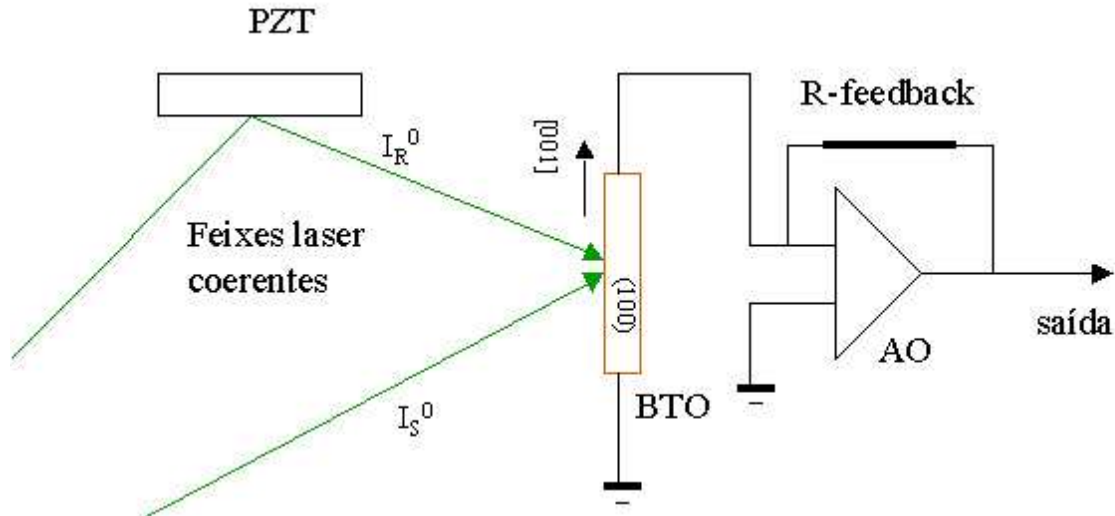


Figura 5.1: Montagem experimental para a medição da fotocorrente $|i^\Omega|$. Um feixe laser de 514.5 nm de comprimento de onda é dividido em dois, os feixes são filtrados, expandidos, colimados, e são levados a interferir sobre o cristal de BTO. Um espelho piezoelétrico (PZT) vibrando com frequência angular Ω , modula a fase do feixe de referência (I_R^0) originando o padrão de interferência oscilante. Um amplificador Lock-in que mede corrente e é esquematicamente representado pelo amplificador operacional (AO) é sintonizado na frequência Ω e fase do primeiro harmônico do sinal de fotocorrente $|i^\Omega|$ gerada ao longo da direção $\vec{K}$ no volume da amostra.

(5.4) nos permite converter v_d em seu correspondente amplitude de modulação de fase ($K\Delta$), e então apresentar todos os dados experimentais nas figuras (5.2) e (5.3) em função de $K\Delta$ como é mostrado nas correspondentes figuras (5.5) e (5.6).

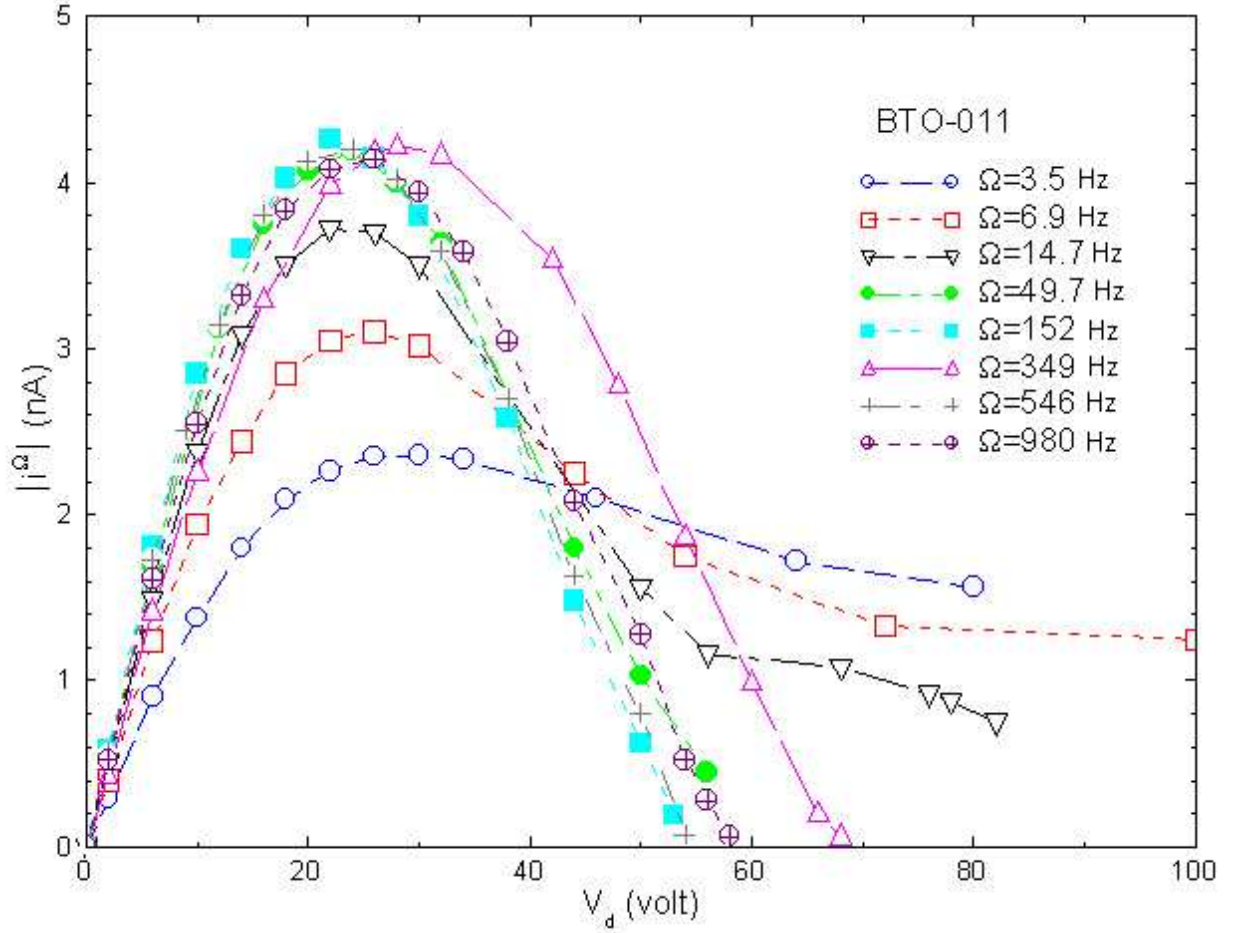


Figura 5.2: Primeiro harmônico da corrente holográfica $|i^\Omega|$ medida num cristal de BTO puro, (etiquetado BTO-011), em função da amplitude da tensão aplicada ao espelho piezoelétrico (PZT), e para algumas frequências $\Omega/2\pi$ fixas. Um feixe laser de 514.5 nm de comprimento de onda, com uma irradiância de $I_0 = I_R^0 + I_S^0 = 455 \text{ W/m}^2$ foi usada. O ângulo entre os feixes a entrada do cristal foi: $\theta = 51^\circ$. As curvas que unem os dados experimentais são simples guias para os olhos.

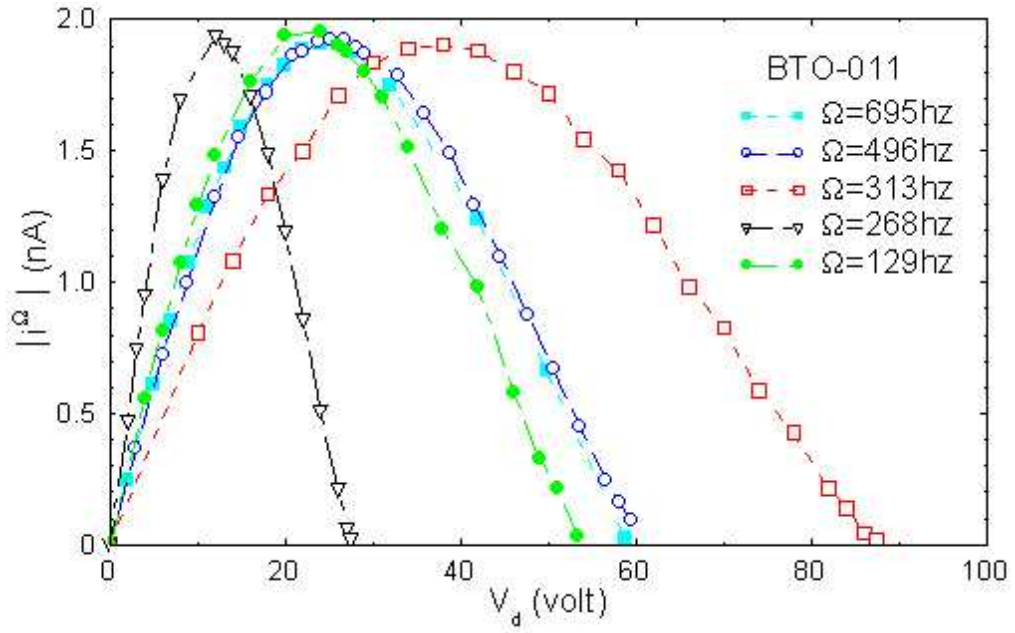


Figura 5.3: Primeiro harmônico da corrente holográfica $|i^\Omega|$ medida no BTO-011, em função da voltagem aplicada ao espelho piezoelétrico (PZT), e para algumas frequências $\Omega/2\pi$ fixas. Um feixe laser de 514.5 nm de comprimento de onda, com uma irradiância de $I_0 = I_R^0 + I_S^0 = 177 \text{ W/m}^2$ foi usada. O ângulo entre os feixes a entrada do cristal foi: $\theta = 51^\circ$.

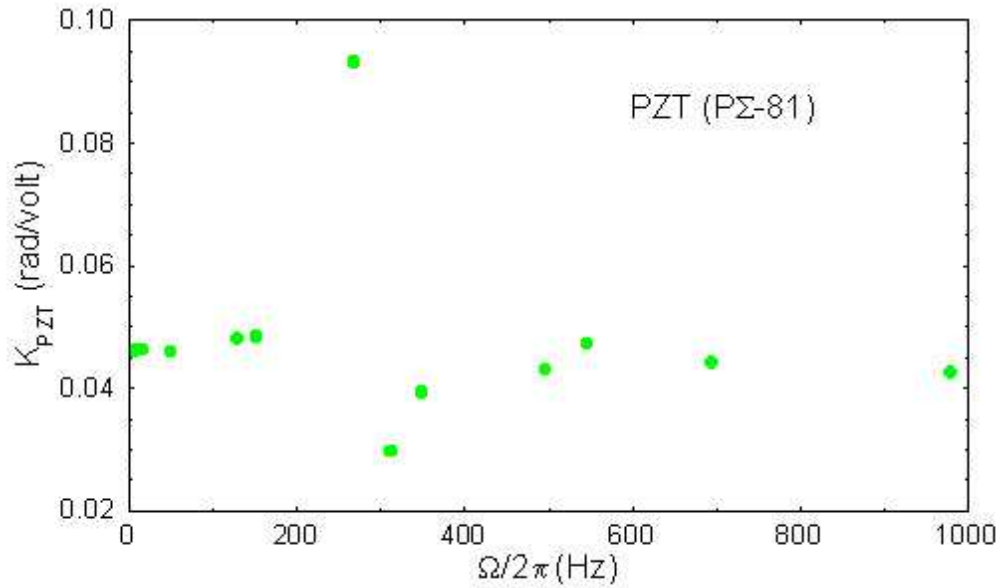


Figura 5.4: Resposta em frequência do espelho piezoelétrico PZT (PΣ-81), obtida a partir dos dados de fotocorrente mostrados nas figuras (5.2) e (5.3).

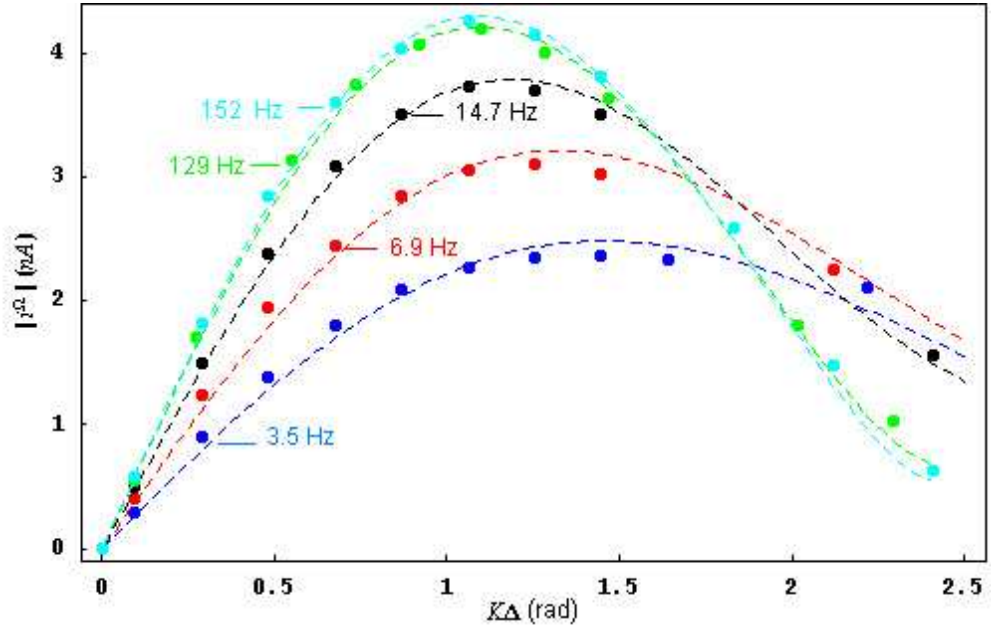


Figura 5.5: Dados da figura (5.2), com v_d convertida em seus correspondentes valores de modulação $K\Delta$. As curvas contínuas foram obtidas dos melhores ajustes de dados, usando a equação (3.37), para alguns valores de $\Omega/2\pi$ Hz. Dados para 980, 546, e 349 Hz foram omitidos porque eles são muito próximos aqueles obtidos para 152 Hz.

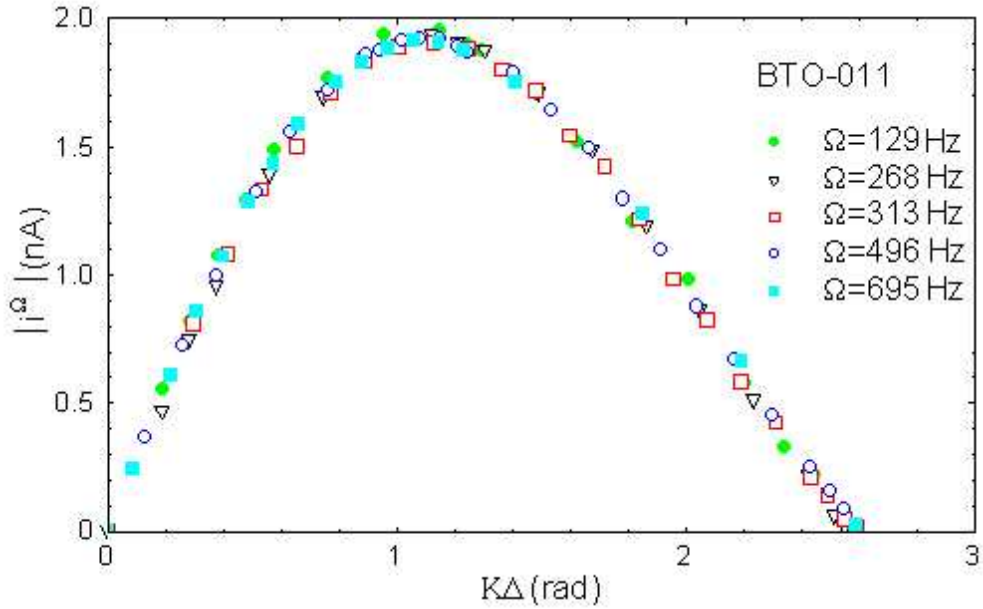


Figura 5.6: Dados da figura (5.3), com v_d convertida em seus correspondentes valores de modulação $K\Delta$, são mostrados para algumas frequências. Todos os dados se ajustam a mesma curva, a que segue os dados experimentais.

5.3 Resposta em Frequência da Corrente Holográfica

$|i^\Omega|$

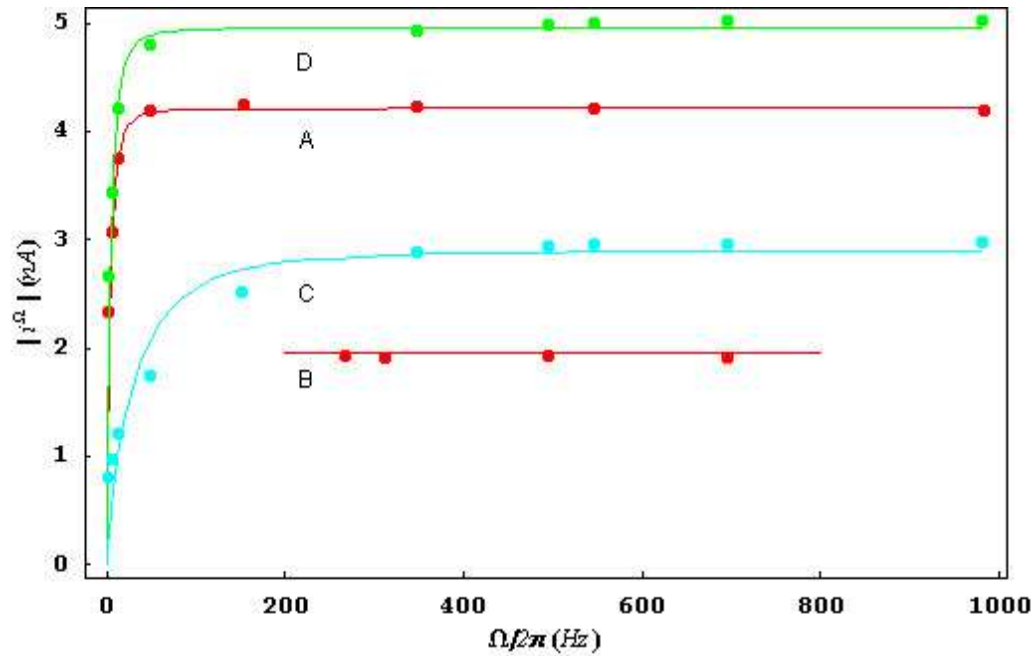


Figura 5.7: A fotocorrente obtida $|i^\Omega|$ (dados: círculos cheios) em função da frequência $\Omega/2\pi$, para $K\Delta = 1.1$ rad: Para BTO obtida da Fig.(5.5)(curva A) e da Fig.(5.6) (curva B); para BTO:Ce (curva C); e para BTO:Pb (curva D). As curvas contínuas são obtidas do ajuste da equação (3.37) com os dados experimentais.

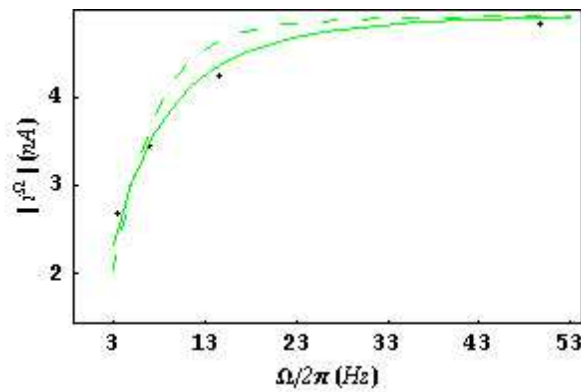


Figura 5.8: Curvas obtidas do ajuste de dados para o cristal de BTO:Pb, (curva D na figura 5.7), usando a equação (3.37), considerando absorção do material (curva contínua), e sem considerar absorção (curva descontínua).

As curvas nas figuras (5.5) e (5.6) representam o melhor ajuste da equação (3.37) para os dados experimentais. Em ambos casos existe um excelente acordo entre a teoria e os resultados experimentais. As curvas obtidas do ajuste de dados são usadas para achar $|i^\Omega|$, para $K\Delta = 1.1$ rad., para os diversos valores de Ω , e estes resultados são mostrados na figura (5.7) onde as curvas A e B representam o melhor ajuste da equação (3.37) para estes dados. As outras duas curvas, C e D, obtidas pelo mesmo procedimento, correspondem às amostras dopadas com Cério (BTO:Ce) e chumbo (BTO:Pb) respectivamente.

5.4 Cálculo dos Parâmetros (σ_0/I_0) e (l_s) nos Cristais de BTO.

A tabela (5.1) lista os valores dos parâmetros $\mathcal{A}/\tau_{sc}(0)$ e $\mathcal{A}$ correspondentes aos melhores ajustes da equação teórica (3.37) com os dados experimentais¹. Conhecido $\mathcal{A}$ e ($\epsilon = 47$), l_s é calculado usando a equação (3.31), e a partir de $\mathcal{A}$ e $\tau_{sc}(0)$ é calculado o quociente $(\sigma_0(0)/I(0))/(1 + K^2 L_D^2)$. A partir de este último quociente, com $I(0)$ (isto é o valor I_0 corrigido para o plano de entrada ao interior da amostra) e L_D , o quociente $\sigma_0(0)/I(0)$ é determinado. Foi usado $L_D = 0.14 \pm 0.01 \mu m$ para o BTO puro [62], e para as amostras dopadas, L_D foi calculada usando-se o valor de $\mu\tau$ estimado na Ref. [10].

Tabela 5.1: Valores dos parâmetros do ajuste dos dados experimentais

Parâmetro	Composição da amostra				
	BTO	BTO	BTO:Ce	BTO:Pb	BTO:Pb ^a
Curva ^b	A	B	C	D	D
I_0 (W/m^2)	460	177	443	443	443
$\mathcal{A}/\tau_{sc}(0)$ (10^{-10} F/sm)		43			
$\mathcal{A}$ (10^{-10} F/m)	1.11		0.064	0.82	0.27
$\tau_{sc}(0)$ (10^{-3} s)	8.7		1.11	7.6	15.4
l_s (μm)	0.09		0.25	0.11	0.16
$\frac{\sigma_0(0)/I(0)}{1+K^2 L_D^2}$ ($10^{-12} m/\Omega W$)	74.3		145	75.6	21.4
L_D (μm)	0.14 ± 0.01^c		0.06^d	0.21^d	
$\sigma_0(0)/I(0)$ ($m/\Omega W \times 10^{-10}$)	2.3-3.8		2	4.45	

^a desprezando absorção do material

^b Fig.(5.7)

^c Ref.[62]

^d Ref.[10]

O valor de l_s calculado aqui para o BTO puro é um pouco maior que o valor já publicado em

¹ A parte saturada ($\Omega\tau_{sc} \gg 1$) na curva B não permite determinar $\mathcal{A}$ e τ_{sc} separadamente, só o quociente $\mathcal{A}/\tau_{sc}$, como é deduzido da equação (3.33), pode ser calculado.

alguns artigos [63, 13] para a mesma amostra. Enquanto que o coeficiente $\sigma_0(0)/I(0)$ concorda em ordem de magnitude com os dados já publicados [58], para o mesmo comprimento de onda e para a mesma amostra, em condições de saturação. A amostra dopada com Cério, BTO:Ce ($\text{Bi}_{12}\text{Ti}_{0.9}\text{Ce}_{0.1}\text{O}_{20}$), mostra um valor de l_s sensivelmente maior, enquanto que a amostra dopada com chumbo, BTO:Pb ($\text{Bi}_{12}\text{Ti}_{0.9}\text{Pb}_{0.1}\text{O}_{20}$), mostra um valor similar ao de BTO puro. Estes resultados podem indicar uma redução no número de centros fotoativos em BTO:Ce, talvez devido a competição elétron-buraco ou devido a ação direta do Cério sobre os centros fotoativos profundos, como já foi descrito na literatura [64] ainda que para outros dopantes.

Tabela 5.2: **Resultados comparativos para BTO-011**

técnica	(μm) L_D	(μm) l_s	Φ	$(m/\Omega W \times 10^{-10})$ $\sigma_0(0)/I(0)$	$(m/\Omega W)^{-1}$ $\sigma_d \times 10^{-14}$	(nm) λ
Fringe-locked running holog.[13]	0.15	0.03	0.32	-	-	514.5
Running hologram [63]	0.14	0.03	0.45	-	-	514.5
Stationary phase-shift [65]	-	0.03	-	-	-	514.5
Initial hologram phase-shift [62]	0.15	-	-	-	-	532
Apagamento holográfico [58]	0.38	-	0.36	10	-	514.5
Foto-Fem interferométrica [12]	-	0.09	-	2.3	-	514.5
Fotoconductividad modulada[10]	0.14	-	0.45	1.27	-	532
Corrente Dc [10]	-	-	-	-	7.8-9.6	

5.5 Discussão dos Resultados Experimentais

A condutividade no escuro em silenitas acredita-se que é originada em um defeito complexo formado pela ocupação imprópria do sítio tetraedricamente coordenado Ti^{4+} por um Bi^{3+} acoplado com um buraco h^+ ($Bi_M^{3+} + h^+$) ao redor do tetraedro oxigênio. Este defeito seria o centro aceitador responsável pela condução tipo p e também responsável pelo aumento da absorção perto da borda de absorção intrínseca nos cristais de BTO puros.

A fotocondutividade é sabidamente baseada em elétrons, devido à presença de Fe^{3+}/Fe^{2+} . Razão pela qual é esperado que no limite de baixas irradiâncias, $\sigma_{ph}(0)$ medida pela fotocorrente (Dc) seja diferente (provavelmente maior) que σ_d . Esta expectativa é confirmada pelos dados mostrados na figura (5.9), onde no limite de irradiância zero para a fotocorrente, se alcança aproximadamente 40 fA, para uma amostra de BTO puro medido com um electrómetro (DC) a 514.5 nm de comprimento de onda, enquanto que a corrente no escuro é 30 fA. Esta diferença é suficientemente grande para confirmar que a condutividade no escuro e a fotocondutividade estão baseados em mecanismos distintos.

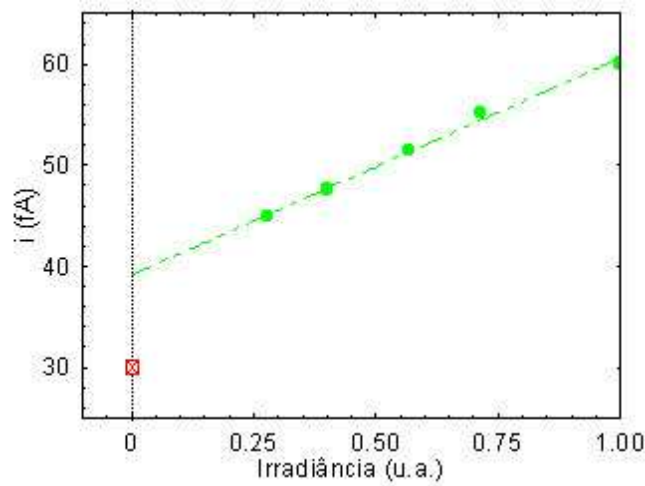


Figura 5.9: *Corrente no escuro e Fotocorrente: medido num cristal BTO puro para 514.5 nm de comprimento de onda e um campo aplicado fixo. A corrente no escuro (retângulo vermelho) é 30fA enquanto a fotocorrente no limite de irradiância zero é 39 ± 1 fA.*

Todos os dados obtidos das medidas de absorção e condutividade, nos levaram a obter informações relevantes acerca da performance do BTO para seu uso em gravação holográfica:

i) Considerando que os materiais com baixa condutividade no escuro e alta fotocondutividade são melhores para gravação holográfica, porque o processo de gravação está baseado na capacidade para criar importante concentração de cargas espaciais no volume do cristal, então uma baixa condutividade no escuro é necessária para gravação holográfica. A amostra de BTO dopada com Galio (BTO:Ga) é um exemplo ilustrativo deste fato: devido a sua grande condutividade no escuro (ao redor de 4-5 ordens de magnitude maior que qualquer outra amostra na tabela 4.3) o cristal é inútil para gravação holográfica. Alta fotocondutividade é necessária, não sendo entretanto, uma condição suficiente, pois quando existe competição

elétron-buraco temos um incremento na fotocondutividade e ao mesmo tempo uma redução no efeito fotorrefrativo efetivo [66].

ii) O quociente fotocondutividade/conductividade no escuro ($\frac{\sigma_0/I_0}{\sigma_d}$) mostrado na tabela (4.5) é uma interessante figura de mérito para a capacidade de gravação holográfica. Os números apresentados na primeira linha foram calculados usando dados holográficos. O parâmetro (segunda fila na tabela 4.5) $\sqrt{\eta}/d$ envolvendo a eficiência de difração holográfica (η), medida em condições similares, por unidade de espessura do cristal d , confirma a adequação do quociente ($\frac{\sigma_0/I_0}{\sigma_d}$) como figura de mérito desses cristais.

O coeficiente de fotocondutividade, estimada pela técnica Foto-Fem holográfica, $\sigma_0(0)/I(0)$, é ligeiramente menor para o BTO:Ce e algo maior para o BTO:Pb comparado com o BTO puro, seguindo o mesmo padrão qualitativo (embora com grandes diferenças quantitativas) já descrito na tabela (4.4) [10], mas para um comprimento de onda distinto.

É necessário enfatizar aqui que o coeficiente $\sigma_0(0)/I(0)$ é proporcional à densidade de centros fotoativos doadores, enquanto que l_s é inversamente proporcional a raiz quadrada da densidade de centros efetivos (que é uma espécie de média geométrica de doadores e aceptores). Deve também ser considerado que, na presença de competição elétron-buraco, a fotocondutividade medida com experimentos holográficos pode produzir diferentes resultados a aqueles obtidos usando técnicas convencionais (aplicando um campo elétrico a uma amostra uniformemente iluminada e medindo a corrente resultante): o holograma gravado, (amplitude de modulação de índice), é diminuído pela presença simultânea de elétrons e buracos, enquanto que para a condutividade medida convencionalmente, o sinal dos portadores de carga não faz diferença. Os parâmetros calculados por essas técnicas devem certamente refletir essas diferenças. Na técnica Foto-fem os resultados dependem por um lado, da rede de campo elétrico gravada e por outro lado, da condutividade dos portadores de carga livre. Resultados comparativos dos parâmetros: L_D , l_s , Φ , σ_0/I_0 , σ_d , medidos no cristal de BTO-011, obtidos por distintas técnicas desenvolvidas neste laboratório de óptica, são mostrados na tabela 5.2.

Nós vimos aqui que: a) todos os cristais de BTO puros tiveram melhor desempenho que os cristais dopados, b) que os cristais dopados BTO:Pb exibem melhor performance comparados aos dopados BTO:Ce, c) que nos cristais dopados BTO:Ga e BTVO-002 não se podem produzir hologramas detectáveis. Apesar de que nossos resultados não estão relacionados a algum modelo em particular, foi possível descrever adequadamente a absorção e fotocondutividade destes cristais em termos da teoria do Modelo de Dois Centros. Neste contexto nós concluímos que a concentração dos centros rasos foi sempre muito menor que a dos centros profundos, exibindo, os primeiros, uma seção transversal de absorção efetiva muito maior que a associada aos centros profundos.

Parte III

Medida De Vibrações Mecânicas

Capítulo 6

Foto-Fem e Speckle. Medida de Vibrações

6.1 Descrição do Experimento

6.1.1 Montagem Experimental

A montagem experimental é mostrada na figura (6.1). Um feixe laser ($\lambda = 532$ nm , 70 mW de potência) incide sobre uma pequena lâmina de vidro delgada e despolida, colada à parte central de um alto-falante (P). A luz difusa transmitida pela placa de vidro (padrão speckle) é coletada pela lente e focalizada na superfície do cristal fotoconductor. Contatos ôhmicos, distantes aproximadamente 1 mm e orientados perpendicularmente a direção de vibração da lâmina, são depositados na superfície do cristal exposta à luz. Um amplificador Lock-in (EG&G Princeton Applied Research. Modelo 5210) é usado para leitura do sinal de fotocorrente gerada quando o alto-falante vibra. O alto-falante é alimentado por um gerador de frequência na faixa de 1 Hz - 5 MHz. Um feixe laser auxiliar (não mostrado na figura (6.1)) de comprimento de onda $\lambda = 633$ nm incide sobre o perfil da lâmina de vidro, recoberta com pintura retrorefletiva, e é usada numa montagem auxiliar de interferometria Doppler, para ter uma medida de comparação das amplitudes de vibração do sistema autofalante-vidro.

6.1.2 As Amostras

A performance dos cristais de $Bi_{12}TiO_{20}$ puros (etiquetados BTO-11a ,BTO-11b), assim como também dos cristais de GaAs e CdTe (etiquetado B50-27), como detectores de vibração foi estudada. A figura (4.3) mostra uma representação esquemática do cristal de BTO e a tabela (6.1) lista as características das amostras utilizadas em nossos experimentos. Os cristais de BTO puros (BTO-11a e BTO-11b) foram preparados usando a técnica “top seed solution” [56, 55, 57], no Laboratório de Crescimento de Cristais do instituto de Física de São Carlos/USP. O cristal de GaAs provém da Lassel Tecnologia/USA e tem eletrodos de Ouro paralelos e separados 1.5mm depositados sobre a superfície de área 4×4 mm² e recoberta ademais por uma película antirrefletora. O cristal de CdTe (etiquetado B50-27), crescido no laboratório do ICMCB, Bordeaux, France, foi polido no Laboratório de Crescimento de

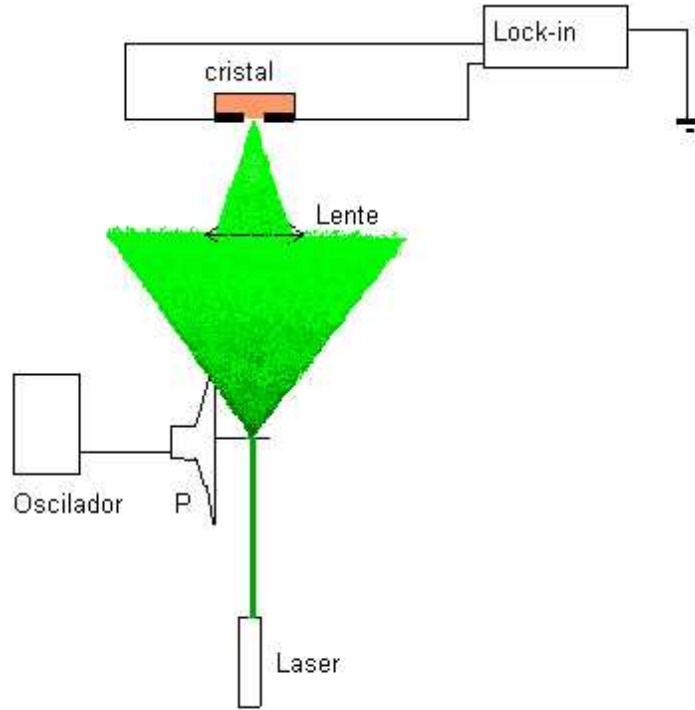


Figura 6.1: A figura mostra a montagem experimental usada para a medida de vibrações. Um feixe laser de comprimento de onda $\lambda = 532\text{nm}$, de 1-1.5 mm de diâmetro e 70 mW de potência, incide sobre uma lâmina delgada de vidro colada ao alto-falante, gerando o padrão speckle que é focalizado por uma lente sobre a superfície do cristal fotocondutor. O amplificador Lock-in mede o sinal de fotocorrente produzido quando o alto-falante oscila.

Tabela 6.1: Amostras			
	d	L	H
	(mm)		
BTO-11a	2.0	5.0	5.3
BTO-11b	4.1	5.0	5.2
GaAs	1	4.0	4.0
CdTe	2.38	6.45	6.88

Cristais do Instituto de Física de São Carlos/USP. Eletrodos de Ouro paralelos ao eixo [001] e distantes 1mm foram depositados em nosso laboratório, sobre um dos cristais de BTO analisados (etiquetado BTO-11a) e sobre o cristal de CdTe. O eixo [001] foi orientado perpendicularmente à direção de vibração em ambos cristais.

6.2 Resultados Experimentais

6.2.1 Caracterização do sinal

Estudo do sinal de fotocorrente obtido pela técnica de Foto-Fem-Speckle são mostrados nesta seção. A dependência do sinal com a magnificação da lente, com o diâmetro do speckle, com a amplitude de vibração, a frequência de vibração, a intensidade da luz e com campos externos constantes aplicados, é mostrada nas figuras seguintes.

A magnificação da lente (M) é calculada do quociente:

$$M = \frac{\text{distância : lente - cristal}}{\text{distância : difusor - lente}} \quad (6.1)$$

A equação (3.66) mostra que no caso de pequena amplitude de vibração, i^Ω deve ser proporcional à amplitude normalizada δ : $i^\Omega \propto \delta \Rightarrow i^\Omega \propto 1/z$, sendo z a distância da placa vibrante à lente. Esta relação foi comprovada experimentalmente (gráfico 6.2).

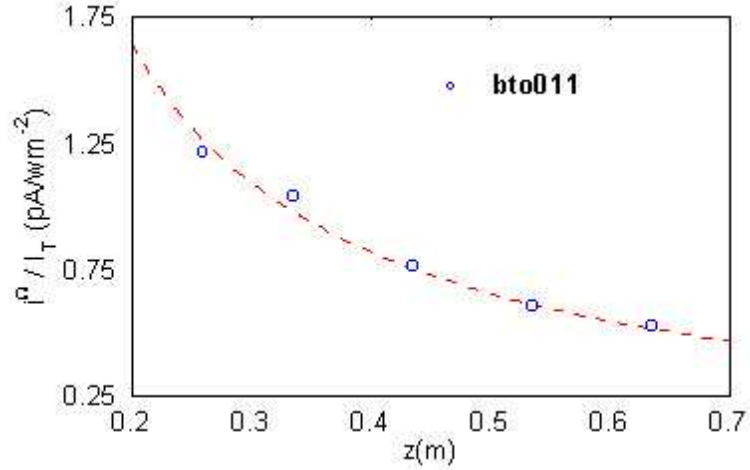


Figura 6.2: Dependência da fotocorrente normalizada i^Ω / I_T com a intensidade de luz transmitida pelo cristal (I_T), versus a distância difusor-lente (z). A curva tracejada vermelha é o melhor ajuste da forma c/z , onde $c = \text{cte}$. $\Omega = 3150\text{Hz}$, $M = 0.023/z$, $\lambda = 532\text{nm}$.

O diâmetro médio do speckle é calculado usando a fórmula da difração por uma abertura circular [67]:

$$D_s = \frac{1.22\lambda z_0}{D} \quad (6.2)$$

onde D é o diâmetro de abertura da lente, e z_0 é a distância lente - cristal.

A figura (6.3) mostra a fotocorrente i^Ω obtida no cristal de BTO11a versus a amplitude de vibração Δ , para dois diâmetros de abertura distintos (D), da lente, corroborando a dependência do sinal de fotocorrente com o diâmetro do speckle calculado pela equação (6.2).

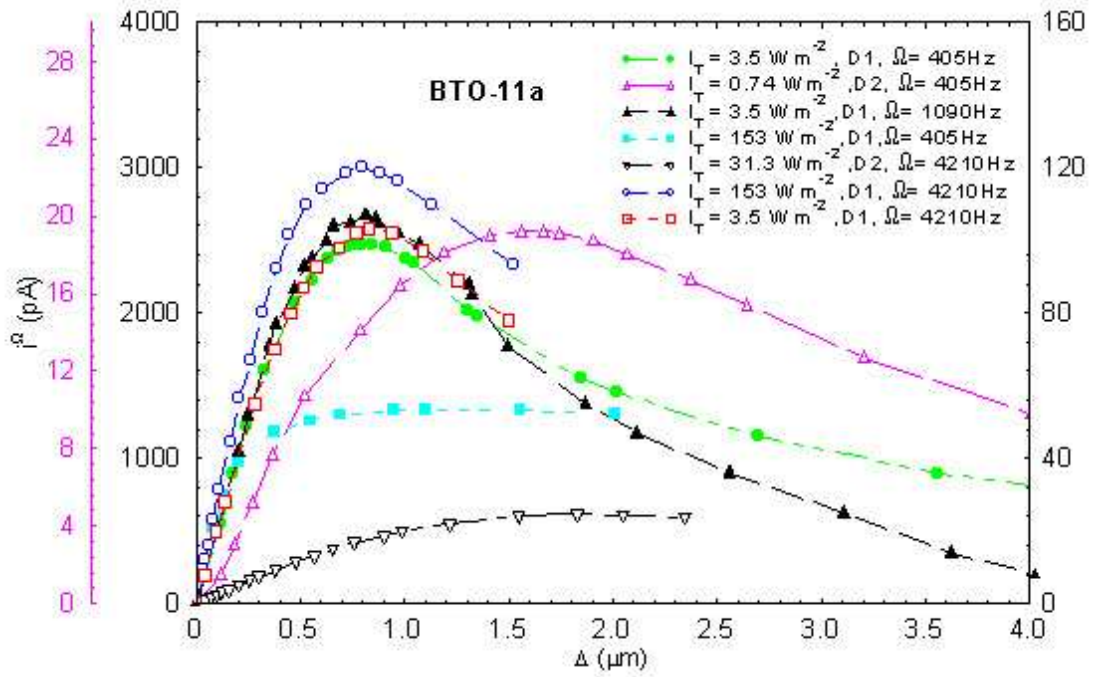


Figura 6.3: Fotocorrente i^Ω versus a amplitude de vibração Δ , medido no BTO11a, para dois diâmetros de abertura, da lente: $D1 = 28.8\text{mm}$ e $D2 = 14.4\text{mm}$. Escalas: marcas de cor verde: 0-160 pA, triângulo violeta: 0-28 pA, triângulo preto: 0-160 pA, quadrado celeste: 0-4000 pA, triângulo invertido preto: 0-4000 pA, círculo azul: 0-4000 pA, quadrado vermelho: 0-160 pA. $M = 1$, $\lambda = 532\text{nm}$.

O máximo na curva experimental do primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω), versus a amplitude de vibração (Δ) corresponde, de acordo com nosso modelo teórico (Eq.3.66), à amplitude normalizada $\delta = 0.76$, pelo que, conhecidos o tamanho médio do speckle (D_s), e a magnificação (M) da lente, nosso sinal fica autocalibrado:

$$\delta = v_d \frac{0.76}{v_d^{max}} = \frac{M\Delta}{D_s} \quad (6.3)$$

v_d é a voltagem de modulação aplicado ao alto-falante e v_d^{max} é a voltagem de modulação para a qual se alcança o sinal de fotocorrente (i^Ω) máximo.

O máximo do sinal na curva do cristal de BTO-11a no gráfico (6.4), corresponde a uma amplitude de vibração: $\Delta = 0.8 \mu\text{m}$ (medido usando velocimetria Doppler), sabendo-se que este valor se alcança para: $\delta = 0.76$ (Eq.(3.66)), o diâmetro de speckle calculado do quociente: $D_s = M \Delta / \delta$, foi de $D_s = 0.97 \mu\text{m}$.

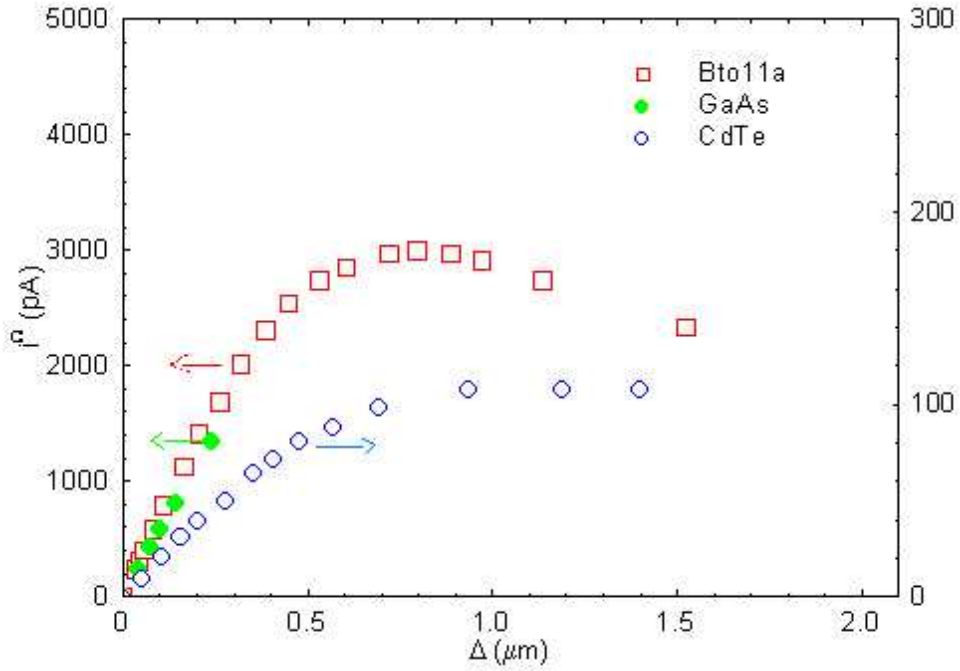


Figura 6.4: *Primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω) em função da amplitude de vibração do alto-falante. Os dados na região de pequena amplitude mostram um nível parecido de resposta para os cristais de BTO-11a e GaAs, enquanto a resposta do cristal de CdTe é aproximadamente vinte vezes menor para este comprimento de onda da luz. A amplitude de vibração do alto-falante foi medida usando-se velocimetria Doppler em forma simultânea a nossas medidas de fotocorrente. Foram usados $\Omega = 4210\text{Hz}$, $I_0 = 120\text{ mW/cm}^2$, $M = 97/107$, e $\lambda = 532\text{nm}$.*

O estudo da dependência da fotocorrente com a frequência (Ω), leva-nos a conhecer o limite inferior da frequência à qual o sinal independe dela (saturação em frequência), sendo que esta é a região de validade de nosso modelo teórico. A frequência de corte Ω_0 depende da intensidade da luz (I_0) e, na região de saturação em frequência, a equação (3.66) prevê dependência linear do primeiro harmônico com I_0 . Os resultados experimentais mostrados nos gráficos (6.5 e 6.6) corroboram essa dependência teórica do sinal com a intensidade da luz (Eq. 3.66) e mostram uma dependência do sinal com a frequência, no caso de pequena amplitude de vibração, dada pela equação:

$$i^\Omega = cI_0 \frac{\Omega/\Omega_0}{\sqrt{1 + (\frac{\Omega}{\Omega_0})^2}} = \frac{a\Omega}{\sqrt{1 + b(\frac{\Omega}{I_0})^2}} \quad (6.4)$$

Onde a,b,c são constantes

Esta dependência da fotocorrente com a frequência foi achada no caso de Foto-Fem interferométrica (sec.3.1.1) e também foi achada por Stepanov [35] no caso do padrão speckle com pequena amplitude de vibração. Na figura (6.6), resposta linear de i^Ω é achada para valores de I_0 tais que $w \gg w_0$, e saturação da fotocorrente i^Ω é achada para as frequências pequenas.

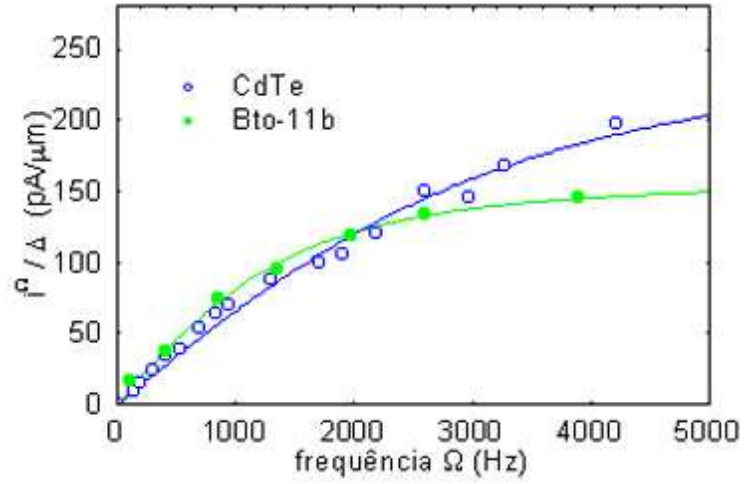


Figura 6.5: Fotocorrente i^Ω , normalizada com a amplitude de vibração (Δ), versus a frequência (Ω) de vibração, medidos nos cristais BTO-11b e CdTe. A Dependência em frequência é do tipo filtro passa alto (Eq.3.29). $\Omega_0 = 1675$ Hz foi o valor da frequência de corte do melhor ajuste para o BTO-11b e $\Omega_0 = 3749$ Hz foi o valor do melhor ajuste para o CdTe. Foram usados $I_0 = 74$ mW/cm², $M = 78/107$, $\delta \ll 1$, e $\lambda = 532$ nm nestas medições.

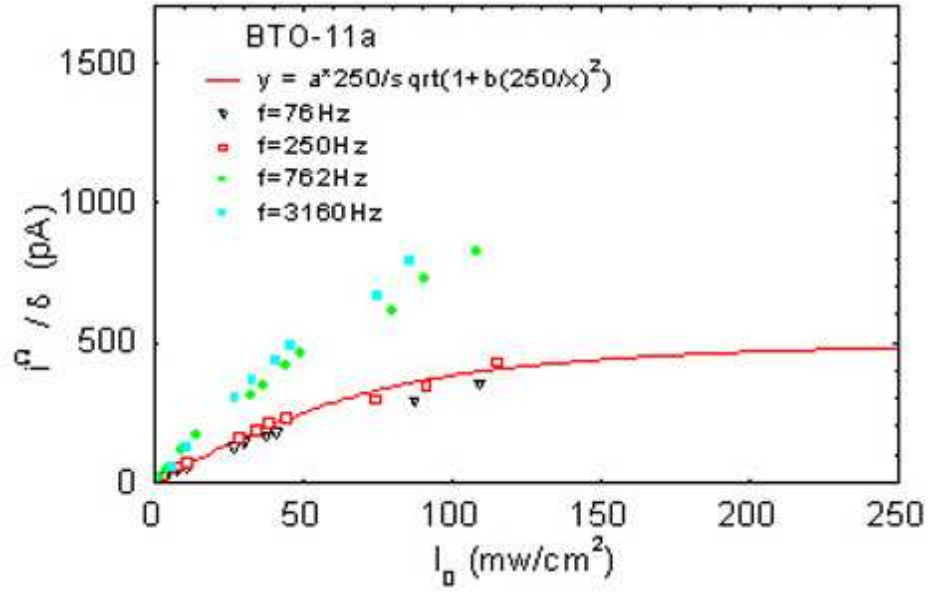


Figura 6.6: Fotocorrente i^Ω , no BTO-11a (com contatos laterais de pintura de Plata), normalizada com a amplitude de vibração (δ), versus a intensidade da luz incidente I_0 , para diferentes frequências (Ω) de vibração. $\lambda = 532$ nm, $\delta \ll 1$. A curva vermelha mostra o bom ajuste da equação (6.4) com nossos dados experimentais.

A figura (6.7) mostra o primeiro harmônico da fotocorrente gerada, por um padrão speckle vibrante, versus a irradiância incidente I_0 , nos cristais de BTO, GaAs, e CdTe. Os três cristais têm contatos de ouro superficiais distanciados 1 mm e orientados perpendicularmente à direção de vibração da lâmina difusora. O CdTe apresenta uma sinal muito menor que os cristais de GaAs e BTO que apresentam sinais de mesma ordem de magnitude. A figura mostra também o bom ajuste da equação (6.4) com os dados experimentais para os três cristais.

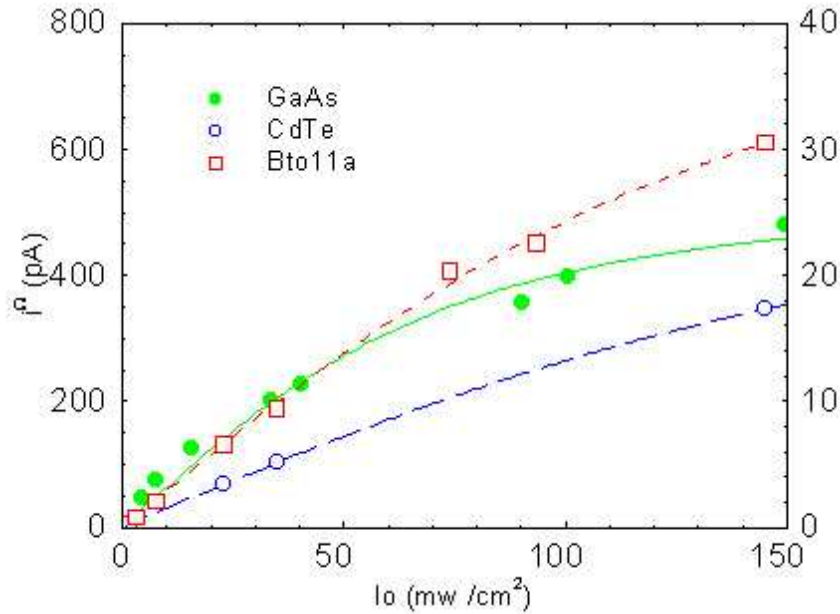


Figura 6.7: Primeiro harmônico da fotocorrente i^Ω medido nos cristais de BTO, GaAs (escala: 0-800 pA), CdTe (escala: 0-40 pA), como função da irradiância incidente I_0 . Os dados foram tomados usando-se: $\Omega = 4210$ Hz, $\Delta = 0.088$ μ m, $M = 90/107$ e $\lambda = 532$ nm.

As figuras (6.8 e 6.9) mostram a dependência experimental do primeiro harmônico da fotocorrente i^Ω com a amplitude de vibração normalizada δ , medidas para distintas irradiâncias incidentes, fixando a frequência (fig.6.8), e medidas para distintas frequências, a irradiância incidente fixa (fig.6.9). Nossos resultados experimentais mostram a existência de um máximo bem definido no sinal de fotocorrente (i^Ω), como se mostra na teoria desenvolvida, onde se prevê o valor de $\delta = 0.76$ para dito máximo. Nossos dados experimentais de fotocorrente versus a voltagem aplicada ao alto-falante, são transformados usando-se este fato, a uma curva de fotocorrente versus amplitude de vibração (Δ), usando-se a eq.(6.3).

A fig.(6.8) mostra, para o cristal de BTO, a menor fotocorrente i^Ω de 1 pA para $\delta = 0.0015$, medida com a irradiância incidente de 3.62 mW/cm², usando-se uma lente de distância focal igual a 22 mm, diâmetro de abertura igual a 33 mm e uma distância difusor-lente de 216 mm. O menor valor medido da amplitude de vibração do alto-falante, correspondendo a este pequeno sinal de fotocorrente, foi de $\Delta = 6$ nm. A maior amplitude de vibração normalizada (δ), mostrada na fig.(6.8) é igual a 5, a partir deste dado, a maior amplitude de vibração medida do alto-falante, é calculada em 21 μ m.

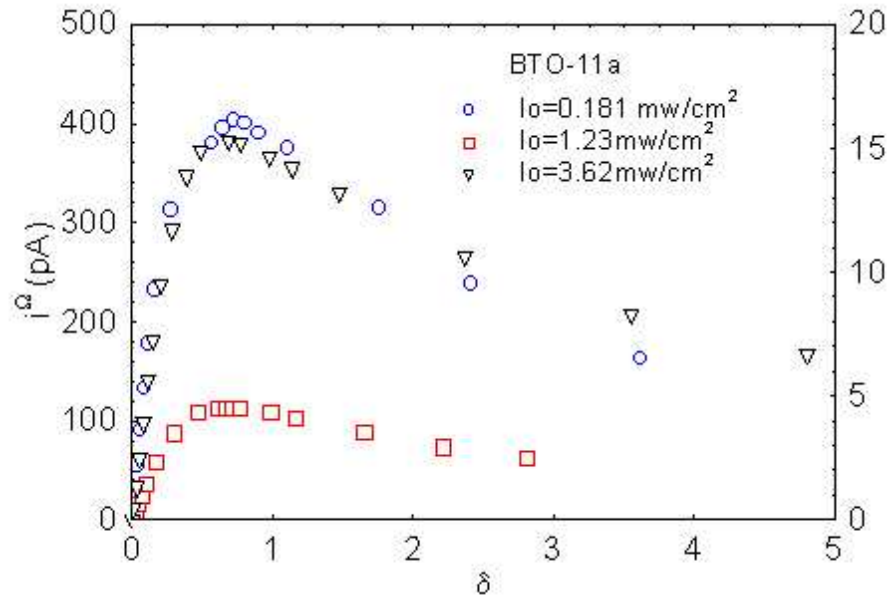


Figura 6.8: Fotocorrente i^Ω versus a amplitude de vibração normalizada δ , medido no BTO11a, para distintos valores da irradiância incidente I_0 . A escala: 0-20 pA corresponde só a menor irradiância. $\Omega = 1100\text{Hz}$, $\lambda = 532\text{nm}$, $M = 22/216$, $D_s = 0.43\text{ }\mu\text{m}$.

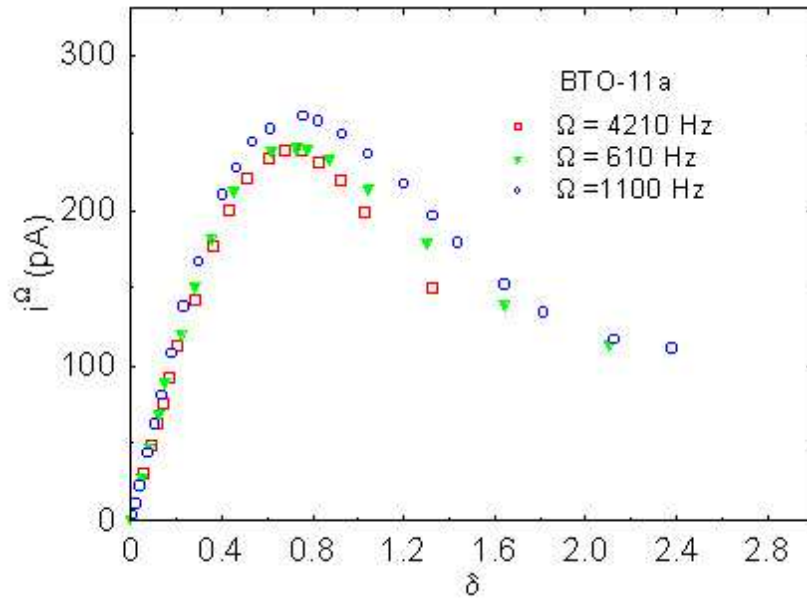


Figura 6.9: Fotocorrente i^Ω versus δ , no cristal BTO11a, para distintos valores da frequência de vibração (Ω). $I_0 = 5.64\text{ mW/cm}^2$, $\lambda = 532\text{nm}$, $M = 22/216$. $D_s = 0.43\text{ }\mu\text{m}$.

As figuras (6.10 e 6.11) mostram os dados experimentais de fotocorrente versus a amplitude normalizada δ , obtidas no cristal de BTO e as curvas teóricas obtidas da equação (3.66) que melhor se ajustam aos dados experimentais. No gráfico (6.11) se observa que a curva teórica (Eq.3.66) não segue bem a curva experimental para valores grandes da amplitude de vibração normalizada δ , quando a irradiância é alta.

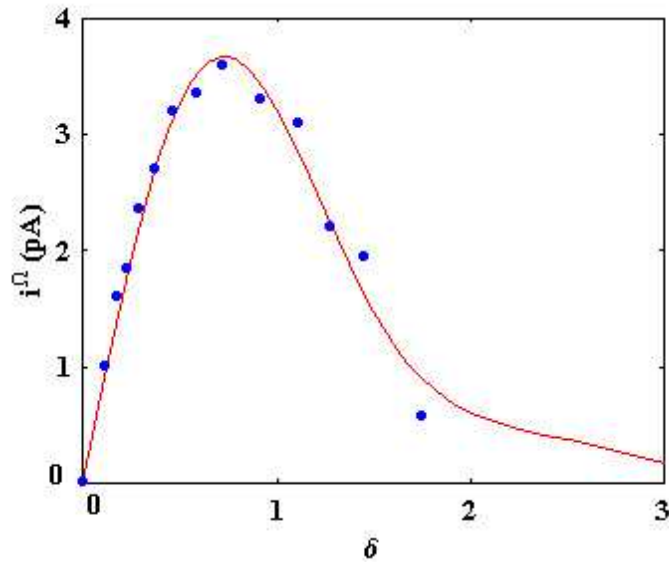


Figura 6.10: *Fotocorrente i^Ω versus a amplitude de vibração normalizada δ , medido no cristal BTO11b (com contactos laterais). A curva vermelha representa o melhor ajuste da Eq.(3.66) aos dados experimentais (pontos). $I_0 = 1.1 \text{ mW/cm}^2$, $\Omega = 1100 \text{ Hz}$, $\lambda = 532 \text{ nm}$.*

Os gráficos (6.12 - 6.15) mostram o estudo dos três primeiros harmônicos do sinal de fotocorrente em função da voltagem externa V_0 aplicada entre os eletrodos do cristal de GaAs. A fotocorrente i^0 foi medida usando o método de fotocorrente modulada. i^0 mostra dependência linear com V_0 aplicado. i^Ω , $i^{2\Omega}$, foram medidas com duas frequências de vibração distintas da lâmina difusora. As medidas feitas na frequência $\Omega = 9500 \text{ Hz}$ mostram bom acordo com as equações (3.64 e 3.65) que preveem dependência linear com a voltagem externa (V_0), de ambos os sinais i^Ω , $i^{2\Omega}$, e onde se mostra também dependência linear de i^Ω , e dependência quadrática de $i^{2\Omega}$ com a amplitude de modulação Δ no caso de pequena amplitude de vibração. As medidas feitas na frequência $\Omega = 1490 \text{ Hz}$ mostram uma dependência quadrática de i^Ω com a voltagem V_0 aplicada, indicando que as medidas neste caso não podem considerar-se de estado estacionário.

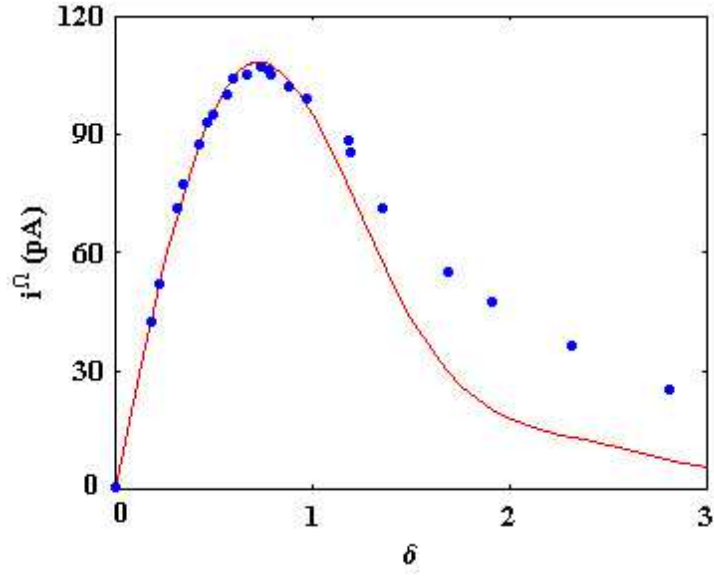


Figura 6.11: Fotocorrente i^Ω versus a amplitude de vibração normalizada δ , medido no cristal BTO11a. A curva vermelha representa o melhor ajuste da Eq.(3.66) aos dados experimentais (pontos). $I_0 = 3.3 \text{ mW/cm}^2$, $\lambda = 532\text{nm}$, $M = 0.73$, $\Omega = 1100 \text{ Hz}$, $D_s = 0.79 \text{ }\mu\text{m}$.

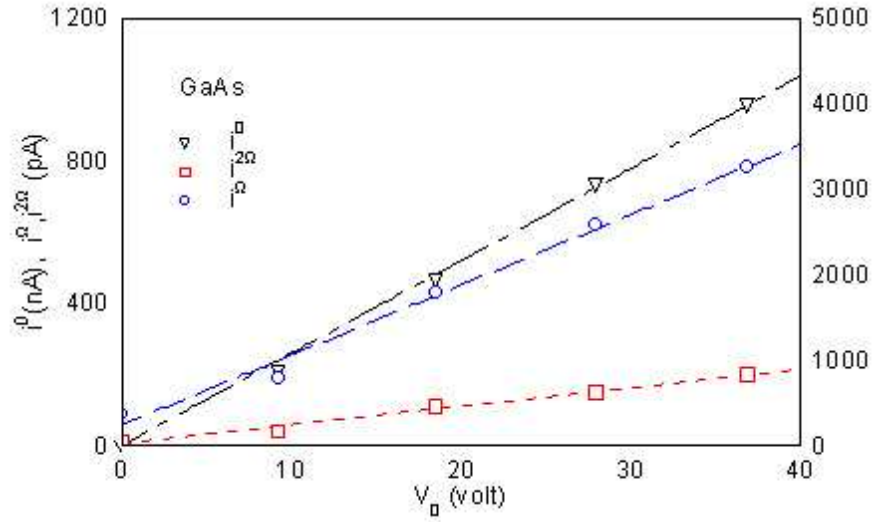


Figura 6.12: i^0 (na escala: 0-5000 pA), i^Ω e $i^{2\Omega}$ (na escala: 0-1200 pA), versus a voltagem externa aplicada V_0 medido em GaAs. $I_0 = 0.5 \text{ mW/cm}^2$, $\Omega = 9500\text{Hz}$, $\delta = 0.1$, $D_s = 0.46 \text{ }\mu\text{m}$, $M = 25/63$, $\lambda = 532\text{nm}$.

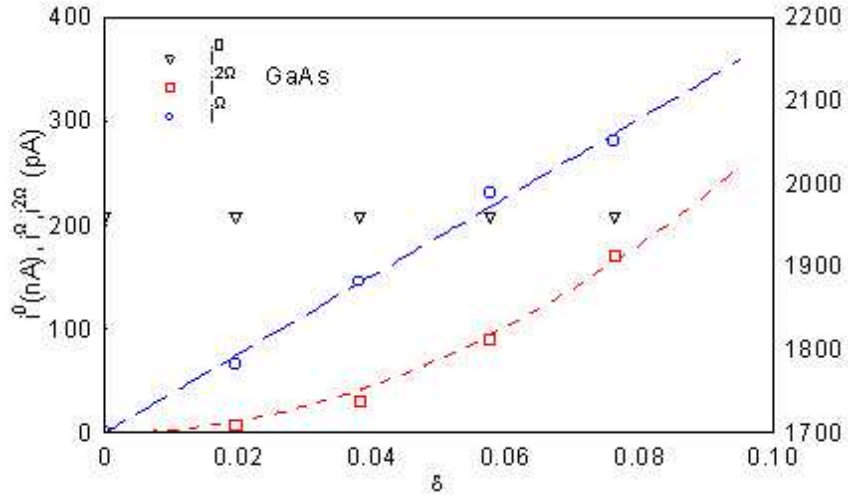


Figura 6.13: i^0 (escala: 0-2200 pA), i^Ω , e $i^{2\Omega}$ (escala: 0-500 pA), versus a amplitude de vibração normalizada δ , medido no cristal GaAs. $i^\Omega \propto \delta$, $i^{2\Omega} \propto \delta^2$. $V_0 = 18.55$ Volts. $\Omega = 9500\text{Hz}$, $I_0 = 0.47 \text{ mW/cm}^2$, $D_s = 0.46 \mu\text{m}$, $M = 25/63$, $\lambda = 532\text{nm}$.

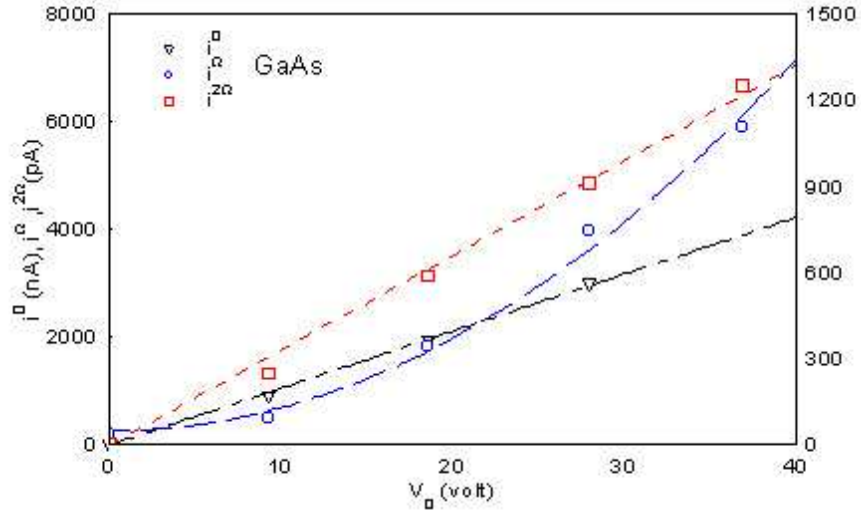


Figura 6.14: i^0 , i^Ω (escala: 0-8000 pA), $i^{2\Omega}$ (escala: 0-1500 pA), versus a voltagem externa aplicada V_0 medido em GaAs. $I_0 = 1.1 \text{ mW/cm}^2$, $\Omega = 1490\text{Hz}$, $\delta = 0.29$, $D_s = 0.46 \mu\text{m}$, $M = 22/60$, $\lambda = 532\text{nm}$.

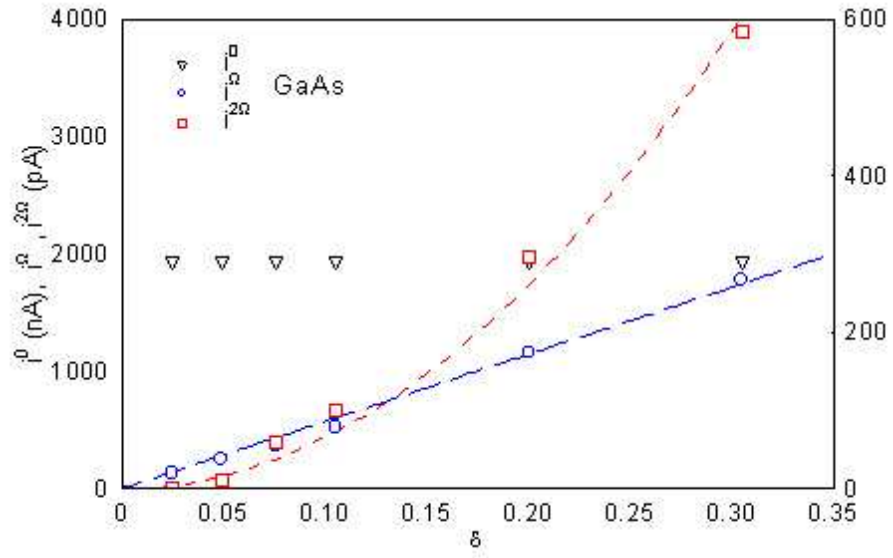


Figura 6.15: i^0 , i^Ω (escala: 0-4000 pA), $i^{2\Omega}$ (escala: 0-600 pA), versus à amplitude de vibração normalizada δ , medido no cristal GaAs. A voltagem externa (DC) aplicada foi $V_0 = 18.55$ Volts. $\Omega = 1490\text{Hz}$, $I_0 = 1.1\text{ mW/cm}^2$, $D_s = 0.46\text{ }\mu\text{m}$, $M = 22/60$, $\lambda = 532\text{nm}$.

6.2.2 Resposta espectral de um alto-falante comercial de 8Ω , 10Watts.

De acordo com a equação (3.66), em condições estacionárias ($\Omega\tau_{sc} \gg 1$) e para pequenas amplitudes de vibração ($\delta \ll 1$), a fotocorrente i^Ω é proporcional a δ , este fato pode ser usado para estudar a resposta espectral de objetos vibrantes.

A figura (6.16) mostra a resposta espectral de um alto-falante comercial de 8 ohms, e 10 Watts (etiquetado P1). As medidas foram feitas usando a técnica de velocimetria Doppler.

As figuras (6.17 e 6.18) mostram a resposta espectral do alto-falante P1, obtida usando a técnica de Foto-Fem-Speckle, medindo a fotocorrente gerada em condições de baixa irradiância e para pequenas amplitudes de vibração do padrão speckle, nos cristais de GaAs e BTO.

O alto-falante foi alimentado com um sinal senoidal de frequência e amplitude variável. A linearidade da resposta do alto-falante (amplitude de vibração) com a amplitude da voltagem de modulação foi comprovada pelas duas técnicas.

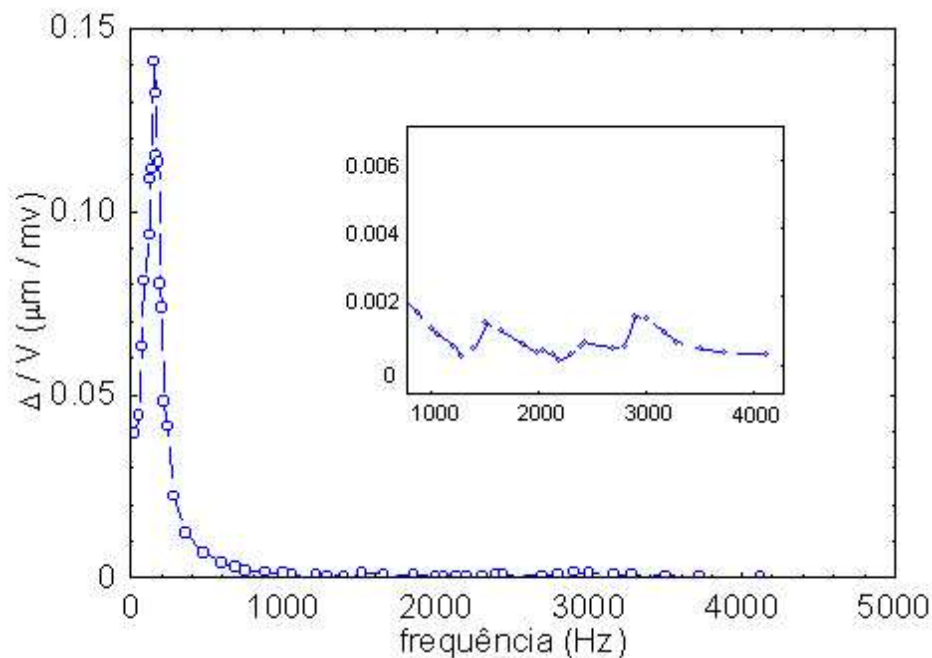


Figura 6.16: Amplitude da resposta espectral, normalizada com a tensão de modulação aplicada, de um alto-falante comercial de 10 Watts, etiquetado P1. As medidas foram feitas usando velocimetria Doppler. Luz laser de comprimento de onda $\lambda = 633\text{nm}$ e de 10 mW de potência foi usado.

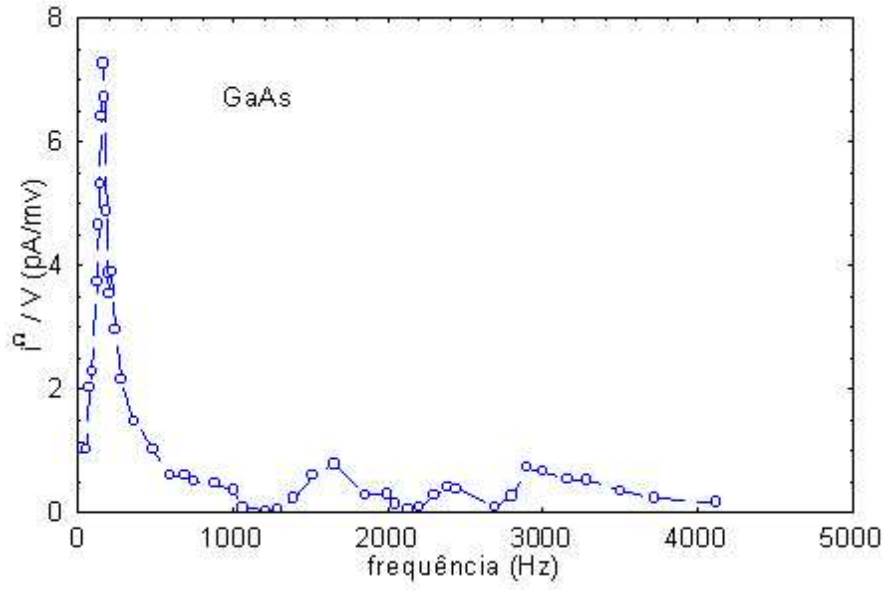


Figura 6.17: *Resposta espectral do alto-falante etiquetado P1. O primeiro harmônico da fotocorrente i^Ω gerado no GaAs, e normalizado com a amplitude de vibração é mostrado. A resistencia medida no cristal de GaAs, para a irradiância usada, foi de: $R_{GaAs} = 1.3 \text{ M } \Omega$. $D_s = 0.4 \text{ } \mu\text{m}$. $\delta \ll 1$, $\lambda = 532 \text{ nm}$.*

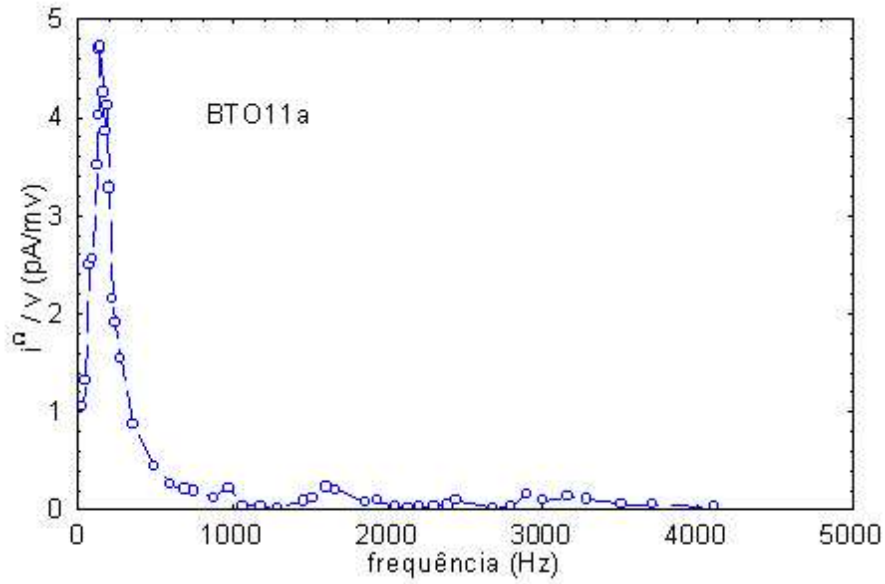


Figura 6.18: *Resposta espectral do alto-falante etiquetado P1. O primeiro harmônico da fotocorrente i^Ω gerado no BTO, e normalizado com a amplitude de vibração é mostrado. $I_0 = 0.7 \text{ mW/cm}^2$, $D_s = 0.4 \text{ } \mu\text{m}$, $\delta \ll 1$, $\lambda = 532 \text{ nm}$.*

6.3 Discussão dos resultados

Os estudos experimentais da dependência do primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω) gerada em cristais de BTO puro, com a intensidade da luz incidente, amplitude de vibração, diâmetro do speckle, magnificação da lente e frequência de vibração mostraram que o modelo teórico desenvolvido na seção (3.2), para o caso do padrão speckle vibrante em condições estacionárias ($w\tau_{sc} \gg 1$), se ajusta bem aos resultados obtidos.

A presença de um máximo na curva i^Ω versus δ permite a autocalibração do sistema.

Os resultados dos testes feitos nos cristais de BTO, GaAs, CdTe (Fig.6.4) permitiram concluir que os cristais de BTO e GaAs apresentam similares amplitudes de resposta (i^Ω) no comprimento de onda $\lambda = 532$ nm, onde uma sensibilidade de 6.7 pA/nm para uma irradiância de 120 mW/cm² foi medida. Enquanto que o CdTe apresenta uma resposta aproximadamente 20 vezes menor para as mesmas condições de trabalho.

A fotocorrente é originada fundamentalmente na camada próxima à superfície do cristal. O sinal vai crescendo à medida que nós focalizamos a luz sobre a superfície do cristal. Cristais de BTO de 2 mm e de 4 mm de espessura mostraram resposta similar de fotocorrente nas mesmas condições de operação. Eletrodos de Ouro, paralelos e separados 1mm foram depositados na superfície dos cristais de BTO e CdTe, aumentando sua resposta em aproximadamente 20 vezes no caso do BTO.

O estudo da dependência da fotocorrente (i^Ω) com a frequência de vibração (fig.6.5), e a irradiância (fig.6.7), feito nos cristais de GaAs e CdTe, mostraram que suas respostas em frequência são similares ao tipo monopolar (caso do BTO).

O estudo da dependência dos harmônicos ($i^0, i^\Omega, i^{2\Omega}$) versus a voltagem externa aplicada, e da amplitude de vibração normalizada δ , foi feito no cristal de GaAs. Os resultados mostraram bom acordo com o modelo teórico feito para cristais monopolares, (Eq.3.63 a Eq.3.65). Uma dependência linear de i^0, i^Ω , e $i^{2\Omega}$ com o campo externo aplicado foi encontrado, assim como a dependência linear de i^Ω com δ , e a dependência de $i^{2\Omega}$ com δ^2 , para o caso estacionário, quando $\delta \ll 1$.

A aplicação da voltagem (Dc) externa aumenta a sensibilidade do sistema, podendo-se medir amplitudes de vibração sub-nanométricas como se deduz dos dados mostrados na figura (6.13). Entretanto o quociente sinal/ruído aumenta conforme se incrementa o campo externo e a frequência de vibração.

O sinal de fotocorrente medido i^Ω (no caso estacionário e para pequenas amplitudes de vibração), é proporcional a irradiância incidente (I_0), ao campo de difusão (E_D) e a amplitude de vibração normalizada (δ), como se observa na eq.(3.66), do qual se deduz que a mínima amplitude medível é obtida usando-se o menor comprimento de onda do feixe laser, a menor distância difusor-lente (a maior irradiância incidente no cristal), e uma lente com o maior diâmetro de abertura e a menor distância focal. A maior amplitude de vibração medível se obtêm para a máxima amplitude normalizada δ e usando-se o maior comprimento de onda do feixe laser, a maior distância difusor-lente e uma lente de pequeno diâmetro de abertura.

Parte IV

Conclusões e Perspectivas

Neste trabalho mostramos o interesse de se aplicar técnicas ópticas não-holográficas aliadas às medidas elétricas clássicas, para estudar materiais fotorrefrativos, apresentando não-linearidades na absorção e na fotocondutividade, com o auxílio do modelo de transporte de bandas. O estudo realizado sobre cristais de BTO puros e dopados mostra a riqueza das informações que são possíveis de se obter com técnicas muito simples, desde que se disponha de uma ferramenta teórica adequada para a análise dos resultados. Acreditamos haver ainda muito espaço para ser percorrido nesta linha, tanto em termos de novos materiais a serem estudados como em termos de aperfeiçoamentos importantes na técnica em questão.

As técnicas ópticas holográficas neste trabalho resumiram-se à, relativamente nova, foto-fem interferométrica, desenvolvida por Stepanov e colaboradores. Nós ampliamos o domínio de aplicação desta técnica para ser usada com grandes amplitudes de vibração na fase do padrão de franjas de luz sobre a amostra. Isso permitiu não somente um aumento considerável nos sinais detectados como também a auto-calibração do experimento.

Levando-se em conta os efeitos de absorção e o modelo matemático para grandes oscilações, foi possível, pela primeira vez, mostrar a possibilidade de se usar esta técnica como fonte poderosa de caracterização quantitativa, o que foi feito a título de exemplo, com cristais de BTO puros. Também nesta linha de pesquisa há muitas possibilidades, tanto no que se refere ao estudo dos materiais, como ao aperfeiçoamento da técnica.

Os resultados mais interessantes e com melhores perspectivas, porém, são os que foram desenvolvidos sobre foto-fem com padrão do speckle. Esta técnica foi também idealizada por Stepanov e colaboradores mas nunca foi utilizada, por não ter sido suficientemente desenvolvida do ponto de vista prático. O trabalho por nós realizado, mostra o interesse desta técnica tanto para a caracterização de materiais como, e sobretudo, para a medida de vibrações mecânicas transversais. Os resultados mostraram que é possível desenvolver um instrumento de interesse prático para medida de vibrações baseado neste princípio. Para se obter um instrumento operacional, porém, é necessário ainda pesquisar sobre o material mais adequado, a montagem mais eficiente e um modelo matemático mais abrangente. Este é o desafio mais interessante indicado neste trabalho.

Parte V

Apêndices

Apêndice A

Materiais Fotorrefrativos. Propriedades Ópticas e Eletro-ópticas.

Tabela A.1: Propriedades Ópticas e Eletro-ópticas de alguns Materiais Fotorrefrativos.

Materiais	<i>simetria</i>	$E_g[eV]$	$r_{ij}[\mu m]$	$n_i[\mu m]$	ε	$n_i^3 r_{ij} / \varepsilon_j [\frac{pm}{V}]$
III-V Semiconductores						
InP	$\bar{4}3m$	1.35	$r_{41} = 1.45$ (1.06)	3.29 (1.06)	12.6	4.1
GaAs	$\bar{4}3m$	1.42	$r_{41} = 1.2$ (1.08)	3.5 (1.02)	13.2	3.3
GaP	$\bar{4}3m$	2.26	$r_{41} = 1.07$ (0.56)	3.45 (0.54)	12	3.7
II-VI Semiconductores						
CdTe	$\bar{4}3m$	1.56	$r_4 = 6.8$ (3.39)	2.82 (1.3)	9.4	16
ZnS	$\bar{4}3m$	3.68	$r_{41} = 1.2$ (0.4)	2.47 (0.45)	16	1.1
ZnSe	$\bar{4}3m$	2.68	$r_{41} = 2.0$ (0.55)	2.66 (0.55)	9.1	4.1
ZnTe	$\bar{4}3m$	2.27	$r_{41} = 4.45$ (0.59)	3.1 (0.57)	10.1	13
CdSe	6mm	1.70	$r_{33} = 4.3$ (3.39)	2.54 (1.15)	10.65	6.6
CdS	6mm	2.47	$r_{33} = 4.0$ (0.59)	2.48 (0.63)	10.33	5.9
Oxidos						
$LiNbO_3$	3m	3.2	$r_{33} = 32.2$ (0.63)	2.27 (0.70)	32	11
$Bi_{12}SiO_{20}$	23		$r_{41} = 5$ (0.63)	2.54	47	1.8
$BaTiO_3$	4mm	~ 3	$r_{51} = 1640$ (0.55)	2.40 (0.63)	3600	4.9
$BaTiO_3$	4mm	~ 3	$r_{33} = 28$ (0.55)	2.40 (0.63)	135	2.9
$KNbO_3$	4mm	3.2	$r_{33} = 64$	2.23	55	14
$Sr_{0.75}Ba_{0.25}Nb_2O_6$	4mm	3.2	$r_{33} = 1340$ (0.63)	2.30 (0.63)	16300	4.8

Tabela 8.1 da ref.[68]

A sensitividade máxima ($n_i^3 r_{ij} / \varepsilon_j$) é figura de mérito destes materiais.

Apêndice B

Programas de ajuste de dados

Neste apêndice apresentamos as versões dos programas, (feitos usando-se MATHEMATICA), que foram utilizados para efetuar os ajustes de dados apresentados nesta tese.

Irradiância transmitida I^t versus irradiância incidente I_0 . Programa de ajuste teórico dos dados experimentais.

```
SetDirectory["/users/lmos/tesis"]
bto10alfa = ReadList["bto10alfa2.dat", Number, RecordLists → True];

cb = 0.75;
alfacero = 662;
ab = 198;
d = 0.00810;

mos2[x, z] := Log[((alfacero + ab)*1.25*z + alfacero*cb)/((alfacero + ab)*0.8*x + alfacero*cb)];
fimp[x, z] := (alfacero*d + Log[z/(0.64*x)])*((alfacero + ab)/ab);

Needs["Graphics`ImplicitPlot`"]; teoplot1 = ImplicitPlot[fimp[x, z]
== mos2[x, z], {x, 0.1, 120}, {z, 0.00001, 0.12},
PlotPoints → 100, AspectRatio → 1,
PlotStyle → {RGBColor[0, 1, 0]}];
explot = ListPlot[bto10alfa, PlotJoined → False,
PlotStyle → {Thickness[0.01], PointSize[0.014]}];

Show[{explot, teoplot1}, AspectRatio → 0.8, PlotRange → {{0, 120}, {0, 0.12}},
Axes → False, Frame → True, FrameLabel → {"Io ( $w/m^2$ )", "It ( $w/m^2$ )"},
FrameTicks → {{0, 30, 60, 90, 120}, {0, 0.04, 0.08, 0.12}, {}, {}},
TextStyle → {FontWeight → "Bold",
FontSize → 14, FontFamily → "Times"}];
```

Primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω) versus a amplitude de modulação $K\Delta$.
Programa de ajuste teórico dos dados experimentais.

```
SetDirectory["c:/users/lmos/bto-011"];
dados = ReadList["mvan8.dat", Number, RecordLists → True]; explot3 = ListPlot[dados,
PlotJoined → False,
PlotStyle → Thickness[0.01], PointSize[0.014], RGBColor[0, 0, 1]];
```

```
 $\theta = \pi * 25/180;$ 
 $I_0 = 396 * \cos[\theta] * (1 - 0.2) * 1.16;$ 
 $\sigma_0 = \sigma_{pho} * I_0;$ 
 $\tau_{mo} = e_0 * ee / \sigma_0;$ 
 $\Lambda = \lambda / (2 * \sin[\theta]);$ 
 $k = 2 * \pi / \Lambda;$ 
 $kld = (k * LD)^2;$ 
 $kls = (k * ls)^2;$ 
 $mo = 0.90;$ 
 $L = 6.2 * (10^{-3});$ 
 $d = 2.05 * (10^{-3});$ 
 $h = 7 * (10^{-3});$ 
 $\lambda = 0.5145 * (10^{-6});$ 
 $x = 49.7;$ 
 $\alpha = 1165;$ 
 $e_0 = 8.85 * 10^{-12};$ 
 $ee = 47;$ 
 $T = 273 + 22;$ 
 $q = 1.6 * 10^{-19};$ 
 $kB = 1.38 * 10^{-23};$ 
```

```
Ed = k * kB * T/q;
 $\tau_{sco} = \tau_{mo} * (1 + kld) / (1 + kls);$ 
 $F[\Delta] = (mo^2) * \text{BesselJ}[1, \Delta] * Ed * ee * e_0 * h * 2 * \pi * x * 10^{10} / (1 + kls)^2;$ 
 $G = 2 * \pi * x * \tau_{sco};$ 
 $H = \text{BesselJ}[0, \Delta] + 3 \text{BesselJ}[2, \Delta];$ 
```

$$\begin{aligned}
prhar = & F[\Delta] \left((G^2 \left(-\frac{1}{3G\alpha} (-H \text{ArcTan}[G] + 2H \text{ArcTan}[2G] + 4\text{ArcTan}[G] \text{BesselJ}[0, \Delta] \right. \right. \\
& - 2\text{ArcTan}[2G] \text{BesselJ}[0, \Delta] + \frac{1}{3G\alpha} (-H \text{ArcTan}[e^{d\alpha}G] + 2H \text{ArcTan}[2e^{d\alpha}G] \\
& + 4\text{ArcTan}[e^{d\alpha}G] \text{BesselJ}[0, \Delta] - 2\text{ArcTan}[2e^{d\alpha}G] \text{BesselJ}[0, \Delta])^2 \\
& + \frac{1}{36\alpha^2} ((6Hd\alpha + H \text{Log}[1 + G^2] + 2\text{BesselJ}[0, \Delta] \text{Log}[1 + G^2] + 2H \text{Log}[1 + 4G^2] \\
& - 2\text{BesselJ}[0, \Delta] \text{Log}[1 + 4G^2] - H \text{Log}[1 + e^{2d\alpha}G^2] - 2\text{BesselJ}[0, \Delta] \text{Log}[1 + e^{2d\alpha}G^2]
\end{aligned}$$

$$- 2H \text{Log}[1 + 4e^{2d\alpha}G^2] + 2BesselJ[0, \Delta] \text{Log}[1 + 4e^{2d\alpha}G^2])^2)))^{1/2}$$

```

Remove[NonlinearFit]
Needs["Statistics`NonlinearFit`"]
NonlinearRegress[dados, prhar, Δ], {{LD, 0.15*(10-6)}, {ls, 0.045*(10-6)}, {σpho, 1.2 * (10-10)}}]
NonlinearFit[dados, prhar, Δ], {{LD, 0.15 * (10-6)}, {ls, 0.06 * (10-6)}, {σpho, 1.2 *
(10-10)}}]
mplot = Plot[%, {Δ, 0, 2.35}]

```

```

Show[{explot3, mplot}, Frame → True, Axes → False, TextStyle → {FontWeight → "Bold",
FontSize → 12}, FrameTicks → {{0, 2.35}, {0, 50}, {}, {}}]

```

Primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω) versus a frequência de modulação Ω .
Programa de ajuste teórico dos dados experimentais.

```
SetDirectory["c:/users/lmos/bto-011"];
dados = ReadList["mfem2.dat", Number, RecordLists → True];
explot3 = ListPlot[dados,
PlotJoined → False,
PlotStyle → Thickness[0.01], PointSize[0.014], RGBColor[0, 0, 1]];
```

```
 $\theta = \pi * 25/180;$ 
 $I_0 = 396 * \cos[\theta] * (1 - 0.2) * 1.16;$ 
 $\Lambda = \lambda / (2 * \sin[\theta]);$ 
 $k = 2 * \pi / \Lambda;$ 
 $mo = 0.90;$ 
 $L = 6.2 * (10^{-3});$ 
 $d = 2.05 * (10^{-3});$ 
 $h = 7 * (10^{-3});$ 
 $\lambda = 0.5145 * (10^{-6});$ 
 $\Lambda = 1.1;$ 
 $\alpha = 1292;$ 
 $eo = 8.85 * 10^{-12};$ 
 $ee = 47;$ 
 $T = 273 + 22;$ 
 $q = 1.6 * 10^{-19};$ 
 $kB = 1.38 * 10^{-23};$ 
```

```
Ed = k * kB * T/q;
F[x] = A*(mo2) * BesselJ[1, Δ] * Ed * h * 2 * π * x * 109;
G = 2 * π * x * τsco;
H = BesselJ[0, Δ] + 3 BesselJ[2, Δ];
```

$$\begin{aligned}
prhar = & F[x] \left(\left(G^2 \left(-\frac{1}{3G\alpha} \left(-H \operatorname{ArcTan}[G] + 2H \operatorname{ArcTan}[2G] + 4 \operatorname{ArcTan}[G] \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \right. \right. \right. \right. \\
& - 2 \operatorname{ArcTan}[2G] \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] + \frac{1}{3G\alpha} \left(-H \operatorname{ArcTan}[e^{d\alpha}G] + 2H \operatorname{ArcTan}[2e^{d\alpha}G] \right. \\
& + 4 \operatorname{ArcTan}[e^{d\alpha}G] \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] - 2 \operatorname{ArcTan}[2e^{d\alpha}G] \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \left. \right) \left. \right)^2 \\
& + \frac{1}{36\alpha^2} \left((6Hd\alpha + H \operatorname{Log}[1 + G^2] + 2 \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \operatorname{Log}[1 + G^2] + 2H \operatorname{Log}[1 + 4G^2] \right. \\
& - 2 \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \operatorname{Log}[1 + 4G^2] - H \operatorname{Log}[1 + e^{2d\alpha}G^2] - 2 \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \operatorname{Log}[1 + e^{2d\alpha}G^2] \\
& \left. \left. - 2H \operatorname{Log}[1 + 4e^{2d\alpha}G^2] + 2 \operatorname{BesselJ}[0, \Delta] \operatorname{Log}[1 + 4e^{2d\alpha}G^2] \right)^2 \right) \right)^{1/2}
\end{aligned}$$

```
Remove[NonlinearFit]
Needs["Statistics`NonlinearFit`"]
```

```

NonlinearRegress[dados, prhar, x], {{A, 1*(10-12)}, {τsco, 0.0010}}]
NonlinearFit[dados, prhar, x], {{A, 1*(10-12)}, {τsco, 0.0010}}]
mplot1 = Plot[%, {x, 0, 980}]

Show[{explot3, mplot1}, Frame → True, Axes → False, TextStyle → {FontWeight → "Bold",
FontSize → 12}, FrameTicks → {{0, 980}, {0, 50}, {}, {}}]

```

Primeiro harmônico da fotocorrente (i^Ω) versus a amplitude normalizada δ de vibração . Programa de ajuste teórico dos dados experimentais.

```

Clear[f, f1, f2, a, d, x];
r = 0.11; k = 7.1;
f1[a_, d_] := (1/(2Pi)) * NIntegrate[Exp[-(2 * a * d * sin[x] - (d^2/2)* cos[2 * x])], {x, -Pi, Pi}]
f2[a_, d_] := (1/(2Pi)) * NIntegrate[sin[x] Exp[-(2 * a * d * sin[x] - (d^2/2)* cos[2 * x])], {x, -Pi, Pi}]
f[d_] := -k * Exp[-d^2] * NIntegrate[{Exp[-2a^2] * (-2 * a * d + (a/2 - a^3) * d^3 + a * d^5/8) * (a * f1[a, d] + d * f2[a, d]) / (Exp[-(a^2 + d^2/2)] * f1[a, d] + r)}, {a, -50, 51}]
plot1 = Plot[f[d], d, 0, 3, PlotStyle -> RGBColor[1, 0, 0]]

SetDirectory["c:/users/lmos/bto-011"];
dados = ReadList["spek1.dat", Number, RecordLists -> True]; explot3 = ListPlot[dados,
PlotJoined -> False,
PlotStyle -> Thickness[0.01], PointSize[0.014], RGBColor[0, 0, 1]];
Show[{explot3, plot1}, AspectRatio -> 0.8, PlotRange -> {{0, 3}, {0, 4}},
Axes -> False, Frame -> True, FrameLabel -> {" $i^\Omega$  (pA)", " $\delta$ "},
FrameTicks -> {{0, 1, 2, 3}, {0, 1, 2, 3, 4}, {}, {}},
TextStyle -> {FontWeight -> "Bold",
FontSize -> 14, FontFamily -> "Times"}];

```

Parte VI

Referências Bibliográficas

Bibliografia

- [1] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, and K. Nassan. “Optically Induced Refractive Inhomogeneities in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$ ”. *Appl. Phys. Lett.*, 9:72, 1996.
- [2] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser. “Holographic Storage in Lithium Niobate”. *Appl. Phys. Lett.*, 13:223, 1968.
- [3] J. J. Amodei, W. Phillips, and D. L. Staebler. *IEEE J. QE*, 7:321, 1971.
- [4] H. Kogelnik. “Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings”. *Bell Syst. Tech. J.*, 48:2909–2947, 1969.
- [5] J. P. Huignard, J. P. Herriau, and T. Valentin. “Time average holographic interferometry with photoconductive electrooptic $Bi_{12}SiO_{20}$ crystals”. *Appl. Opt.*, 16:2796–2798, 1977.
- [6] S. I. Stepanov, V. V. Kulikov, and M. P. Petrov. “Running” holograms in photorefractive $Bi_{12}TiO_{20}$ crystals. *Opt. Commun.*, 44:19–23, 1982.
- [7] P. Günter. “*Photorefractive Effects and Materials — Topics in Applied Physics: Photorefractive Materials and Their Applications I and II*, ed. by P. Günter, J.-P. Huignard”. Volume 61 and 62, Springer-Verlag (Berlin, Heidelberg), 1988.
- [8] and A. Grunnet-Jepsen L.Solymar, D.J.Webb. “*The Physics and Applications of Photorefractive Materials*”. Clarendon,Oxford, 1996.
- [9] S.I.Stepanov. “*Photo-electromotive-force effect in semiconductors,*” in *Semiconductor Devices (H.S.Nalwa, ed.)*, **2** of Handbook of Advanced Electronic and Photonic Materials and Devices, *ch. 6*”, volume 2. H.S.Nalwa, ed., 2001.
- [10] L. Mosquera, I de Oliveira, J. Frejlich, A.C.Hernandes, S. Lanfredi, and J.F.Carvalho. “Dark conductivity, photoconductivity and light-induced absorption in photorefractive sillenite crystals”. *J. Appl. Phys.*, 90:2635–2641, 2001.
- [11] S.I.Stepanov and G.S.Trofimov. “Transient emf in crystals having ambipolar photoconductivity”. *Sov.Phys.Solid State*, 31:49–50, 1989.
- [12] L. Mosquera and J. Frejlich. “Enhanced photocurrent in photo-emf experiments in pure and doped absorbing photorefractive crystals”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19:2904–2910, 2002.

- [13] Marcelo C. Barbosa, Luis A. L. Mosquera, and Jaime Frejlich. “Speed and diffraction efficiency in feedback controlled running holograms for photorefractive crystals characterization”. *Applied Physics B*, 72:717–721, 2001.
- [14] K. Buse. “Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods”. *Appl. Phys. B*, 64:273–291, 1997.
- [15] G.F. Calvo, B. Sturman, F. Agulló-López, and M. Carrascosa. “Singular Behavior of Light-Induced Space Charge in Photorefractive Media under an ac Field”. *Physical review Letters*, 84:3839–3842, 1999.
- [16] H. Veenhuis, T. Börger, K. Peithmann, M. Flaspöler, K. Buse, R. Pankrath, H. Hesse, and E. Krätzig. “Light-induced charge-transport properties of photorefractive barium-calcium-titanate crystals doped with rhodium”. *Appl. Phys. B*, 70:797–801, 2000.
- [17] F. S. Chen. “Optically Induced Change of Refractive Index $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$ ”. *J. Appl. Phys.*, 40:3389, 1969.
- [18] G. E. Peterson, A. M. Glass, and T. J. Negran. “Control of the susceptibility of lithium niobate to laser-induced refractive index change”. *Appl. Phys. Lett.*, 19:130, 1971.
- [19] J. J. Amodei. *RCA Rev.*, 32:185, 1971.
- [20] N.V.Kukhtarev. “Kinetics of hologram recording and erasure in electrooptic crystals”. *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 2:438–440, 1976.
- [21] E. Krätzig. *Ferroelectrics.*, 21:635, 1978.
- [22] E. Krätzig and R. Orlowski. *Ferroelectrics*, 27:241, 1980.
- [23] J. P. Huignard and A. Marrakchi. “Coherent Signal Beam Amplification in Two-Wave Mixing Experiments with Photorefractive $Bi_{12}SiO_{20}$ Crystals”. *Opt. Comm.*, 38:249–254, 1981.
- [24] S. Ducharme and J. Feinberg. “Speed of the Photorefractive Effect in a $BaTiO_3$ single crystal”. *J. Appl. Phys.*, 56:839, 1984.
- [25] Ph. Refregier, L.Solymar, H.Rajbenbach, and J.P.Huignard. “Two-beam coupling in photorefractive $Bi_{12}SiO_{20}$ crystals with moving grating: Theory and experiments”. *J.Opt.Soc.Am. B*, 58:45–57, 1985.
- [26] M. B. Klein and R. N. Schwartz. “Photorefractive Effect in $BaTiO_3$: Microscopic Origins”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3:293, 1986.
- [27] P. A. M. dos Santos, P. M. Garcia, and J. Frejlich. “Transport length, quantum efficiency and trap density measurement in $Bi_{12}SiO_{20}$ ”. *J. Appl. Phys.*, 66:247–251, 1989.
- [28] A. Motes and J. J. Kim. “Intensity-dependet Absorption Coefficient in Photorefractive $BaTiO_3$ crystals”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4:1379, 1987.

- [29] G. A. Brost, R. A. Motes, and J. R. Rotgé. “Intensity-Dependent Absorption and Photorefractive Effects in Barium Titanate”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5:1879, 1988.
- [30] G.C.Valley. “Erase rates in photorefractive materials with two photoactive species.”. *Appl. Opt.*, 22:3160–3164, 1983.
- [31] V. L. Vinetskii and N.V. Kukhtarev. *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 1:84, 1975.
- [32] G. S. Trofimov and S. I. Stepanov. “Time-dependent holographic currents in photorefractive crystals”. *Sov. Phys. Solid State*, 28:1559–1562, 1986.
- [33] T. J. Hall M.A. Fiddy and M. S. Ner. “Detector for an optical-fiber acoustic sensor using dynamic holographic interferometry”. *Opt.Lett.*, 5:485, 1980.
- [34] I.A. Sokolov S.I.Stepanov and G.S.Trofimov. “Measuring vibration amplitudes in the picometer range using moving light gratings in photoconductive GaAs:Cr”. *Optics Letters*, 5:1239–1241, 1990.
- [35] N.A. Korneev and S.I.Stepanov. “Measurement of small lateral vibrations of speckle patterns using a non-steady-state photo-EMF in GaAs:Cr”. *Journal Of Modern Optics*, 38:2153–2158, 1991.
- [36] F. Davidson, C.C. Wang, and S. Trivedi. “Optical phase-lock loops with photoconductive semiconductor phase detectors”. *Opt. Lett*, 19:774, 1994.
- [37] N. Korneev and S. Stepanov. *Opt. Commun.*, 115:35, 1995.
- [38] A. Aguirre S.Stepanov J. Castillo, P. Rodriguez and S. Mansurova. “Effective laser ultrasonic detection with biased GaAs photoelectromotive force detectors”. *Applied Physics Letters*, 80:3697–3699, 2002.
- [39] S. Sochava and K. Buse and E. Krätzig. “Non-steady-state photocurrent technique for the characterization of photorefractive BaTiO₃”. *Opt. Commun.*, 98:265–268, 1993.
- [40] S.L.Sochava, V.V. Kulikov, I.A. Sokolov, and M.P. petrov. “Optical detection of non-steady-state photo-electromotive force in Bi₁₂TiO₂₀”. *Optics Communications*, 125:262–266, 1996.
- [41] A. Gerwens, K. Buse, and E. Krätzig. “Hall measurements with photorefractive strontium barium niobate by application of a non-steady-state photocurrent method”. *J.Opt.Soc.Am.B*, 15:2143–2146, 1998.
- [42] Feng Jin and Jacob B. Khurgin. “Displacement measurement with adjustable range by use of the photoelectromotive force effect and a frequency-modulated laser diode”. *Optics Letters*, 26:1170–1172, 2001.
- [43] Reinhard Bittner and Klaus Meerholz. “Nonsteady-state photo-EMF effect in photorefractive polymers”. *Applied Physics Letters*, 74:3723–3725, 1999.

- [44] N.A. Korneev and S. Stepanov. “Non-steady-state photoelectromotive force in semiconductor crystals with high light absorption”. *J.Appl.Phys.*, 74:2736–2741, 1993.
- [45] M. P. Petrov and I. A. Sokolov and S. I. Stepanov and G. S. Trofimov. “Non-steady-state photo-electromotive-force induced by dynamic gratings in partially compensated photoconductors”. *J. Appl. Phys.*, 68:2216–2225, 1990.
- [46] J.P. Huignard and A. Marrakchi. “Two-wave mixing and energy transfer in $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ crystals: application to image amplification and vibrational analysis”. *Opt. Lett.*, 6:622–624, 1981.
- [47] H.J. Tiziani, K. Leonard, and J. Klenk. “Real-Time Displacement and Tilt Analysis by a Speckle Technique using $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ Crystals ”. *Opt.Commum*, 34:327, 1980.
- [48] H.J. Tiziani and J. Klenk. “Vibration Analysis by Speckle Techniques in real time”. *Appl. Opt.*, 20:1467, 1981.
- [49] N.A. Korneev and S.I. Stepanov. “Measurement of small lateral vibrations of speckle patterns using a non-steady-state photo-EMF in GaAs:Cr ”. *Journal Of Modern Optics*, 38:2153–2158, 1991.
- [50] Alexei A. Kamshilin, Kimmo Paivasaari, A.V. Khomenko, and C. Fuentes-Hernández. “Polarization self-modulation of the nonstationary speckle field in a photorefractive crystals”. *Optics Letter*, 24:832–834, 1992.
- [51] Néstor Bolognini Myrian Tebaldi, Alberto Lencina. “Analysis and applications of the speckle patterns registered in a photorefractive BTO crystal”. *Opt. Commun.*, 202:257–270, 2001.
- [52] SH. M. Efendiev, T. Z. Kulieva, V. A. Lomonov, M. I. Chiragov, M. Grandolfo, and P. Vecchia. “Cristal Structure of Bismuth Titanium Oxide $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ ”. *Phys.stat.sol.*, 74:K17–K21, 1981.
- [53] J.F. Carvalho, R.W.A. Franco, C.J. Magon, L.A.O. Nunes, and A.C. Hernandes. “Optical and magnetic characterization of pure and Vanadium-doped $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ sillenite crystals”. *Optical Materials*, 13:333–338, 1999.
- [54] SH. M. Efendiev, V. E. Bagiev, A. CH. Zeinally, V.A. Balashov, V.A. Lomonov, and A.A. Majer. “Optical Properties of $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ Single Crystals”. *Phys.stat.sol. (a)*, 63:K19, 1981.
- [55] J.F. Carvalho and A.C. Hernandes. “Large $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ single cristals: a study of intrinsic defects and growth parameters”. *J. Cryst. Growth*, 205:185, 1999.
- [56] J.F. Carvalho S. Lanfredi and A.C. Hernandes. “Electric and dielectric properties of BTO single crystals”. *J. Appl. Phys.*, 88:283–287, 2000.

- [57] V. V. Prokofiev, J. F. Carvalho, J. P. Andreeta, N. J. H. Gallo, A. C. Hernandez, J. Frejlich, A. A. Freschi, P. M. Garcia, J. Maracaiba, A. A. Kamshilin, and T. Jaaskelainen. “Growth and characterization of photorefractive $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ single crystals”. *Crystal Res. Tech.*, 30:171–176, 1995.
- [58] Ivan de Oliveira and Jaime Frejlich. “Dielectric relaxation time measurement in absorbing photorefractive materials.”. *Opt. Commun.*, 178:251–255, 2000.
- [59] J.F. Carvalho A. R. Lobato, S. Lanfredi and A.C. Hernandez. *Meter. Res.*, 3:92, 2000.
- [60] A. Gerwens, K. Buse, and E. Krätzig. “Alternating photocurrents and modulated photoconductivities in photorefractive sillenite crystals”. *Ferroelectrics*, 202:203–210, 1997.
- [61] J.Frejlich, A.A.Freschi, P.M.Garcia, E.Shamonina, V.Ya.Gayvoronsky, and K.H.Ringhofer. “Feedback-controlled running holograms in strongly absorbing photorefractive materials”. *J.Opt.Soc.Am. B*, 17:1517–1521, 2000.
- [62] A. A. Freschi, P. M. Garcia, and J. Frejlich. “Charge-carriers diffusion length in photorefractive crystals computed from the initial hologram phase shift. ”. *Appl. Phys. Lett.*, 71:2427–2429, 1997.
- [63] Ivan de Oliveira and Jaime Frejlich. “Photorefractive running hologram for materials characterization”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18:291–297, 2001.
- [64] B. C. Grabmaier and R. Oberschmid. “Transport properties of photoelectrons in $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ and $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ crystals”. *Phys. Status Solidi*, 96:199–211, 1986.
- [65] J. Frejlich, P. M. Garcia, K. H. Ringhofer, and E. Shamonina. “Phase modulation in two-wave mixing for dynamically recorded gratings in photorefractive materials”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14:1741–1749, 1997.
- [66] F. P. Strohkendl, J. M. C. Jonathan, and R. W. Hellwarth. “Hole-electron competition in photorefractive gratings”. *Opt. Lett.*, 11:312–314, 1986.
- [67] M. Françon. “*Laser Speckle and Applications in Optics*”. ACADEMIC PRESS, N. York, San Francisco, London, 1979.
- [68] P. Günter and J. P. Huignard. “*Topics in Applied Physics: Photorefractive Materials and their Applications I*”, volume 61. Springer Verlag, 1987.