

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS  
CURSO DE DOUTORADO EM FÍSICA

# **FIXAÇÃO DE HOLOGRAMAS EM NIOBATO DE LÍTIO**

ELABORADA POR  
**IVAN DE OLIVEIRA**

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

COMISSÃO EXAMINADORA:

Prof. Dr. Jaime Frejlich - Orientador - DFMC/IFGW/Unicamp

Prof. Dr. Dario Antonio Donatti - IGCEX/UNESP/Rio Claro

Prof. Dr. Antonio Carlos Hernandez - IF/USP

Prof. Dr. Mauro Monteiro Garcia de Carvalho - DFA/IFGW/Unicamp

Prof. Dr. Lucila Helena Deliesposte Cescato - DFMC/IFGW/Unicamp

Campinas Fevereiro de 2005.

*Dedico esse trabalho a meus pais, Geraldo e Clarice a minha esposa Jussara e ao meu filho Pedro e a minha filha Isadora, pelo amor e carinho que sempre me dedicaram.*

*Dedico esse trabalho a meus pais, Geraldo e Clarice a minha esposa Jussara e ao meu filho Pedro e a minha filha Isadora, pelo amor e carinho que sempre me dedicaram.*

*Dedico esse trabalho a meus pais, Geraldo e Clarice a minha esposa Jussara e ao meu filho Pedro e a minha filha Isadora, pelo amor e carinho que sempre me dedicaram.*

# Agradecimentos

- À Maria pelo apoio e carinho.
- Ao Prof. Jaime Frejlich pela orientação e dedicação.
- Aos professores Dario e Dimas da Universidade Estadual Paulista, (Unesp) Campus de Rio Claro, pela dedicação e orientação em minha iniciação científica.
- Aos amigos Marcelo e José Roberto (Borba) pela grande amizade e ajuda durante a realização desse trabalho.
- Aos colegas do Laboratório de Óptica, Prof. Dr. Lunazzi, Profa. Dra. Lucila, Luis Mosquera, Paulo Magno, Agnaldo, Cristiano, Edson, Pedro Valentim pelo ótimo ambiente de trabalho.
- Aos funcionários do Laboratório de Óptica, Alcides, Do Carmo e principalmente a Del.
- À Maria Ignez, Armandinho, da CPG IFGW, pela atenção e paciência que sempre me dedicaram.
- Aos professores Luis Arizmendi e Mercedes Carrascosa, da Universidad Atónoma de Madrid Espanha, pelo agradável acolhimento durante minha estada naquele país.
- À Fundação de Amparo a Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP) pelo apoio financeiro.
- Finalmente agradeço a todos que direta ou indiretamente contribuíram para a realização desse trabalho

*Os povos sem ciências não passam de cortadores de lenha e carregadores de água para os povos mais esclarecidos. (Rutherford)*

## ABSTRACT

In this work important contributions to the field and to the self stabilized holographic record in lithium niobate were achieved and to the dynamic formation and hologram evolution study during different fixing stages. Other important contributions in this work refer to more efficient technique development and/or simpler ones to hologram fixing. On terms of self stabilized record our work allowed the use of these techniques to obtain some holograms with high efficiency diffractions and in a reproducible form. The self stabilized holographic record in lithium niobate had already been used before. The new point here is the detailed study about the process dynamic which allowed a better understanding of the technique possibilities and limitations including the detailed study of the effect of the oxidation degree (thus the relation  $[\text{Fe}^{3+}]/[\text{Fe}^{2+}]$ ) of the material about the stabilization system behaviour. According to the referred studies above which permitted a better understanding of the process, it was possible to develop the oxidated crystals fixing technique which permitted to get fixed nets with high diffractions efficiency with predictable values according to the crystals properties and in a reproducible form. The self stabilized record was applied successfully to the fixing technique (recording and compensation) for the first time to high temperature in a so much simpler form than the classical one which permitted to obtain excellent results even using reduced samples to which the classical process has not worked satisfactorily. Parallel to this, we showed (theoric and experimentally) the associated problems to the diffraction efficiency in thick holograms. We showed the use of an auxiliar bin (frequently used) for this kind of measure results in considerable errors and to this case we propose a so much simpler form of achieving this measure.

## RESUMO

Neste trabalho foram realizadas contribuições importantes na área de registro holográfico auto-estabilizado em niobato de lítio ( $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ ) e do estudo da dinâmica da formação e evolução dos hologramas durante as diferentes etapas da fixação. Outras contribuições importantes neste trabalho referem-se ao desenvolvimento de técnicas mais eficientes e/ou mais simples para a fixação de hologramas. Em termos de registro auto-estabilizado, nosso trabalho permitiu o uso dessas técnicas para obtermos hologramas com alta eficiência de difração e de forma reproduzível. O registro holográfico auto-estabilizado em niobato de lítio já tinha sido utilizado anteriormente. A novidade aqui reside no estudo detalhado da dinâmica do processo, que permitiu uma melhor compreensão das possibilidades e limitações da técnica, incluindo o estudo detalhado do efeito do grau de oxidação (isto é, da relação  $[\text{Fe}^{3+}]/[\text{Fe}^{2+}]$ ) do material sobre o comportamento do sistema de estabilização. Em função dos estudos acima referidos que permitiram uma melhor compreensão dos processos, foi possível desenvolver uma técnica de fixação para cristais oxidados que permitiu obter redes fixas com alta eficiência de difração, com valores previsíveis em função das propriedades do cristal e de forma reproduzível. O registro auto-estabilizado foi aplicado com sucesso, pela primeira vez, à técnica de fixação (registro e compensação) a alta temperatura, de forma muito mais simples do que a técnica clássica, e que permitiu obter excelentes resultados mesmo com amostras reduzidas, para as quais o processo clássico não funciona satisfatoriamente. Paralelamente mostramos teórica e experimentalmente os problemas associados à medida da eficiência de difração em hologramas espessos. Mostramos que o uso de um feixe auxiliar (freqüentemente utilizado) para este tipo de medida leva a erros consideráveis e para este caso propomos uma forma muito simples de realizar essa medida.

# Conteúdo

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Registro Holográfico em <math>\text{LiNbO}_3\text{:Fe}</math></b>	<b>4</b>
2.1	Introdução . . . . .	4
2.2	O cristal de $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ . . . . .	6
2.2.1	Tensor Eletro-Óptico para o cristal $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ . . . . .	7
2.2.2	Dopantes em $\text{LiNbO}_3$ . . . . .	9
2.2.3	O ferro como dopante em $\text{LiNbO}_3$ . . . . .	10
2.2.4	Dopagem com hidrogênio . . . . .	10
2.3	Formação do Holograma em $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ . . . . .	12
2.3.1	Corrente de Arraste . . . . .	12
2.3.2	Corrente de Difusão . . . . .	12
2.3.3	Corrente Fotovoltaica . . . . .	12
2.3.4	Modelo de Transporte de Bandas . . . . .	13
2.4	Eficiência de Difração . . . . .	17
2.4.1	Auto-Difração . . . . .	17
2.4.2	Eficiência de difração para hologramas fixos . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Registro Estabilizado</b>	<b>20</b>
3.1	Introdução . . . . .	20
3.2	Modulação de Fase . . . . .	22
3.3	Sistema de Estabilização Holográfico . . . . .	23
3.3.1	Mistura de ondas . . . . .	26
3.4	Registro Auto-Estabilizado . . . . .	28

3.5	Experimentos . . . . .	31
	Montagem Holográfica . . . . .	31
3.5.1	Amostras-Preparação das amostras . . . . .	32
3.5.2	Caracterização das Amostras . . . . .	33
3.5.3	Resultados-Registro auto-estabilizado . . . . .	35
3.6	Discussões e Conclusões . . . . .	38
<b>4</b>	<b>Efeito da polarização no registro do holograma em <math>\text{LiNbO}_3\text{:Fe}</math></b>	<b>41</b>
4.1	Introdução . . . . .	41
4.1.1	Escrita do Holograma . . . . .	42
4.1.2	Experimento . . . . .	42
4.1.3	Resultados . . . . .	43
4.1.4	Discussão . . . . .	45
4.1.5	Conclusões . . . . .	46
<b>5</b>	<b>Fixação de Hologramas em <math>\text{LiNbO}_3\text{:Fe}</math></b>	<b>47</b>
5.1	Introdução . . . . .	47
5.2	Modelo para a fixação de hologramas em $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ . . . . .	48
5.2.1	Escrita a temperatura ambiente e fixação a alta temperatura . . . . .	51
5.3	Processo de Revelação da rede fixada . . . . .	52
5.3.1	Apagamento com Luz Uniforme . . . . .	53
5.3.2	Experimentos . . . . .	55
5.3.3	Medida da evolução da diferença de fase entre as redes . . . . .	57
5.3.4	Montagem holográfica . . . . .	59
5.3.5	Experimento . . . . .	59
5.4	Escrita e fixação a alta temperatura . . . . .	61
5.4.1	Equações para o processo de escrita e fixação simultânea . . . . .	61
5.4.2	Experimento . . . . .	62
5.4.3	Resultados . . . . .	63
5.5	Discussão e Conclusão . . . . .	65
<b>6</b>	<b>Discussões e Conclusões</b>	<b>66</b>

<b>A Teoria das Ondas Acopladas</b>	<b>68</b>
A.1 Introdução . . . . .	68
A.2 Equações das Ondas Acopladas . . . . .	68
A.2.1 Solução das Equações das Ondas Acopladas . . . . .	71
A.2.2 Eficiência de Difração . . . . .	73
<b>B Medida da eficiência da difração de redes em volume</b>	<b>78</b>
B.1 Introdução . . . . .	78
B.1.1 Medida da eficiência de difração utilizando os feixes de registro . . . . .	79
B.1.2 Medida da eficiência de difração utilizando um feixe auxiliar-Feixe de prova . . . . .	82
B.1.3 Experimento . . . . .	83
B.1.4 Discussão . . . . .	85
B.1.5 Conclusões . . . . .	86
<b>C Apagamento seletivo</b>	<b>87</b>
C.1 Experimentos . . . . .	89
C.2 Resultados . . . . .	89
C.3 Discussões e Conclusões sobre Apagamento Seletivo . . . . .	91

# Lista de Figuras

2.1	<i>Processos de excitação e recombinação de portadores cristais fotorrefrativos.</i>	5
2.2	<i>Processo de Registro de Hologramas . . . . .</i>	5
2.3	<i>Configuração do cristal de niobato de lítio utilizado . . . . .</i>	8
3.1	<i>Diagrama de blocos mostrando o sistema de estabilização. . . . .</i>	24
3.2	<i>Registro Holográfico-Não Estabilizado e Estabilizado . . . . .</i>	26
3.3	<i>Eficiência de difração como função de <math>2\kappa d</math> para registro não auto-estabilizado em amostras reduzidas de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> (<math>\Gamma = 0</math>, <math>\phi = \pi</math>) para <math>\beta^2 = 1, 2</math> e <math>10</math>. . . . .</i>	28
3.4	<i>Eficiência de difração como função de <math>2\kappa d</math> para registro não auto-estabilizado em amostras oxidadas de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> (<math>\Gamma \neq 0</math>) para <math>\phi = 2.8\text{rad}</math> (fig. a), <math>\phi = 2.5\text{rad}</math> (fig. b) e com <math>\beta^2 = 1, 2</math> e <math>10</math>. . . . .</i>	28
3.5	<i>Eficiência de difração como função de <math>2\kappa d</math> e <math>\phi</math> para <math>\beta^2 = 1</math> curva (a) e para <math>\beta^2 = 10</math> curva(b). . . . .</i>	29
3.6	<i>Segundo harmônico <math>I_S^{2\Omega}</math> como função de <math>2\kappa d</math> para <math>\beta^2 = 1, 2</math> e <math>10</math> . . . . .</i>	29
3.7	<i>Evolução da eficiência de difração <math>\eta</math> (círculos), <math>\phi</math> (triângulos) e <math>I_S^\Omega</math> (quadrados), para registro auto estabilizado e <math>\beta^2 = 1.1</math>. . . . .</i>	30
3.8	<i>Evolução da eficiência de difração <math>\eta</math> (círculos), <math>\phi</math> (triângulos) e <math>I_S^\Omega</math> (quadrados), para registro auto estabilizado e <math>\beta^2 = 10</math>. . . . .</i>	31
3.9	<i>Montagem Experimental . . . . .</i>	32
3.10	<i>Espectro de absorção na região do visível das amostras estudadas. . . . .</i>	33
3.11	<i>Espectro de absorção na região do infra vermelho para duas das amostras estudadas. . . . .</i>	34

3.12	<i>Registro auto-estabilizado em uma amostra reduzida de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> com <math>\phi \approx \pi</math> e <math>\beta^2 \approx 1</math> (<math>I_R^0 = 141.1\text{W}/\text{m}^2</math> e <math>I_S^0 = 116\text{W}/\text{m}^2</math>). A evolução de <math>I_S^\Omega</math> e <math>I_S^{2\Omega}</math> durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo <math>\eta = 1</math> foi medido. . . . .</i>	35
3.13	<i>Registro auto-estabilizado em uma amostra oxidada de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> com <math>\beta^2 \approx 1</math> (<math>I_R^0 = 113.5\text{W}/\text{m}^2</math> e <math>I_S^0 = 108.1\text{W}/\text{m}^2</math>). A evolução de <math>I_S^\Omega</math> e <math>I_S^{2\Omega}</math> durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo foi qualitativamente verificado que tínhamos <math>\eta = 1</math>. . . . .</i>	36
3.14	<i>Registro auto-estabilizado em uma amostra oxidada de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> com <math>\beta^2 \approx 12</math> (<math>I_R^0 = 243.2\text{W}/\text{m}^2</math> e <math>I_S^0 = 20.3\text{W}/\text{m}^2</math>). A evolução de <math>I_S^\Omega</math> e <math>I_S^{2\Omega}</math> durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo foi qualitativamente verificado que tínhamos <math>\eta = 1</math>. . . . .</i>	36
3.15	<i>Montagem Experimental . . . . .</i>	37
3.16	<i>Registro holográfico em regime de não estabilização para uma amostra oxidada de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> com <math>\beta^2 \approx 1</math> (<math>I_R^0 = 97.3\text{W}/\text{m}^2</math> e <math>I_S^0 = 89.2\text{W}/\text{m}^2</math>). A evolução dos sinais <math>I_S^\Omega</math> e <math>I_S^{2\Omega}</math> durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. . . . .</i>	38
3.17	<i>Simulação da evolução da eficiência de difração (<math>\eta</math>) da fase <math>\varphi</math> e do primeiro harmônico (<math>I^\Omega</math>) para o registro em regime de não estabilização para uma amostra oxidada. . . . .</i>	39
4.1	<i>Montagem experimental utilizada para o registro auto-estabilizado em cristais <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math>. . . . .</i>	42
4.2	<i>Evolução do primeiro harmônico <math>I^\Omega</math> durante a escrita do holograma em <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> utilizando o registro auto-estabilizado e polarização ordinária e extraordinária para os feixes de escrita. . . . .</i>	43
4.3	<i>Evolução do primeiro harmônico <math>I^\Omega</math> durante a escrita do holograma, em <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math>, com polarização ordinária para os feixes de escrita, registro auto-estabilizado e leitura do holograma gravado com polarização extraordinária.</i>	

4.4	<i>Evolução do primeiro harmônico <math>I^\Omega</math> durante a escrita do holograma, em <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math>, com polarização ordinária para os feixes de escrita, registro auto-estabilizado com as amostras LNb1 e LNb2. . . . .</i>	44
5.1	<i>Processo de Fixação de Hologramas-a) Padrão de intensidade que gera o holograma, b) Densidade de carga fotogerada (elétrons), c) Compensação dos elétrons pelos íons a alta temperatura, d) Rede de íons devido ao apagamento da rede eletrônica com luz uniforme. . . . .</i>	49
5.2	<i>Evolução do campo total no volume do material durante a compensação da rede eletrônica a alta temperatura. . . . .</i>	51
5.3	<i>Montagem experimental para o registro auto-estabilizado usando o sinal de segundo harmônico como sinal de erro para operar o sistema de retroalimentação. M: espelhos, PZT: espelho pizoelétrico, PBS: divisor polarizante de feixes, LA: amplificador Lock-in, HV: Fonte de alta tensão e OSC: Oscilador. . . . .</i>	55
5.4	<i>Evolução da eficiência de difração durante o processo de revelação com luz branca, para amostra LNb2. . . . .</i>	56
5.5	<i>Evolução da eficiência de difração durante o processo de revelação com luz branca, para a amostra LNb1. . . . .</i>	57
5.6	<i>Montagem experimental para a medida da fase entre as redes. . . . .</i>	59
5.7	<i>Evolução da fase entre as redes eletrônica e fixa durante o processo de apagamento da rede eletrônica com luz uniforme para uma amostra oxidada. . . . .</i>	60
5.8	<i>Evolução da fase entre as redes eletrônica e fixa durante o processo de apagamento da rede eletrônica com luz uniforme para amostras oxidada e reduzidas . . . . .</i>	60
5.9	<i>Esquema do porta-amostra utilizado no processo de escrita e fixação simultânea. . . . .</i>	63
5.10	<i>Evolução do sinal difratado durante o processo de escrita e fixação simultânea para <math>T=120^\circ\text{C}</math>. . . . .</i>	63
5.11	<i>Evolução do sinal difratado durante o processo de escrita e fixação simultânea para <math>T=150^\circ\text{C}</math>. . . . .</i>	64

5.12	<i>Evolução da eficiência de difração da rede final (fixa) com o tempo de escrita e compensação simultânea para uma amostra de <math>\text{LiNbO}_3:\text{Fe}</math> reduzida. O processo ocorreu a uma temperatura de <math>130 \leq T \leq 135^\circ \text{C}</math>.</i>	64
A.1	<i>Processo de leitura de redes em volume</i>	69
A.2	<i>Processo de escrita e leitura de redes em volume</i>	71
B.1	<i>Medida da eficiência de difração: Os feixes não são colimados e a amostra produz efeito de lente.</i>	80
B.2	<i>Eficiência de difração como função do deslocamento angular de Bragg <math>\bar{\theta}</math> em mrad para os valores medidos (círculos) e a curva teórica calculada para <math>a = 0.35\text{mrad}</math> (curva contínua) e para <math>a \rightarrow 0</math> (curva tracejada).</i>	84
B.3	<i><math>\bar{\nu}</math>, calculada pela equação (B.24), como função de <math>\nu</math> na condição de Bragg e com os mesmos parâmetros utilizados na figura (B.2).</i>	86
C.1	<i>Segundo harmônico <math>I_S^{2\Omega}</math> como função de <math>\phi</math> para <math>\beta^2 = 1</math> e <math>2\kappa d = 1, 2</math> e <math>3</math>.</i>	88
C.2	<i>Segundo harmônico <math>I_S^{2\Omega}</math> como função de <math>\phi</math> para <math>\beta^2 = 10</math> e <math>2\kappa d = 1, 2</math> e <math>3</math>.</i>	89
C.3	<i>Evolução do <math>I_S^\Omega</math> e da eficiências de difração durante o processo de apagamento seletivo auto-estabilizado.</i>	90

# Capítulo 1

## Introdução

O cristais fotorrefrativos são materiais fotocondutores e eletro-ópticos. Sob determinadas condições podemos gravar um holograma de fase no volume desses materiais. O holograma é gerado pela combinação dos efeitos da fotocondutividade e do efeito eletro-óptico. Com luz de determinado comprimento de onda, elétrons são excitados, pela luz, de centros doadores para a banda de condução, onde se difundem ou são arrastados por ação de um campo elétrico externo. Após múltiplas excitações e recombinações há a formação de uma modulação de carga que dá origem a um campo elétrico que modula o índice de refração do material via o efeito eletro-óptico. O holograma gravado dessa maneira pode ser apagado quando a amostra for submetida a luz uniforme. Após o apagamento do holograma a amostra pode ser utilizada novamente para um novo registro, ou seja, esses materiais são reversíveis. Uma das vantagens da reversibilidade está no fato de podermos utilizar apenas uma amostra para vários experimentos diferentes. No entanto em certas aplicações a reversibilidade passa a ser um efeito indesejado. Para contornar o efeito indesejado da reversibilidade Amodei e Staebler em 1971 [1] descobrem o processo de fixação de redes em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Entretanto a descrição completa da formação do holograma e da fixação do mesmo ocorreu após um trabalho de Kukhtarev em 1979 [2]. Utilizando o modelo de Kukhtarev, Carrascosa *et. al* publicaram em 1990 [3] um modelo para a fixação de hologramas em cristais fotorrefrativos em especial para o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Nesse trabalho, Carrascosa *et. al* descrevem, de forma teórica, a fixação dos hologramas de duas formas diferentes. A primeira é a fixação do holograma após a escrita do mesmo a temperatura ambiente. A segunda é o processo de escrita e compensação simultânea

do holograma a alta temperatura. Yariv *et al* [4] publicaram em 1996 um estudo sobre o processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para diferentes estados de oxidação. Porém, nesse trabalho, os autores não mencionaram o efeito do estado de oxidação das amostras de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  no processo de revelação da rede fixada, ou seja, a influência do estado de oxidação das amostras no valor final da eficiência de difração da rede fixa. Em 1998 K. Buse *et. al* [5] utilizaram um cristal de niobato de lítio com dupla dopagem,  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ , para obter uma rede fixa a temperatura ambiente. A diferença básica entre o procedimento descrito por esses autores e o descrito neste trabalho está no fato de conseguirmos valores altos para a eficiência de difração da rede fixa. Com o cristal com dupla dopagem conseguiu-se 32% de eficiência de difração para a rede fixa. Neste trabalho mostramos que é possível obter redes fixadas com eficiência de difração de 100%.

O efeito do estado de oxidação das amostras no processo de revelação da rede fixada só foi estudado em 2000 por Eva M de Miguel *et. al*. Além do papel fundamental que o estado de oxidação desempenha no processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , ele também produz efeitos interessantes no processo de registro da rede eletrônica. Um desses efeitos é o acoplamento de fase durante o registro da rede eletrônica. Esse acoplamento produz hologramas inclinados, impossibilitando que se grave redes com 100% de eficiência de difração [6, 7], entretanto esse efeito pode ser corrigido rodando a amostra de modo a encontrar a condição de Bragg. Mostramos que somente em determinadas condições é que podemos gravar redes eletrônicas altamente eficientes. Verificamos teoricamente e experimentalmente que a condição para a gravação de redes eletrônicas altamente eficientes é aquela em que o registro da rede é auto-estabilizado. Nessa condição podemos gravar redes com valores altos para a modulação de índice de refração para amostras com quaisquer estados de oxidação [7]. Outro efeito do estado de oxidação das amostras de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é a possibilidade de conseguirmos redes fixas mais eficientes. Eva M. de Miguel *et. al* [8] mostraram que amostras oxidadas produzem redes mais eficientes que as amostras reduzidas. Os autores, neste trabalho, também mencionaram que durante o apagamento da rede eletrônica, ou seja, durante o processo de revelação da rede fixada, a rede eletrônica se desloca em relação a rede fixa e que esse deslocamento é maior em amostras oxidadas, e de fundamental importância no valor final da eficiência de difração da rede fixa. Utilizando a técnica do registro auto-estabilizado medimos pela primeira

vez a evolução do deslocamento da rede eletrônica durante o processo de revelação da rede fixada em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  [9]. Verificamos que o deslocamento é maior para amostras oxidadas, como tinham previsto Eva M. de Miguel *et. al* [8]. Como um dos objetivos desse trabalho desenvolvemos uma técnica muito simples para obter redes fixada em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  altamente eficientes. A técnica consiste em gravarmos uma rede eletrônica a temperatura ambiente com luz de polarização ordinária e fazer a leitura da rede fixada com luz de polarização extraordinária [10]. Através de um estudo amplo sobre o processo de registro auto-estabilizado em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  [7] utilizamos essa técnica para o processo de escrita e fixação de hologramas a alta temperatura. Utilizando essa técnica conseguimos obter uma rede fixa com cerca de 25% de eficiência de difração para uma amostra reduzida. Tal amostra se mostrou pouco eficiente (3% de eficiência de difração) para o processo de fixação em três etapas, ou seja, escrita a temperatura ambiente, fixação a alta temperatura (120°C a 180°C) e revelação a temperatura ambiente.

Este trabalho esta dividido da seguinte forma: No capítulo 2 descreveremos a formação do holograma em cristais fotorrefrativos em especial no cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Utilizaremos o modelo de Kukhtarev para a descrição da formação do holograma. O processo de registro auto-estabilizado, assim como a influência do estado de oxidação das amostras no processo de registro auto-estabilizado serão descritos no capítulo 3. Veremos que a o estado de oxidação modifica totalmente o processo de registro auto-estabilizado. No capítulo 4 estudaremos o efeito do estado de polarização dos feixes de escrita no processo de registro holográfico em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Veremos que quando o registro é feito com luz de polarização ordinária e utilizando amostras oxidadas o tempo de escrita da rede pode durar horas, ficando evidente a necessidade da utilização do técnica do registro auto-estabilizado. No capítulo 5 estudaremos todas as etapas do processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Estudaremos o processo de fixação de duas maneiras distintas. A primeira consiste em fixar a rede em três etapas: escrita do holograma a temperatura ambiente, compensação da rede a alta temperatura e revelação da rede a temperatura ambiente. A segunda é baseada na escrita e compensação simultânea do holograma a alta temperatura. Finalmente no capítulo 6 discutiremos os resultados obtidos neste trabalho.

# Capítulo 2

## Registro Holográfico em $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

### 2.1 Introdução

O efeito fotorrefrativo é o termo usado para descrever a variação de índice de refração causada pela ação da luz em alguns materiais fotocondutores e eletro-ópticos. Os materiais que apresentam esse efeito são chamados "*fotorrefrativos*".

O processo de registro holográfico em cristais fotorrefrativos está baseado na geração e recombinação de portadores de cargas. O modelo mais utilizado para descrever esse fenômeno é o chamado de Transporte de Bandas [2].

Quando incidimos sobre os cristais fotorrefrativos um padrão luz de determinado comprimento de onda, excitamos de centros doadores portadores de cargas para a banda de condução (elétrons) e/ou para a banda de valência (buracos). Na banda de condução e/ou valência eles se difundem e/ou são arrastados por ação de um campo externo. Após múltiplas excitações ocorrem recombinações em centros aceitadores, e dessa maneira há acúmulo de cargas de um sinal nas regiões escuras do cristal e de sinal contrário nas regiões iluminadas, causando dessa forma uma modulação espacial de cargas no volume do material. Devido a essa modulação de cargas, aparece um campo elétrico que modula o índice de refração via efeito eletro-óptico, surgindo assim um holograma de fase no volume do material. Os materiais fotorrefrativos, que permitem gravar um holograma dessa maneira, são reversíveis, ou seja, podemos gravar e apagar quantas vezes for necessário sem haver qualquer dano ao cristal. As figuras (2.1) e (2.2) representam a formação do hologramas em cristais fotorrefrativos.

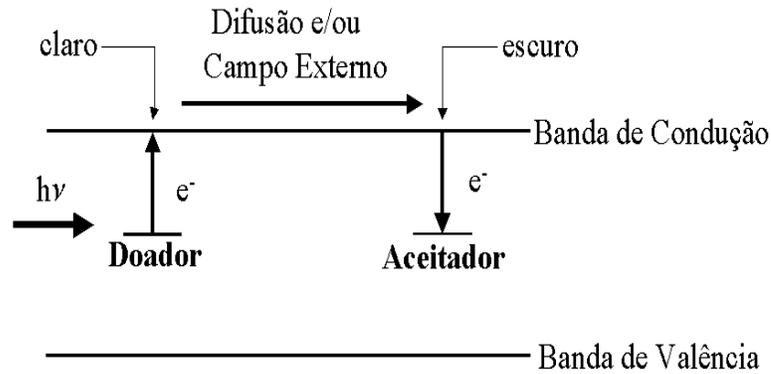


Figura 2.1: *Processos de excitação e recombinação de portadores cristais fotorrefrativos.*

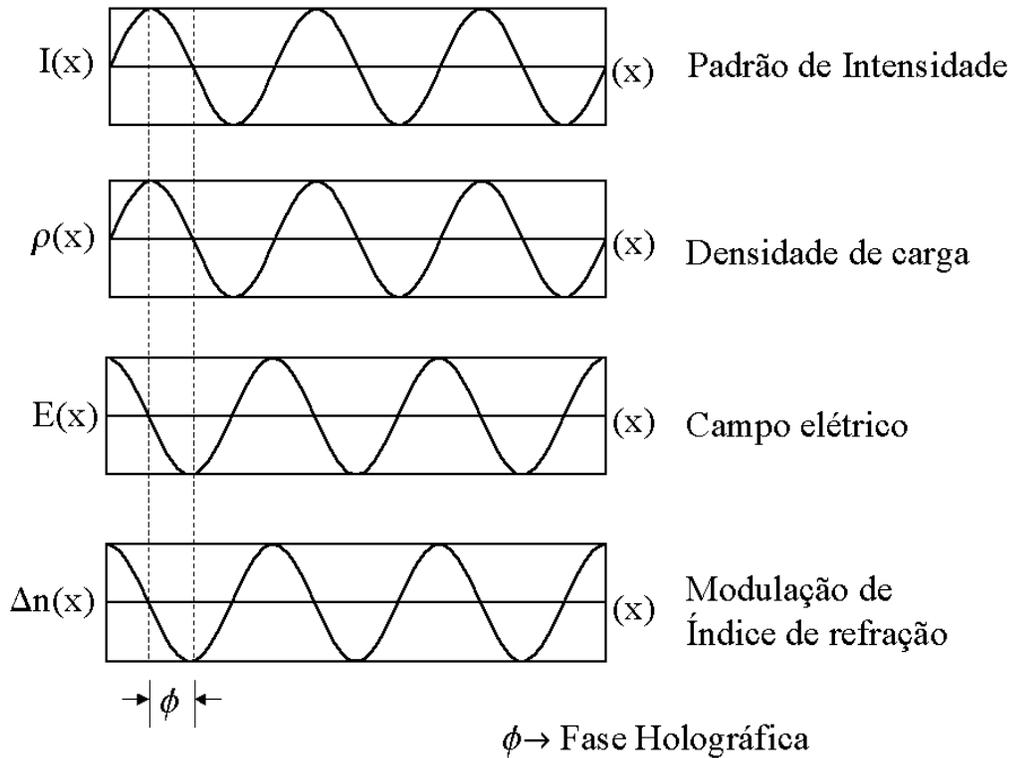


Figura 2.2: *Processo de Registro de Hologramas*

É interessante notar que o campo elétrico formado devido as cargas fotogeradas é defasado em relação ao padrão de luz incidente sobre o material fotorrefrativo. Essa diferença de fase é chamada de fase holográfica ( $\phi$ ) [11]. Materiais como  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ ,  $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$  e  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  apresentam uma fase holográfica de  $\pi/2$ , na ausência de campo externo. Essa defasagem é a condição natural do holograma na ausência de campo externo para as

silenitas. Essa diferença de fase impõe características interessante ao processo de registro holográfico, tal como a transferência de energia entre os feixes de registro. Quando aplicamos campo elétrico externo nesses materiais a fase holográfica deixa de ser  $\pi/2$ , podendo tomar qualquer valor de acordo com o campo externo. Nesse trabalho utilizaremos como material fotorrefrativo um cristal de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Para cristais como o  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  a fase holográfica fica determinada pelo estado de oxidação da amostra. Para cristais reduzidos, ou seja, amostras com grande quantidade de centros doadores  $\text{Fe}^{2+}$ , a fase é  $\phi = 0$  ou  $\pi$ . Para amostras com grande quantidade centros aceitadores  $\text{Fe}^{3+}$ , amostras oxidadas, a fase pode variar tomando os valores  $0 < \phi < \pi/2$ . Além de desempenhar um papel importante no registro holográfico [7], o estado de oxidação tem importância fundamental no processo de fixação de hologramas, como veremos mais adiante. Veremos que amostras oxidadas apresentam redes fixadas mais eficientes que as amostras reduzidas [8, 9].

## 2.2 O cristal de $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

O cristal  $\text{LiNbO}_3$  é um material fotovoltaico, pertencente a grupo de simetria  $3m$  [12]. Nesse material, diferentemente de outros cristais fotorrefrativos, como as silenitas (BTO por exemplos) podemos gerar uma fotocorrente mesmo sem a aplicação de um campo externo. Os portadores de cargas responsáveis pela corrente tem uma direção de movimento privilegiada [13]. Em cristais não dopados pequenos traços de impurezas são responsáveis pela presença de centros doadores e aceitadores, que dão origem ao holograma [14]. O cristal  $\text{LiNbO}_3$  nominalmente puro apresenta efeito fotorrefrativo muito fraco, e para aumentar o efeito nesse cristal há a necessidade da dopagem. O dopante mais eficiente é o óxido de ferro [11]. O óxido de Ferro introduzido no cristal  $\text{LiNbO}_3$  é que faz o papel de doador-aceitador por meio de uma troca de valência entre  $\text{Fe}^{+2}$  e  $\text{Fe}^{+3}$ . Nesse material,  $\text{Fe}^{+2}$  atua como os centros doadores e  $\text{Fe}^{+3}$  são centros aceitadores. A presença do ferro como dopante em  $\text{LiNbO}_3$  é o que o torna muito eficiente para o registro holográfico. Em outros materiais, como  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ , a dopagem não traz nenhuma vantagem, pelo contrário, a presença de dopantes pode introduzir buracos, o que é muito ruim para a formação do holograma, por motivos óbvios. Os cristais fotorrefrativos são utilizados, entre outras coisas, para o estudo de vibrações [15], onde se utiliza um cristal

do tipo silenitas (BTO por exemplo). Um parâmetro importante no processo de registro holográfico é a condutividade. A condutividade em materiais fotorrefrativos é composta de duas contribuições. Uma contribuição é devida a presença da luz (fotocondutividade) e a outra contribuição é devido a excitação térmica dos portadores de carga na ausência de luz, essa excitação térmica determina a condutividade no escuro. Em materiais fotorrefrativos a fotocondutividade é responsável pelo tempo de formação do holograma, ou seja, quanto mais fotocondutor mais rápido é a formação do holograma. A condutividade no escuro determina o tempo de vida dos hologramas na ausência de luz. Uma condutividade no escuro extremamente baixa ( $10^{-8}$  -  $10^{-19}$ )( $\Omega cm$ )<sup>-1</sup>) [14] em LiNbO<sub>3</sub>:Fe é um fator que diferencia esse cristal de outros cristais fotorrefrativos, como BTO por exemplo. A fotocondutividade e a condutividade no escuro no cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe ficam determinadas pelo estado de oxidação desse material, ou seja, amostras reduzidas são mais rápidas, para uma mesma intensidade de luz, que as amostras oxidadas. Em alguns materiais fotorrefrativos e fotovoltaicos como BaTiO<sub>3</sub> um holograma no escuro tem curta duração, da ordem de poucos segundos. Já em cristais como o LiNbO<sub>3</sub>:Fe um holograma, no escuro, pode durar meses ou anos dependendo do estado de oxidação desse material. O fato do cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe possuir baixa condutividade no escuro e também permitir gravar redes com 100% de eficiência de difração é que o torna interessante no processo de armazenamento de informações. Em outros materiais como Bi<sub>12</sub>TiO<sub>20</sub>, por exemplo, nas melhores condições de registro conseguimos apenas 16% de eficiência de difração [16]. Entretanto a informação armazenada na forma de uma modulação de índice pode ser destruída (apagada) quando submetida a presença de luz. Outra característica importante do cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe é permitir que a informação gravada seja fixada no volume do material. Essa rede fixa pode ser submetida a luz sem sofrer qualquer dano. Tal procedimento será discutido com mais detalhes adiante.

### 2.2.1 Tensor Eletro-Óptico para o cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe

O cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe, como já dissemos, é um material eletro-óptico, ou seja, quando esse cristal é submetido a presença de um campo externo há uma mudança no índice de refração desse material. Devido a presença de um campo externo, para determinadas direções de propagação a luz "verá" variações de índice de refração diferente. O tensor

eletro-óptico desse material é dado por [12]

$$r_{ij} = \begin{bmatrix} 0 & -r_{22} & r_{13} \\ 0 & r_{22} & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{51} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ -r_{22} & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (2.1)$$

A equação para o elipsoide de índice é dada por

$$(n_0^{-2} - r_{22}E_2 + r_{13}E_3)x_1^2 + (n_0^{-2} + r_{22}E_2 + r_{13}E_3)x_2^2 + (n_e^{-2} + r_{33}E_3)x_3^2 - 2r_{22}E_1x_1x_2 + 2r_{51}E_2x_2x_3 + 2r_{51}E_1x_3x_1 = 1 \quad (2.2)$$

onde  $E_1$ ,  $E_2$  e  $E_3$  são as componentes do campo elétrico nas direções  $x_1$ ,  $x_2$  e  $x_3$ ,  $n_0$  e  $n_e$  são os índices de refração ordinário e extraordinário respectivamente. Para a nossa configuração o campo elétrico é paralelo ao eixo  $x_3$ , como mostrado na figura (2.3),

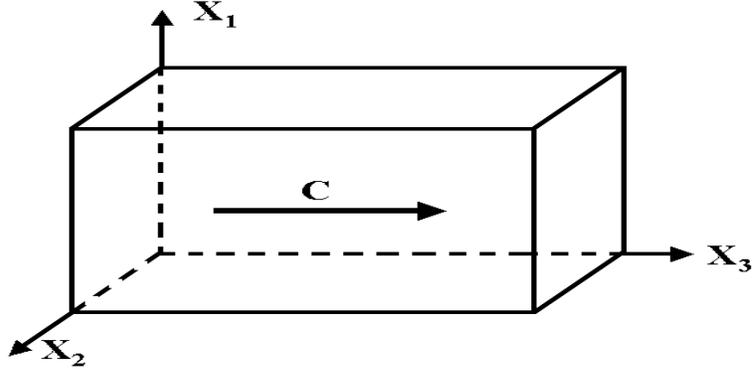


Figura 2.3: Configuração do cristal de niobato de lítio utilizado

dessa forma a equação para o elipsoide de índice fica

$$(n_0^{-2} + r_{13}E_3)x_1^2 + (n_0^{-2} + r_{13}E_3)x_2^2 + (n_e^{-2} + r_{33}E_3)x_3^2 = 1 \quad (2.3)$$

A variação de índice de refração devida a presença do campo elétrico é dada por [12]

$$\Delta(n_1) = -\frac{n_0^3 r_{13} E_3}{2} \quad (2.4)$$

$$\Delta(n_2) = -\frac{n_0^3 r_{13} E_3}{2} \quad (2.5)$$

$$\Delta(n_3) = -\frac{n_e^3 r_{33} E_3}{2} \quad (2.6)$$

Para o nosso caso em que o registro holográfico é feito na ausência de campo elétrico externo o campo que produz a variação de índice é o campo devido as cargas fotogeradas. Para  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  os respectivos coeficientes eletro-ópticos são  $r_{13} = 9.6\text{pm}/V$  e  $r_{33} = 30.9\text{pm}/V$  [12]. É interessante notarmos que para o mesmo campo a modulação de índice "vista" pela luz na direção (33) é cerca de 3 vezes maior que a modulação "vista" pela luz na direção (13). Considerando esse fato realizamos um estudo sobre o a influência do estado de polarização dos feixes de escrita no processo de registro holográfico e também, no processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ .

### 2.2.2 Dopantes em $\text{LiNbO}_3$

Em cristais fotorrefrativos os dopantes desempenham um papel fundamental no processo de registro holográfico. Em materiais fotorrefrativos tipo silenitas (BTO por exemplo), a presença de dopantes prejudica a formação do holograma. É possível que esses dopantes favoreçam a formação de buracos que é prejudicial a formação do holograma [17]. Em silenitas e outros materiais a condutividade no escuro é determinada pela presença de buracos. A condutividade no escuro determina o tempo de armazenamento do holograma registrado no volume do material. Dessa maneira uma grande condutividade no escuro é um inconveniente para o tempo de vida dos hologramas armazenados nesses materiais.

Em materiais como  $\text{LiNbO}_3$  a dopagem é fundamental para o processo de formação do holograma. O dopante mais eficiente neste material é o ferro. Outras impurezas introduzidas no cristal  $\text{LiNbO}_3$  bastante estudada são o Cu e Mn [18, 19, 20]. Karsten Buse *et al* [5] utilizou o cristal  $\text{LiNbO}_3$  dopando com Fe e Mn para obter uma rede fixa no volume do material.

Uma impureza muito importante no processo de fixação de hologramas em cristais  $\text{LiNbO}_3$  é o hidrogênio. O hidrogênio é encontrado em uma grande variedade de materiais sob a forma de  $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{CH}_4$  e outras entidades iônicas e moleculares. O hidrogênio pode estar presente como impureza indesejável no início do processo químico ou introduzido sem intenção durante o processo de crescimento. Pode também ser introduzido através de um processo de dopagem programada. A quantidade de hidrogênio e o

seu papel em diferentes materiais depende do material e de suas propriedades. Em componentes óxidos, o hidrogênio é mais comum ser encontrado na forma de íon molecular  $\text{OH}^-$  [21].

Em  $\text{LiNbO}_3$ , hidrogênio tem sido encontrado na forma de íon molecular  $\text{OH}^-$ , e sua importância tem sido estudada devido a relevância tecnológica desse material. Algumas aplicações importante do  $\text{LiNbO}_3$  são baseadas nas propriedade do íon  $\text{OH}^-$ , tal a fabricação de filtro de Bragg [22].

### 2.2.3 O ferro como dopante em $\text{LiNbO}_3$

O ferro como dopante em  $\text{LiNbO}_3$  desempenha uma papel fundamental para o efeito fotorrefrativo. O ferro neste cristal aparece como  $\text{Fe}^{2+}$  e  $\text{Fe}^{3+}$ . O papel de cada espécie no efeito fotorrefrativo é bem determinado, o  $\text{Fe}^{2+}$  atua como doador de elétrons e o  $\text{Fe}^{3+}$  como aceitador de elétrons. O  $\text{Fe}^{2+}$  é facilmente excitado através da absorção de radiação de determinada energia. O elétron foto-excitado vai até a banda de condução e por algum mecanismo (difusão por exemplo) se difunde pela banda até ser capturado por um aceitador  $\text{Fe}^{3+}$ .

As concentrações de  $\text{Fe}^{2+}$  e  $\text{Fe}^{3+}$  podem ser controladas por um processo de tratamento térmico a alta temperatura em atmosferas oxidantes ou redutoras. Durante o tratamento de redução aumenta-se a concentração de  $\text{Fe}^{2+}$  e diminui a concentração de  $\text{Fe}^{3+}$ . O estado de redução determina a absorção da amostra na região visível. O estado de oxidação dos cristais  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  tem um papel importante no processo de fixação de hologramas [8, 7]. O estado de oxidação das amostras é determinado pela relação entre as quantidade  $\text{Fe}^{2+}$  e  $\text{Fe}^{3+}$ . Verificou-se que para uma amostra fortemente oxidada há um deslocamento da rede eletrônica em relação a rede iônica durante o processo de revelação com luz uniforme da rede fixada em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  a temperatura ambiente [9].

### 2.2.4 Dopagem com hidrogênio

O hidrogênio está presente no crescimento de cristais de  $\text{LiNbO}_3$  nominalmente puro em atmosfera de ar, na maior parte na forma de ions  $\text{OH}^-$ , em concentrações entre  $10^{24}$  a  $10^{25} \text{ m}^{-3}$ . O modo mais fácil de determinar a concentração de  $\text{OH}^-$  é medindo a banda de absorção associada a vibração do íon  $\text{OH}^-$ . A quantidade de hidrogênio fica

determinada pela semente (que da origem ao cristal) e/ou pelo processo de crescimento. O cristal  $\text{LiNbO}_3$  é crescido pelo método Czochralski em atmosfera de ar. O ar sempre contém um certo grau de umidade rica em  $\text{OH}^-$  que são incorporados na rede [23]. O crescimento dos cristais também é realizado em diferentes atmosferas contendo diferentes concentrações de  $\text{OH}^-$ . Exemplos típicos são atmosferas ricas em vapor de água que produzem concentrações da ordem de  $10^{26} \text{ m}^{-3}$  e em atmosferas de oxigênio puro que produzem concentrações acima de  $10^{24} \text{ m}^{-3}$ .

Hidrogênio também pode ser introduzido na rede após o crescimento do cristal através de um tratamento térmico em atmosfera de hidrogênio ou atmosfera rica em vapor d'água sob pressão entre 1 – 30 bar e temperaturas acima de  $400^\circ\text{C}$  [17 – 20]. Nas temperaturas ao redor de  $700^\circ\text{C}$  uma concentração homogênea de  $\text{OH}^-$  é atingida em poucas horas. Usualmente, a atmosfera de vapor d'água é a mais utilizada porque produz amostras transparentes (*amostras oxidadas*). Tratamento térmico em hidrogênio puro e em mistura de hidrogênio produz cristais fortemente reduzidos, exibindo coeficiente de absorção na região do visível entre 50 e  $200 \text{ cm}^{-1}$ . Uma rápida reoxidação da amostra perto de  $900^\circ\text{C}$  faz com que a amostra torne-se transparente novamente, podendo ocorrer de modo geral alguma perda de hidrogênio. Por outro lado, hidrogênio pode ser *removido* da rede do  $\text{LiNbO}_3$  por um tratamento térmico à vácuo a temperatura de  $400^\circ\text{C}$  [19, 20]. O hidrogênio aparentemente sai da rede na forma de moléculas de  $\text{H}_2\text{O}$ , e conseqüentemente uma forte redução é também produzida. O cristal pode ser depois oxidado por tratamento em atmosfera de oxigênio puro em temperatura de  $900^\circ\text{C}$ , tendo especial cuidado em evitar vapor de água e traços de  $\text{OH}^-$ .

Uma outra forma de introduzir hidrogênio em  $\text{LiNbO}_3$  consiste em submergir a amostra em ácido quente ( $150 - 400^\circ\text{C}$ ). Esse ácido é rico em próton livres que tendem a entrar na rede enquanto o ion  $\text{Li}^+$  sai da rede em processo chamado proton-exchange. A troca ocorre em uma camada fina de alguns micros de espessura produzindo guias de ondas [21].

## 2.3 Formação do Holograma em LiNbO<sub>3</sub>:Fe

A formação do holograma está baseada no movimento de portadores de cargas no volume do material. A seguir descreveremos as possíveis causas do movimento dos portadores de carga pelo volume do material e também o modelo que descreve a formação do holograma em cristais fotorrefrativos, em especial no cristal LiNbO<sub>3</sub>:Fe.

### 2.3.1 Corrente de Arraste

O movimento dos portadores de cargas resultante da interação coulombiana de um campo elétrico externo com os portadores de cargas é conhecido como corrente de arraste. Essa densidade de corrente é definida da seguinte forma;

$$\vec{J}_{\text{drift}} = \sigma \vec{E} \quad (2.7)$$

$$\sigma = q\mu n \quad (2.8)$$

onde  $\sigma$  é a condutividade do meio,  $\vec{E}$  o campo elétrico,  $q$  a carga eletrônica,  $\mu$  a mobilidade e  $n$  a densidade de carga livre (elétrons na banda de condução e buracos na banda de valência). O campo  $\vec{E}$  consiste de dois termos, o campo elétrico externo e o campo elétrico devido as cargas fotogeradas.

### 2.3.2 Corrente de Difusão

Em decorrência da geração e concentração de cargas no local iluminado, aparece uma corrente regida pela difusão das cargas na banda de condução, a corrente de difusão é definida como

$$\vec{J}_{\text{dif}} = \pm qD\nabla n \quad (2.9)$$

$$D = \frac{\mu k_B T}{q} \quad (2.10)$$

onde  $D$  é o coeficiente de difusão,  $T$  a temperatura e  $k_B$  a constante de Boltzman. Os sinais  $\pm$  correspondem a condutividade por elétrons ( $-$ ) ou por buracos ( $+$ ).

### 2.3.3 Corrente Fotovoltaica

Em alguns materiais como LiNbO<sub>3</sub>:Fe, podemos gerar uma fotocorrente mesmo sem a aplicação de uma campo externo. Segundo Glass et al.[24] essa corrente se deve a

uma assimetria na rede cristalina. Os portadores de cargas (elétrons ou buracos) que são excitados de posições assimétricas, podem ser forçados pelos átomos vizinhos, a se moverem para certa direção [11, 13]. A densidade de corrente gerada é dada por

$$J_{\text{ph}} = \beta_{ijk} E_j E_k^* \quad (2.11)$$

onde  $E_j$  é a componente do campo elétrico da luz incidente sobre o cristal e  $\beta_{ijk}$  é o tensor fotovoltaico [11]. Para hologramas registrados em cristais eletro-ópticos que possuem efeito fotovoltaico a densidade de corrente mostrada na equação (2.11) fica

$$J_{\text{ph}} = \kappa_{\text{ph}} \alpha I \quad (2.12)$$

onde  $\kappa_{\text{ph}}$ ,  $\alpha$  e  $I$  são a constante fotovoltaica, o coeficiente de absorção e a intensidade da luz, respectivamente. No registro de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  a corrente fotovoltaica domina em relação ao corrente de difusão e a de arraste.

### 2.3.4 Modelo de Transporte de Bandas

O processo de registro holográfico é descrito pelo modelo de transporte de bandas [2]. O modelo considera que portadores de cargas, elétrons ou buracos, são excitados de centros doadores ou centros aceitadores para a banda de condução ou banda de valência. Os portadores de cargas negativas (elétrons) vão para a banda de condução e os portadores de cargas positivas (buracos) para a banda de valência. Esses portadores de cargas, após múltiplas excitações e recombinações, acabam acumulando-se nas regiões escuras do cristal. A conseqüente separação de cargas resulta em um campo elétrico que modula o índice de refração do cristal via efeito eletro-óptico.

As equações que descrevem a formação de hologramas em cristais fotorrefrativos são [25]

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial N_D^+}{\partial t} + \frac{1}{q} \nabla \cdot \vec{J}, \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = (N_D - N_D^+)(sI + \beta) - \gamma_R N_D^+ n, \quad (2.14)$$

$$\vec{J} = \vec{J}_{\text{dif}} + \vec{J}_{\text{drift}} + \vec{J}_{\text{ph}} \quad (2.15)$$

e

$$\vec{\nabla} \cdot (\epsilon_0 \epsilon \vec{E}) = q(N_D^+ - N_A - n). \quad (2.16)$$

A equação da continuidade para os elétrons móveis na banda de condução é descrita pela equação (2.13), onde  $n$  representa a densidade de elétrons livres na banda de condução,  $N_D^+$  a densidade de doadores ionizados e  $\vec{J}$  a densidade de corrente. Para o cristal utilizado neste trabalho os centros doadores e aceitadores são respectivamente  $Fe^{2+}$  e  $Fe^{3+}$ . O primeiro termo dessa equação descreve a taxa de geração e recombinação dos elétrons, e está representado pela equação (2.14), o segundo termo descreve a densidade de corrente gerada pela fotoexcitação. A densidade de corrente é composta pela corrente de difusão, arraste e pela corrente devido ao efeito fotovoltaico. Para cristais como o  $LiNbO_3:Fe$  o campo fotovoltaico é maior que os campos de difusão e o campos comumente aplicados externamente. A densidade de corrente fotovoltaica ilustrada na equação (2.12) pode ser escrita da seguinte forma

$$J_{ph} = \kappa_{ph}sI(N_D - N_D^+) \quad (2.17)$$

onde  $s$  é a seção eficaz de choque para a fotoexcitação.

A equação (2.14) é a equação da continuidade para os doadores ionizados, onde  $N_D$  é a densidade total de doadores,  $s$  é seção eficaz de choque para a fotoexcitação,  $I$  é a intensidade da luz no cristal,  $\beta$  a taxa com que os elétrons são excitados termicamente e  $\gamma_R$  a constante de recombinação. Os doadores ionizados são imóveis e por isso a equação (2.14) não contém um termo correspondente à densidade de corrente. A equação de Gauss para o sistema é dada pela equação (2.16), onde  $\epsilon_0$ ,  $\epsilon$  e  $N_A$  são a permeabilidade do vácuo, a constante dielétrica do material e a densidade de centros negativos não fotoativos, respectivamente. O termo  $N_A$  aparece para manter a neutralidade elétrica do material no equilíbrio, quando  $N_A = N_D^+$ .

Através da solução das equações (2.13), (2.14), (2.15) e (2.16) podemos determinar o valor do campo elétrico que modula o índice de refração do material. Elas formam um sistema de equações não lineares. Esse conjunto de equações só pode ser resolvido analiticamente através de um processo de linearização, tal processo é conhecido como aproximação do primeiro harmônico espacial [2].

Quando incidimos, sobre um cristal fotorrefrativo um padrão de luz

$$I(x) = I_0[1 + |m| \cos(Kx)] \quad (2.18)$$

onde  $I_0$  é a intensidade incidente sobre o cristal,  $|m|$  a visibilidade das franjas e  $K$  sendo dado por

$$K = \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (2.19)$$

onde  $\Lambda$  é o período do padrão luminoso, excitamos elétrons para a banda de condução, e um holograma de fase no volume aparece.

A aproximação do primeiro harmônico espacial, mencionada acima, é válida quando temos um padrão de luz sobre o cristal com pequena visibilidade, ou seja  $|m| \ll 1$ . Na aproximação do primeiro harmônico espacial, podemos escrever as variáveis dinâmicas,  $N_D^+$ ,  $n$  e  $E$  da seguinte forma [26]

$$Q(x, t) = Q_0 + \frac{1}{2}[Q_1(t) \exp(iKx) + c.c], \quad (2.20)$$

onde  $Q_0$  representa a parte estacionária e  $Q_1$  a amplitude da parte modulada e  $c.c$  o complexo conjugado. Utilizando a equação (2.20) para  $N_D^+$ ,  $n$  e  $E$ , temos

$$n(x, t) = n_0 + \frac{1}{2}[n_1(t) \exp(iKx) + c.c], \quad (2.21)$$

$$N_D^+(x, t) = N_D^0 + \frac{1}{2}[N_D^1(t) \exp(iKx) + c.c], \quad (2.22)$$

$$E(x, t) = E_0 + \frac{1}{2}[E_{sc}(t) \exp(iKx) + c.c], \quad (2.23)$$

onde  $E_0$  representa o campo externo aplicado e  $E_{sc}$  a amplitude do campo gerado pelas cargas. Substituindo as equações (2.21, 2.22, 2.23), no conjunto de equações (2.13, 2.14, 2.15, 2.16) e considerando que o tempo de recombinação ( $\tau$ ) dos elétrons é muito menor que o tempo de registro ( $\tau_{sc}$ ) [26], e considerando apenas termos de primeira ordem, ausência de campo externo aplicado e que  $sI_0 \gg \beta$ , podemos escrever a equação para a variação temporal do campo elétrico que modula o índice de refração do material da seguinte forma

$$\frac{\partial E_{sc}(t)}{\partial t} = -\frac{m(E_{ph} + iE_D) + E_{sc}(t)(1 + K^2l_s^2 - iKl_{ph}\frac{N_D^+}{N_D})}{\tau_M(1 + K^2L_D^2)} \quad (2.24)$$

ou

$$\tau_{sc} \frac{\partial E_{sc}(t)}{\partial t} + E_{sc}(t) = -mE_{\text{eff}}, \quad (2.25)$$

onde

$$E_{\text{eff}} = \frac{E_{ph} + iE_D}{1 + K^2l_s^2 - iKl_{ph}\frac{N_D^+}{N_D}}, \quad (2.26)$$

e

$$\tau_{sc} = \tau_M \frac{1 + K^2 L_D^2}{1 + K^2 l_s^2 - iKl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D}}, \quad (2.27)$$

onde  $L_D$ ,  $l_s$ ,  $E_D$  e  $\tau_M$  são o comprimento de difusão dos elétrons, o comprimento de blindagem de Debye, o campo de difusão e o tempo de relaxação dielétrica respectivamente, sendo definidos como

$$L_D = \sqrt{D\tau} \quad \tau = (\gamma_R N_D^+)^{-1}, \quad (2.28)$$

$$K^2 l_s^2 = \frac{E_D}{E_q} = K^2 \frac{\epsilon \epsilon_0 k_B T}{q^2 N_{\text{eff}}}, \quad (2.29)$$

$$E_D = K \frac{k_B T}{q}, \quad (2.30)$$

$$\tau_M = \frac{\epsilon \epsilon_0}{qn_0 \mu}, \quad (2.31)$$

$$n_0 = \frac{sI_0(N_D - N_D^+)}{\gamma_r N_D^+} \quad (2.32)$$

e

$$Kl_{ph} = \frac{E_{ph}}{E_q} \quad (2.33)$$

$$E_q = \frac{qN_{\text{eff}}}{K\epsilon\epsilon} \quad (2.34)$$

onde  $T$  a temperatura,  $q$  a carga do portador e  $k_B$  a constante de Boltzmann. A equação (2.34) é o campo de saturação e  $N_{\text{eff}}$  a densidade efetiva de centros. A equação (2.27) determina o tempo de escrita e apagamento do holograma. É interessante notarmos que o tempo de relaxação  $\tau_M$  esta ligado a condutividade do material. Para o cristal,  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , utilizado neste trabalho é fácil mostrar que a condutividade do material é diretamente proporcional a relação  $[Fe^{2+}]/[Fe^{3+}]$ , ou seja, para uma mesma intensidade de luz amostras oxidadas são mais lentas do que as amostras reduzidas. Esse fato ficara evidente quando estudarmos o processo de registro auto-estabilizado.

No estado estacionário, a amplitude do campo que modula o índice de refração pode ser escrita na forma

$$E_{sc} = -m \frac{(E_{ph} + iE_D)}{1 + K^2 l_s^2 - iKl_{ph} \frac{N_A}{N_D}}. \quad (2.35)$$

A equação (2.24) descreve a evolução temporal do campo elétrico que modula o índice de refração do material, para um padrão de luz estacionário. Podemos ver através da equação (2.25) que a evolução do holograma (escrita e apagamento) também depende

fortemente do estado de oxidação da amostra. Podemos notar que para amostras reduzidas tanto a escrita como o pagamento seguem uma lei exponencial. Para amostras oxidadas há durante a escrita um deslocamento do holograma. Como podemos notar, o efeito do estado de oxidação é fundamental na cinética da formação do holograma. Já em outros materiais como o  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  a cinética fica determinada entre outras coisas pela forte absorção que esse material apresenta [27]. Para amostras reduzidas a evolução do holograma é dada por

$$E_{sc}(t) = mE_{ph}(1 - e^{-t/\tau_M}) \quad (2.36)$$

Para amostras oxidadas a evolução do holograma pode ser escrita da seguinte forma

$$E_{sc} = mE_{\text{eff}}[1 - e^{-(\omega_R + i\omega_I)t}] \quad (2.37)$$

onde

$$E_{\text{eff}} = \frac{E_{ph} + iE_D}{1 + K^2 l_s^2 - iK l_{\text{ph}} \frac{N_D^+}{N_D}}, \quad (2.38)$$

$$\omega_R = \frac{1}{\tau_M} \frac{1 + K^2 l_s^2}{1 + K^2 L_D^2} \quad (2.39)$$

$$\omega_I = -\frac{1}{\tau_M} \frac{K l_{\text{ph}}}{(1 + K^2 L_D^2)^2} \quad (2.40)$$

## 2.4 Eficiência de Difração

Um dos parâmetros mais importantes no estudos dos cristais fotorrefrativos é a eficiência de difração. A eficiência de difração mede a quantidade de luz que uma rede é capaz de difratar. Através da medida da eficiência de difração podemos caracterizar o cristal fotorrefrativo [28, 27]. Estudaremos a eficiência de difração durante a formação do holograma na presença da auto-difração e também a eficiência de difração para hologramas fixos. Para os hologramas fixos, que estudaremos mais adiante, a eficiência de difração será pela relação determinada através da teoria das ondas acopladas de Kogelnik [29].

### 2.4.1 Auto-Difração

Durante a formação do holograma há a interação dos feixes de luz que são utilizados para a gerar o holograma com o holograma que está sendo gravado, a esse fenômeno damos

o nome de auto-difração. A auto-difração também é responsável pelo "entortamento" do holograma [6]. Esse entortamento do holograma deve-se a dependência que a fase da onda tem com a espessura do material, ou seja, durante a formação do holograma a fase da onda não é constante no volume do material. Esse entortamento do holograma é responsável por um deslocamento da condição de Bragg. Esse deslocamento da condição de Bragg dificulta a medida real da eficiência de difração. O efeito da auto-difração é mais pronunciado em cristais nos quais podemos gravar hologramas altamente eficiente e também em cristais espessos. Para determinados cristais e para determinadas condições experimentais o efeito da auto-difração pode ser minimizado. Neste trabalho utilizamos o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para o registro do holograma e fixação do mesmo. Neste material o uso do registro auto-estabilizado e a utilização dos feixes de escrita com mesma intensidade minimiza o efeito da auto-difração. A eficiência de difração na presença de auto-difração (ver apêndice A) fica determinada pela seguinte relação [2]

$$\eta = \frac{2\beta^2}{1 + \beta^2} \frac{\cosh(\Gamma d/2) - \cos(\gamma d/2)}{\beta^2 e^{-\Gamma d/2} + e^{\Gamma d/2}} \quad (2.41)$$

onde

$$\Gamma = \frac{2\pi n^3 r_{\text{eff}}}{\lambda \cos \theta} \Im\{E_{sc}/m\} \quad (2.42)$$

$$\gamma = \frac{2\pi n^3 r_{\text{eff}}}{\lambda \cos \theta} \Re\{E_{sc}/m\} \quad (2.43)$$

$$\tan \phi = \frac{\Gamma}{\gamma} \quad (2.44)$$

onde  $d$  é a espessura do cristal (na direção  $z$ ),  $\theta$  o ângulo de incidência dentro do material,  $n$  o índice de refração,  $r_{\text{eff}}$  o coeficiente eletro-óptico,  $\Re\{E_{sc}\}$  e  $\Im\{E_{sc}\}$  representam as partes real e imaginária do campo  $E_{sc}$ ,  $\beta^2 = I_R(0)/I_S(0)$  com  $I_R(0)$  e  $I_S(0)$  sendo as intensidades dos feixes de escrita e  $\phi$  a fase holográfica, ou seja, a diferença de fase entre o holograma e o padrão de luz. A fase da onda durante a escrita do holograma na presença da auto-difração pode ser escrita da seguinte forma [30]

$$\tan \varphi = \frac{\sin \frac{\gamma d}{2}}{\frac{1-\beta^2}{1+\beta^2} \left( \cosh \frac{\Gamma d}{2} - \cos \frac{\gamma d}{2} \right) + \sinh \frac{\Gamma d}{2}} \quad (2.45)$$

onde  $\varphi$  é a diferença de fase entre os feixes transmitido e difratado ao longo da mesma direção.

### 2.4.2 Eficiência de difração para hologramas fixos

A relação que determina a eficiência de difração dos hologramas fixos pode ser facilmente demonstrada (ver apêndice (A) através da teoria das ondas acopladas de Kogelnik [29]). A eficiência de difração pode ser escrita, para os cristais fotorrefrativos, da seguinte forma

$$\eta = \sin^2 \left[ \frac{\pi n^3 r_{\text{eff}} |E_{sc}| d}{2\lambda \cos\theta} \right] \quad (2.46)$$

onde  $n$ ,  $r_{\text{eff}}$ ,  $|E_{sc}|$ ,  $\lambda$ ,  $\theta$  e  $d$  são o índice de refração do material, elemento do tensor eletro-óptico, o módulo do campo elétrico que modula o índice de refração, o comprimento de onda, o ângulo de incidência dentro do material e a espessura da rede, respectivamente.

# Capítulo 3

## Registro Estabilizado

### 3.1 Introdução

O registro holográfico em cristais fotorrefrativos está sujeito as perturbações provocadas pelo ambiente e/ou pelas condições experimentais. Em certos materiais fotorrefrativos, como  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$  a aplicação de campo externo é de fundamental importância para o aumento da eficiência de difração, entretanto a aplicação de campo externo pode perturbar a formação do holograma [31]. Como já mencionado antes, o cristal utilizado neste trabalho é o  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . O registro holográfico neste material é fortemente influenciado pelo seu estado de oxidação. Com esse material podemos facilmente gravar hologramas com 100% de eficiência de difração, porém o registro de tal rede, dependendo do estado de oxidação é lento. Para amostras oxidadas o tempo de escrita até 100% de eficiência de difração é mais lento que para amostras reduzidas, para a mesma intensidade de luz e pode demorar de minutos a horas. Dessa forma é necessário que o registro do holograma seja isento de qualquer perturbação de modo que o processo de gravação seja eficiente. Para isso devemos gravar o holograma utilizando a técnica do registro auto-estabilizado. Essa técnica além de minimizar os efeitos das perturbações devido ao sistema, também possibilita o registro de uma rede com 100% de eficiência de difração para qualquer condição experimental. Faremos neste trabalho uma diferença entre o registro estabilizado e o registro auto-estabilizado. Registro estabilizado é aquele em que utilizamos alguma referência externa para fixar o padrão de franjas na face de entrada do material. Nessa condição não há qualquer relação entre o sinal que está sendo utilizado

para estabilizar as franjas com o holograma que esta sendo gravado. Já o registro auto-estabilizado consiste em utilizar o próprio holograma como referência para estabilizar o padrão de franjas. Veremos que o processo de registro auto-estabilizado é fortemente dependente do estado de oxidação das amostras. Registro auto-estabilizado em amostras reduzidas produz um holograma estático, já em amostras oxidadas há a formação de um holograma em movimento.

O registro auto-estabilizado consiste em um sistema opto-eletrônico de retro-alimentação. Modulando a fase de um dos feixes de escrita produzimos sinais harmônicos que dependem da frequência de modulação e da fase entre os feixes transmitido e difratado na saída do cristal. Veremos mais adiante que o sinal de segundo harmônico, produzido pela modulação na fase é diretamente proporcional entre outras coisas ao cosseno da fase  $\varphi$  entre os feixes transmitido e difratado na saída do cristal. A condição natural de registro holográfico para o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é  $\varphi = \pi/2$  para amostras reduzidas. Nessa condição temos o sinal de segundo harmônico igual a zero, então podemos utilizar esse sinal como sinal de erro. Então para qualquer deslocamento dessa condição de  $\varphi = \pi/2$  o sistema irá corrigir esse deslocamento de modo a manter a fase  $\varphi$  em  $\pi/2$ . Mantendo a fase  $\varphi$  em  $\pi/2$  haverá a formação de holograma estático. Já em amostras oxidadas a fase  $\varphi$  não é nem  $\pi/2$  nem constante durante o registro [7]. Dessa forma, para manter o padrão fixo, o sistema obrigará a fase  $\varphi$  a ser sempre  $\pi/2$ . Porém, como essa não é a condição natural de registro para as amostras oxidadas, o holograma se posiciona em relação ao padrão de franjas em uma posição diferente daquela que seria se a amostra fosse reduzida. Devido a isso, o holograma é escrito em posições diferentes de forma que um holograma em movimento aparece. Os hologramas em movimento são muito úteis na caracterização dos cristais fotorrefrativos [27, 32]. O registro auto-estabilizado, como veremos a seguir, mostrou-se mais eficiente para se obter redes com 100% de eficiência de difração em relação ao registro não auto-estabilizado. Veremos que o registro auto-estabilizado minimiza os efeitos de acoplamento de fase e amplitude, permitindo que gravemos uma rede com alta eficiência de difração em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Pelo fato do registro não auto-estabilizado não evitar os efeitos de acoplamento de fase e amplitude não permite gravar um holograma altamente eficiente. Registro auto-estabilizado mostrou-se também muito eficiente no processo de escrita e fixação simultânea de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  a alta temperatura.

Tal procedimento será descrito mais adiante onde falaremos do processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ .

## 3.2 Modulação de Fase

O registro holográfico auto-estabilizado em cristais fotorrefrativos é baseado na técnica da modulação de fase [33]. Quando incidimos em um cristal fotorrefrativo um padrão de luz da forma

$$I(x) = I_0[1 + |m| \cos(Kx)], \quad (3.1)$$

onde  $m$  é a visibilidade das franjas e  $I_0$  a intensidade total incidente sobre o cristal e  $K$  a frequência espacial da rede (holograma), damos origem a um holograma de fase no volume do material [26]. A intensidade de luz na direção dos feixes pode ser escrita na forma [34]

$$I_S = I_S^0(1 - \eta) + I_R^0\eta \pm 2\sqrt{I_S^0 I_R^0} \sqrt{\eta(1 - \eta)} \cos \varphi \quad (3.2)$$

onde  $\varphi$  é a diferença de fase entre os feixes transmitido e difratado na saída do cristal. Os sinais ( $\pm$ ) estão relacionados ao sentido da troca de energia entre os feixes de escrita. O sinal (+) determina que o ganho é positivo e o sinal (−) indica ganho negativo. A escolha do sentido da troca de energia, ou seja, o sinal do ganho, é importante para a estabilidade do processo de registro holográfico sem realimentação em cristais fotorrefrativos na presença de campo externo [31].

A técnica de modulação de fase consiste em modularmos um dos feixes de escrita da seguinte forma [33]

$$\varphi \rightarrow \varphi + \psi_d \sin(\Omega t) \quad (3.3)$$

onde  $\psi_d$  é a amplitude da oscilação de frequência  $\Omega$  provocada pelo modulador de fase. Substituindo a equação (3.3) na equação (3.2) temos

$$I_S = I_S^0(1 - \eta) + I_R^0\eta \pm 2\sqrt{I_S^0 I_R^0} \sqrt{\eta(1 - \eta)} \cos[\varphi + \psi_d \sin(\Omega t)] \quad (3.4)$$

onde o termo  $\cos[\varphi + \psi_d \sin(\Omega t)]$  pode ser escrito na forma

$$\begin{aligned} \cos[\varphi + \psi_d \sin(\Omega t)] = & \cos \varphi [J_0(\psi_d) + 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n}(\psi_d) \cos(2n\Omega t)] - \\ & - \sin \varphi [2 \sum_{n=0}^{\infty} J_{2n+1}(\psi_d) \sin[(2n+1)\Omega t]], \end{aligned} \quad (3.5)$$

sendo os termos  $J_0(\psi_d)$ ,  $J_{2n}(\psi_d)$  e  $J_{2n+1}(\psi_d)$  as funções de Bessel. Com isso, a equação (3.4) pode ser escrita em termos dos harmônicos em  $\Omega$  de tal forma que

$$I_S = I_S^{dc} + 2I_S^\Omega \sin \Omega t + 2I_S^{2\Omega} \cos 2\Omega t + 2I_S^{3\Omega} \cos 3\Omega t + \dots \quad (3.6)$$

As amplitudes para o primeiro e segundo harmônicos são dadas por

$$I_S^\Omega = 4J_1(\psi_d) \sqrt{I_S^0 I_R^0} \sqrt{\eta(1-\eta)} \sin \varphi \quad (3.7)$$

$$I_S^{2\Omega} = 4J_2(\psi_d) \sqrt{I_S^0 I_R^0} \sqrt{\eta(1-\eta)} \cos \varphi \quad (3.8)$$

Como podemos notar pelas equações (3.7) e (3.8) as amplitude são proporcionais à raiz da eficiência de difração. Com amplificadores *lock-in's* sintonizados em  $(\Omega)$  e  $(2\Omega)$ , podemos medir o valor de  $(\eta)$ . Através das equações (3.7) e (3.8) podemos também determinar a fase entre os feixes difratado e transmitido. A fase pode ser escrita como

$$\tan \varphi = \frac{J_2(\psi_d)}{J_1(\psi_d)} \frac{I_S^\Omega}{I_S^{2\Omega}}. \quad (3.9)$$

A medida da fase é um elemento importante na caracterização dos cristais foto-refrativos [30, 35, 9]. É interessante notarmos pelas equações (3.7) e (3.8) que o primeiro e o segundo harmônicos são proporcionais ao  $\sin \varphi$  e ao  $\cos \varphi$ , ( $\varphi$  diferença de fase entre os feixes difratado e transmitido), respectivamente. Fazendo uso dessa informação utilizaremos o sinal de segundo harmônico com sinal de erro em um sistema eletrônico de retroalimentação para a estabilização do processo de registro holográfico. O sistema de estabilização será descrito a seguir.

### 3.3 Sistema de Estabilização Holográfico

O processo de registro holográfico requer uma montagem experimental o mais estável possível, ou seja, com a menor perturbação externa possível. Mudanças no caminho óptico dos feixes, (por exemplo expansão térmica dos componentes ópticos) podem afetar fortemente o processo de registro holográfico. O registro estabilizado é importante pois permite obtermos dados mais estáveis e de maneira reproduzível. Frejlich [36] têm utilizado o sistema de estabilização para obter hologramas em movimento. A técnica dos hologramas em movimento utilizando o sistema de estabilização tem se mostrado muito

útil para a caracterização de cristais fotorrefrativos [32]. Nesse trabalho estaremos utilizando o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para fazer o registro holográfico e posteriormente a fixação do holograma registrado. Nesse cristal é muito fácil conseguir uma eficiência de difração de 100% utilizando o processo de registro estabilizado [37].

O sistema de estabilização é baseado na técnica da modulação de fase. A fase de um dos feixes é modulada com uma frequência  $\Omega$  (muito maior que o inverso tempo de resposta do material) e amplitude  $\psi_d$ . Como já foi visto anteriormente essa modulação produz termos harmônicos em  $\Omega$  dados por

$$I_S^\Omega = 4J_1(\psi_d)\sqrt{I_S^0 I_R^0}\sqrt{\eta(1-\eta)}\sin\varphi \quad (3.10)$$

$$I_S^{2\Omega} = 4J_2(\psi_d)\sqrt{I_S^0 I_R^0}\sqrt{\eta(1-\eta)}\cos\varphi \quad (3.11)$$

onde a fase  $\varphi$  está relacionada à fase holográfica, na ausência de auto-difração, por

$$\varphi = \phi \pm \frac{\pi}{2} \quad (3.12)$$

Na presença de auto-difração a fase  $\varphi$  é dada pela equação (2.45).

Para materiais não fotovoltaico na ausência de campo elétrico externo a fase holográfica é  $\phi = \pi/2$  e conseqüentemente  $\varphi = 0$  ou ( $\varphi = \pi$ ) [30]. Isso significa que no equilíbrio temos  $I_S^\Omega = 0$  e podemos utilizar  $I_S^\Omega$  como sinal de erro para operar o sistema de estabilização de modo a manter o sistema holográfico sempre fixo em  $\varphi = 0$ . O diagrama de blocos mostrado na figura (3.1) representa o sistema de estabilização.

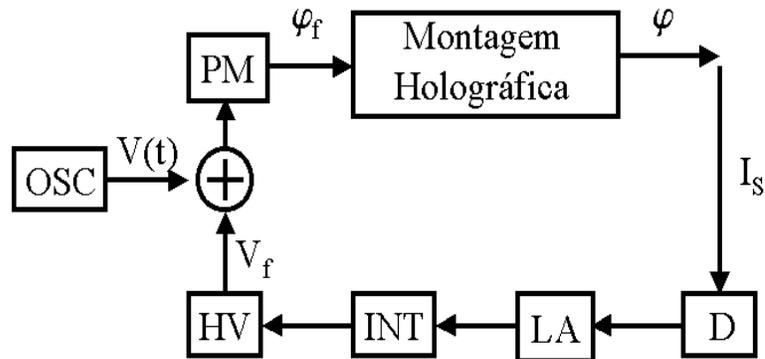


Figura 3.1: Diagrama de blocos mostrando o sistema de estabilização.

O fotodetector  $D$  transforma o sinal  $I_S$  na saída, em um sinal elétrico. As amplitudes

dos sinais de primeiro e segundo harmônicos são dadas por

$$V_S^\Omega = K_d^\Omega I_S^\Omega \quad (3.13)$$

$$V_S^{2\Omega} = K_{2d}^\Omega I_S^{2\Omega} \quad (3.14)$$

onde  $K_d^\Omega$  e  $K_{2d}^\Omega$  são a resposta do detector para as frequências  $\Omega$  e  $2\Omega$  respectivamente.

Um amplificador *lock-in LA* sintonizado em  $\Omega$  produz um sinal de correção dado por

$$V_C = A^\Omega V_S^\Omega \quad (3.15)$$

onde  $A^\Omega$  é a amplificação. Este sinal alimenta uma fonte de alta tensão *HV* que produz um sinal elétrico

$$V_f = K_0 V_C \quad (3.16)$$

onde  $K_0$  é a amplificação da fonte *HV*. O sinal  $V_f$  atua sobre um modulador de fase *PM* que produz uma fase de correção  $\varphi_f$

$$\varphi_f = K_{PM}^0 V_f = A \sin \varphi \quad (3.17)$$

$$A = 4K_{PM}^0 K_0 K_d^\Omega J_1(\psi_d) \sqrt{I_R^0 I_S^0} \sqrt{\eta(1-\eta)} \quad (3.18)$$

onde  $K_{PM}^0$  é a resposta do modulador de fase para  $\Omega = 0$ . A fase de correção é injetada na montagem holográfica de modo a corrigir todas as perturbações, fazendo dessa forma que o padrão de franjas permaneça fixo durante todo o processo de registro. Para materiais fotovoltaicos, que serão utilizados nesse trabalho, a fase holográfica  $\phi$ , como já dissemos depende do estado de oxidação da amostra e podendo dessa maneira variar. Para amostras fortemente reduzidas temos  $\phi = 0$  ou  $\pi$  e para amostras oxidadas pode variar,  $0 < \phi < \pi/2$ .

A figura (3.2) ilustra o resultado da operação do sistema de estabilização. Os dados da figura (3.2) foram obtidos durante o registro holográfico em um cristal de  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ , após alguns segundos de registro livre, acionamos o sistema de estabilização. Fica claro pela figura a importância do sistema de estabilização para o registro holográfico. O registro em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é lento em relação a outros materiais fotorrefrativos. Devido a esse fato quaisquer perturbações sobre o sistema pode fazer com que o holograma não

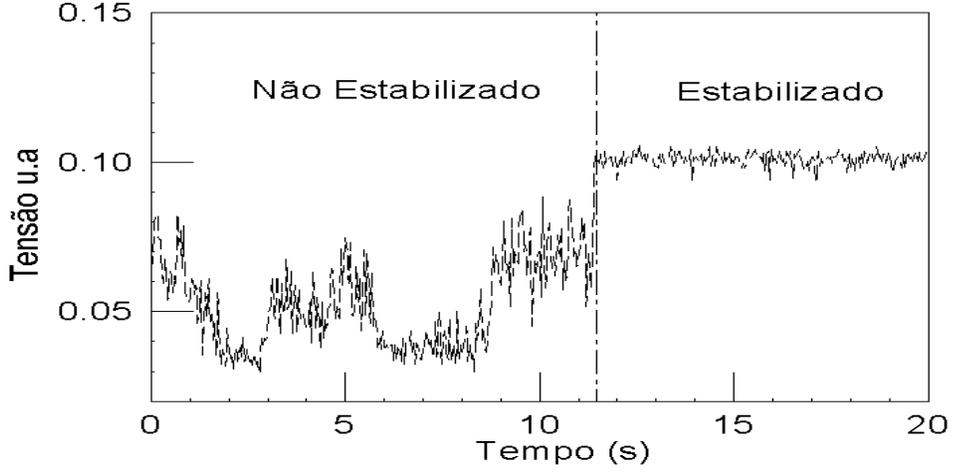


Figura 3.2: *Registro Holográfico-Não Estabilizado e Estabilizado*

seja muito eficiente. Esse comportamento indesejado, assim como o entortamento do holograma devido ao acoplamento de fase, pode ser evitado utilizando o processo de registro estabilizado.

### 3.3.1 Mistura de ondas

Na presença de auto-difração (mistura de ondas) há em geral, acoplamento de amplitude e/ou fase entre os feixes de interferência. Neste caso a expressão para a eficiência de difração da rede registrada é [2, 30]

$$\eta(d) = \frac{2\beta^2}{1 + \beta^2} \frac{\cosh \frac{\Gamma d}{2} - \cos \frac{\gamma d}{2}}{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} + e^{\frac{\Gamma d}{2}}} \quad (3.19)$$

onde

$$\Gamma = \frac{2\pi n^3 r_{\text{eff}}}{\lambda \cos \theta} \Im\{E_{\text{eff}}\} \quad (3.20)$$

$$\gamma = \frac{2\pi n^3 r_{\text{eff}}}{\lambda \cos \theta} \Re\{E_{\text{eff}}\} \quad (3.21)$$

e

$$\tan \phi = \frac{\Gamma}{\gamma} \quad (3.22)$$

onde  $d$  é a espessura do cristal (na direção  $z$ ),  $\theta$  o ângulo de incidência dentro do material,  $\Re\{E_{\text{eff}}\}$  e  $\Im\{E_{\text{eff}}\}$  representam as partes real e imaginária de  $E_{\text{eff}}$ ,  $\beta^2 = I_R(0)/I_S(0)$  com  $I_R(0)$  e  $I_S(0)$  as intensidades dos feixes de escrita e  $\phi$  a fase holográfica, ou seja, a diferença de fase entre o holograma e o padrão de luz.

Para o caso de amostras reduzidas é possível assumir que  $Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D} \ll 1$  e neste caso temos  $\omega_I \ll \omega_R$  e dessa forma a equação (2.26) simplifica para

$$E_{\text{eff}} \approx E_{ph} \quad (3.23)$$

Nesta situação  $\Gamma \approx 0$  e portanto a fase holográfica, diferença de fase entre o holograma e o padrão de franjas, fica sendo  $\phi \approx 0$  ou  $\pi$  (holograma local). Considerando esse fato e a equação (3.23) temos para a eficiência de difração

$$\eta(d) = \frac{4\beta^2}{(1 + \beta^2)^2} \sin^2(\gamma d/4) \quad (3.24)$$

A equação (3.24) é a um resultado conhecido [2, 30] para um holograma fora da condição de Bragg (holograma inclinado). Essa equação nos mostra que  $\eta < 1$  exceto para  $\beta^2 = 1$ . Para  $\beta^2 = 1$  temos um holograma na condição de Bragg e dessa forma podemos ter  $\eta = 1$ . Para amostras oxidadas a equação (2.26) fica

$$E_{\text{eff}} \approx E_{ph} \frac{1 + iKl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D}}{1 + (Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D})^2} \quad (3.25)$$

e

$$\tan \phi \approx Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D} \quad (3.26)$$

A fase holográfica neste caso depende fortemente do estado de oxidação da amostra.

Uma simulação da equação (3.24) como função de  $2\kappa d \equiv \sqrt{\Gamma^2 + \gamma^2}d/2$  para uma rede local ( $\phi = \pi$  ou  $\Gamma = 0$ ) é mostrada na figura (3.3) para diferentes valores de  $\beta^2$ . Aqui  $\kappa$  é a constante de acoplamento [29] e  $2\kappa d$  é a medida da evolução da modulação de índice de refração no volume da amostra. Esta figura mostra que  $\eta = 1$  é atingida somente para  $\beta^2 = 1$ , ou seja, somente neste caso não há holograma inclinado. Na figura (3.4) mostramos a evolução da eficiência de difração durante a escrita para amostras oxidadas para o registro não auto-estabilizado.

Uma visão mais geral é mostrada na figura (3.5) onde graficamos  $\eta$  como função de  $2\kappa d$  e  $\phi$  para  $\beta^2 = 1$  e  $\beta^2 = 10$ , curvas (a) e (b) respectivamente. Estas figuras confirmam que é possível atingir  $\eta = 100\%$  quando  $\phi = 0, \pi$  somente para  $\beta^2 = 1$ , mas também é possível mostrar que sempre há um par  $(2\kappa d, \phi)$  que permite atingir  $\eta = 1$  para qualquer  $\beta^2$ .

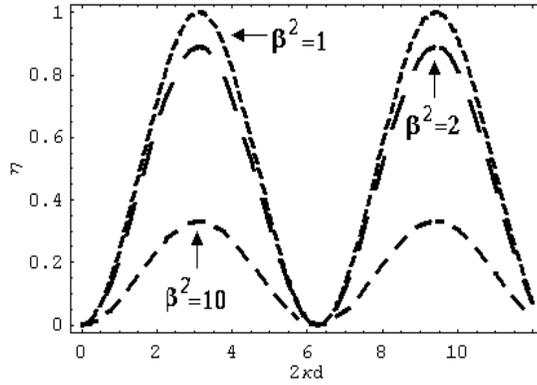


Figura 3.3: Eficiência de difração como função de  $2\kappa d$  para registro não auto-estabilizado em amostras reduzidas de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  ( $\Gamma = 0$ ,  $\phi = \pi$ ) para  $\beta^2 = 1, 2$  e  $10$ .

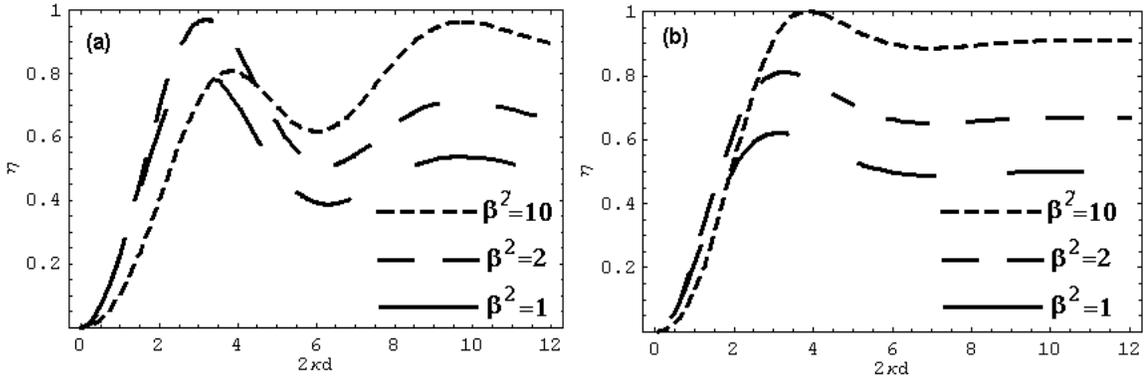


Figura 3.4: Eficiência de difração como função de  $2\kappa d$  para registro não auto-estabilizado em amostras oxidadas de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  ( $\Gamma \neq 0$ ) para  $\phi = 2.8\text{rad}$  (fig. a),  $\phi = 2.5\text{rad}$  (fig. b) e com  $\beta^2 = 1, 2$  e  $10$ .

### 3.4 Registro Auto-Estabilizado

Como já dissemos antes, o registro auto-estabilizado é fundamental para o registro holográfico em materiais fotorrefrativos, pois permite obter hologramas eficientes e de forma reproduzível. Nesta parte do trabalho mostraremos simulações teóricas e resultados experimentais sobre o registro auto-estabilizado em amostras de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  reduzidas e oxidadas. Substituindo as equações (2.41) para  $\eta$  e (2.45) para  $\varphi$  e rearranjando os termos temos que

$$I_S^\Omega = 4J_1(\psi_d)I_S^0(0)\frac{\beta^2 \sin \frac{\gamma d}{2}}{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} + e^{\frac{\Gamma d}{2}}} \quad (3.27)$$

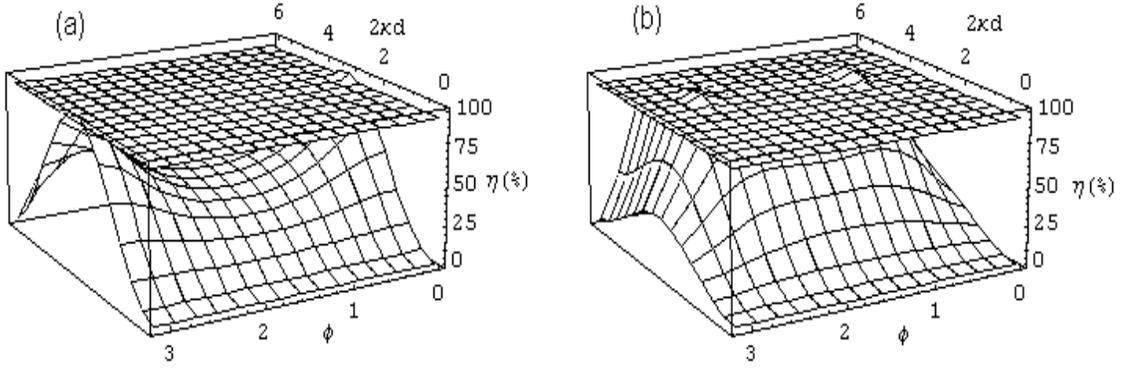


Figura 3.5: Eficiência de difração como função de  $2\kappa d$  e  $\phi$  para  $\beta^2 = 1$  curva (a) e para  $\beta^2 = 10$  curva (b).

$$I_S^{2\Omega} = 4J_2(\psi_d)I_S^0(0) \frac{\beta^2}{1 + \beta^2} \frac{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} - e^{\frac{\Gamma d}{2}} + (1 - \beta^2) \cos \frac{\gamma d}{2}}{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} + e^{\frac{\Gamma d}{2}}} \quad (3.28)$$

Em geral  $I_S^{2\Omega}$  não é zero, exceto para pontos singulares e dessa maneira  $\varphi$  e conseqüentemente  $\phi$  podem ter qualquer valor. Para o caso particular de amostra reduzida ( $\Gamma \approx 0$ )  $I_S^{2\Omega}$  é mostrado na figura (3.6) como função de  $2\kappa d$  para  $\beta^2 = 1, 2$  e  $10$ . Podemos ver que

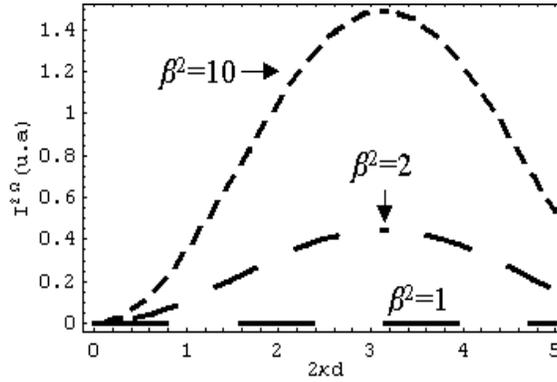


Figura 3.6: Segundo harmônico  $I_S^{2\Omega}$  como função de  $2\kappa d$  para  $\beta^2 = 1, 2$  e  $10$

para  $\beta^2 = 1$  sempre temos  $I_S^{2\Omega} = 0$ . Isto significa que para amostras reduzidas e  $\beta^2 = 1$  podemos usar o sinal  $I_S^{2\Omega}$  como sinal de erro para operar o sistema de estabilização, como descrito anteriormente e na referência [32]. Entretanto  $I_S^{2\Omega}$  pode ser utilizado como sinal de erro em qualquer condição, incluindo  $\beta^2 \neq 1$  e para  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  com qualquer grau de oxidação, ou seja, qualquer valor de  $\phi$ . Para entendermos esta possibilidade realizamos a condição  $I_S^{2\Omega} = 0$ , que significa  $\varphi = \pi/2$  na equação (3.8) e que substituída na equação

(2.45) produz a seguinte relação

$$\frac{1 - \beta^2}{1 + \beta^2} \left( \cosh \frac{\Gamma d}{2} - \cos \frac{\gamma d}{2} \right) + \sinh \frac{\Gamma d}{2} = 0 \quad (3.29)$$

substituindo a condição da equação (3.29) na equação (2.41) temos

$$\eta(d) = \frac{\beta^2}{1 - \beta^2} \frac{1 - e^{\Gamma d}}{\beta^2 + e^{\Gamma d}} \quad \text{para } \beta^2 \neq 1 \quad (3.30)$$

$$\eta(d) = \sin^2 \frac{\gamma d}{4} \quad \text{para } \beta^2 = 1 \quad (3.31)$$

as equações (3.30) e (3.31) descrevem a evolução da eficiência de difração durante o registro auto-estabilizado, como função de  $\Gamma d$ , onde a relação entre  $\Gamma d$ ,  $\gamma d$  e  $2\kappa d$  é fixado pela relação implícita (3.29). A equação (3.31) é o resultado conhecido para um holograma uniforme [29], enquanto a equação (3.30) é a expressão para uma rede não uniforme, devido ao termo não nulo de  $\Gamma$  que é responsável pelo acoplamento de amplitude. Uma ilustração mais geral da evolução de  $\eta$ ,  $\phi$  e  $I_S^\Omega$  como função de  $2\kappa d$  durante o processo de registro auto-estabilizado é mostrado nas figuras (3.7) e (3.8). Ambas figuras mostram um resultado óbvio que pode ser diretamente deduzido da equação (3.7): sabendo que  $\varphi$  é fixada em  $\pi/2$  temos  $I_S^\Omega = 0$  para o caso  $\eta = 0$  ou 1 e o máximo (em valor absoluto) ocorre para  $\eta = 0.5$ . Podemos notar pela figura (3.7) que durante todo o processo de registro auto-estabilizado (com  $\beta^2 \approx 1$ ) a fase  $\phi$  permanece praticamente constante ( $\approx \pi$ ). Isso garante que o padrão de franjas permaneça fixo (em uma posição fixa no espaço) durante o registro.

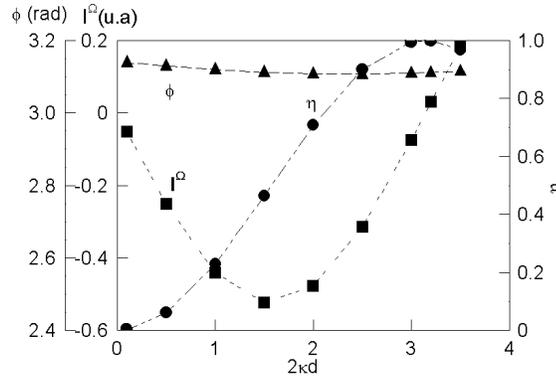


Figura 3.7: Evolução da eficiência de difração  $\eta$  (círculos),  $\phi$  (triângulos) e  $I_S^\Omega$  (quadrados), para registro auto estabilizado e  $\beta^2 = 1.1$ .

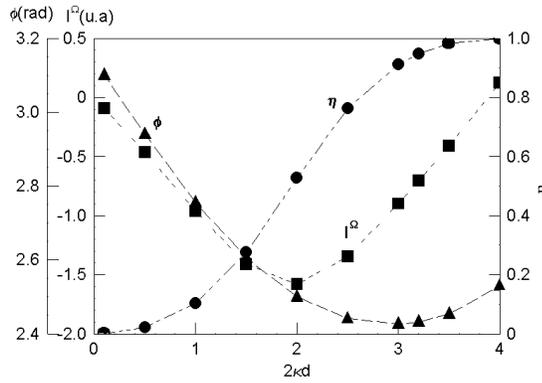


Figura 3.8: Evolução da eficiência de difração  $\eta$  (círculos),  $\phi$  (triângulos) e  $I_S^\Omega$  (quadrados), para registro auto estabilizado e  $\beta^2 = 10$ .

Na figura (3.8) mostramos que para  $\beta^2 \neq 1$ ,  $\phi$  não é zero nem tampouco  $\pi$  e nem é constante durante o processo de registro e portanto  $\phi$  não é o valor de equilíbrio para a amostra. Neste caso, devido a tal diferença de fase, entre o valor de equilíbrio e o de auto-estabilização, um holograma em movimento é gerado como descrito em detalhes na referência [32].

## 3.5 Experimentos

### Montagem Holográfica

Para o registro holográfico em  $LiNbO_3$  desenvolvemos uma montagem experimental. A montagem é composta por um conjunto de espelhos planos ( $M_1$ ,  $M_2$  e  $M_3$ ), colimadoras, filtros espaciais, objetivas, lâminas de retardo ( $\frac{\lambda}{2}$  e  $\frac{\lambda}{4}$ ), divisor polarizante de feixes (PBS), um espelho acoplado a um atuador pizeoelétrico (PZT) e uma fonte Laser. O divisor de feixes formado pelo PBS e as lâminas de retardo facilitam o ajuste das intensidades relativas dos feixes, diminuindo os riscos de desalinhamento da montagem. Um esquema da montagem é mostrada na figura (3.9). Uma característica importante dessa montagem é a facilidade com que podemos escolher a freqüência espacial. A geometria escolhida para a montagem representada na figura (3.9) facilita a mudança do ângulo entre os feixes, deixando sempre a diferença de caminho óptico nula a cada vez que um novo ângulo é escolhido. Com uma rotação nos espelhos  $M_2$  e  $M_3$  podemos mudar o ângulo entre os

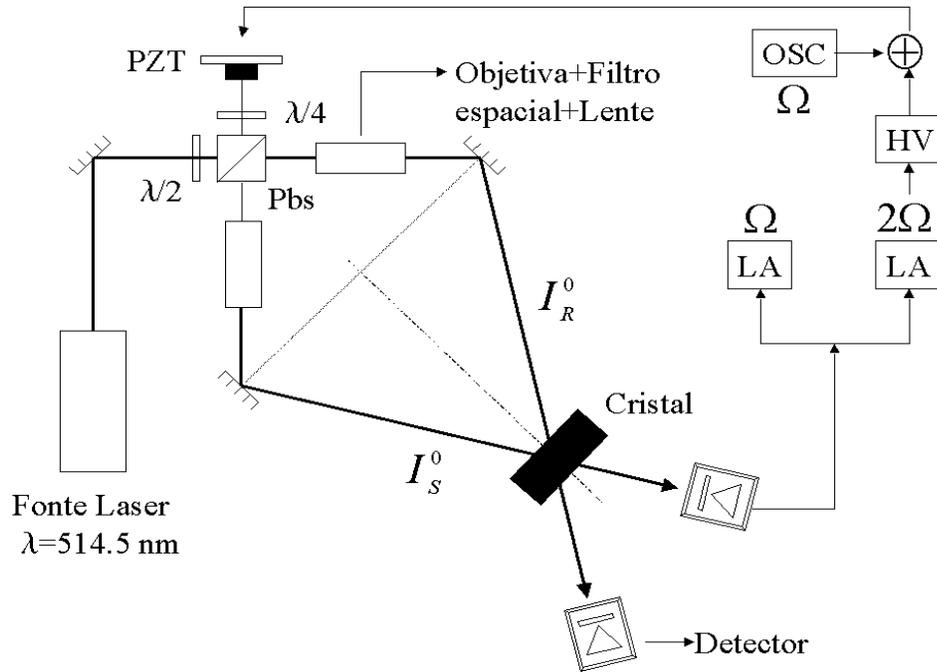


Figura 3.9: *Montagem Experimental*

feixes e dessa forma podemos escolher a frequência espacial. O ajuste da diferença de caminho óptico zero pode ser feita facilmente agindo apenas sobre a posição do (PZT). A modulação de fase utilizando o (PZT) com movimento normal ao feixe de luz evita a produção de modulação de amplitude que atrapalha a operação do sistema de medida e do sistema de estabilização.

### 3.5.1 Amostras-Preparação das amostras

Neste trabalho utilizamos amostras com diferentes estados de oxidação. A oxidação das amostras foi obtida através de um tratamento térmico a alta temperatura. A amostra (LNb1) mais oxidada foi tratada termicamente a  $950^{\circ}C$  em atmosfera de oxigênio durante 2 horas. Já a amostra mais reduzida (LNb3) foi tratada a vácuo e a  $750^{\circ}C$  durante 10 horas. A concentração de  $Fe^{2+}$  foi determinada através da medida do coeficiente de absorção em  $\lambda = 477nm$  conforme [38]. A concentração de íon  $OH^{-}$  também foi determinada através da posição pico de absorção em  $\lambda = 2875nm$  [38].

### 3.5.2 Caracterização das Amostras

Para determinarmos as concentrações dos centros  $Fe^{2+}$  e  $Fe^{3+}$  das amostras medimos o coeficiente de absorção na região do visível. A concentração dos íons  $Fe^{2+}$  foi medida em  $\lambda = 477nm$  conforme [38]. A concentração dos íons  $Fe^{3+}$  (centros aceitadores) foi determinada através da relação

$$[Fe^{3+}] = [Fe] - [Fe^{2+}] \quad (3.32)$$

onde  $[Fe]$  é a concentração total de ferro presente no material. As amostras estudadas neste trabalho possuem  $0.1mol\%$  de  $Fe_2O_3$ . Essa quantidade molar de ferro representa uma concentração de ferro total  $[Fe] = 1,89 \times 10^{25}m^{-3}$ . Na figura (3.10) estão representados os espectros de absorção na região do visível para as amostras estudadas.

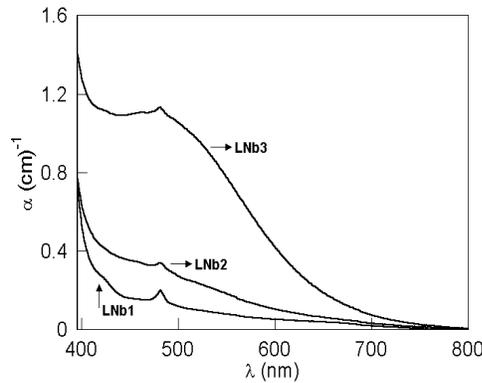


Figura 3.10: *Espectro de absorção na região do visível das amostras estudadas.*

O coeficiente de absorção é definido da seguinte forma

$$\alpha = (N_D - N_D^+)s \quad (3.33)$$

onde  $N_D$ ,  $N_D^+$  e  $s$  são, respectivamente, a concentração total de centros, a concentração de centros aceitadores e a seção de choque para fotoexcitação. Para o cristal  $LiNbO_3:Fe$  podemos escrever o coeficiente de absorção da seguinte forma

$$\alpha = ([Fe] - [Fe^{3+}])s \quad \alpha = [Fe^{2+}]s \quad (3.34)$$

Fica claro pela relação 3.34 que conhecendo o valor do coeficiente de absorção e a seção de choque para fotoexcitação podemos determinar o valor da concentração de centros

$Fe^{2+}$ . Para a seção de choque temos o seguinte valor determinado por Kurz *et. al* [38]:  $s = 4.63 \times 10^{-22} m^2$ .

A concentração de íons  $OH^-$  foi determinada através da medida do coeficiente de absorção, na região do infra-vermelho, para  $\lambda = 2870nm$  [23]. Da mesma forma que antes temos para a concentração de ions  $OH^-$

$$[OH^-] = \frac{\alpha}{\sigma} \quad (3.35)$$

onde  $\sigma$  é a seção de choque para excitação do ion  $OH^-$ . O valor de  $\sigma$  utilizado neste trabalho ( $\sigma = 9.4 \times 10^{-24} m^2$ ) é o determinado por Müller *et. al* [39] utilizando a técnica de fixação de hologramas. A posição do pico é fortemente dependente da dopagem e do método de crescimento [21]. Em  $LiNbO_3:Fe$  a banda em  $\lambda = 2870nm$  é fortemente polarizada perpendicularmente ao eixo  $c$  do material [40]. Na figura (3.11) temos representados os espectros de absorção na região do infra-vermelho para as amostras utilizadas.

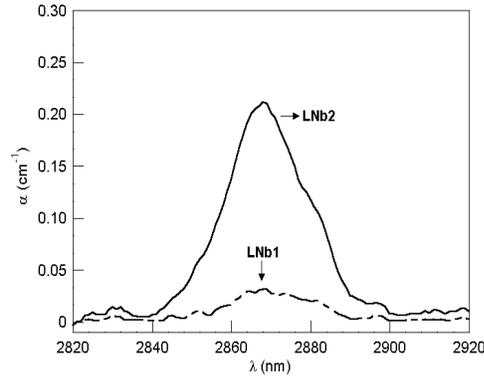


Figura 3.11: *Espectro de absorção na região do infra vermelho para duas das amostras estudadas.*

Na tabela (5.3.2) mostramos os resultados obtidos para as concentrações  $[Fe^{2+}]$ ,  $[OH^-]$  e a relação  $[Fe^{2+}]/[Fe^{3+}]$  que determina o estado de oxidação da amostra.

Amostra	$[Fe^{2+}](m^{-3})$	$[Fe^{2+}]/[Fe^{3+}]$	$[OH^-](m^{-3})$
LNb1	$3.70 \times 10^{22}$	0.0021	$3.4 \times 10^{24}$
LNb2	$7.15 \times 10^{22}$	0.0037	$2.2 \times 10^{25}$
LNb3	$2.42 \times 10^{23}$	0.0130	$3.2 \times 10^{22}$

Tabela(5.3.2)-*Concentrações dos dopantes nas amostras estudadas .*

### 3.5.3 Resultados-Registro auto-estabilizado

Os hologramas foram registrados em cristais  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , em amostras reduzidas e oxidadas. A amostra reduzida possui  $0.85\text{mm}$  de espessura. Já a amostra oxidada tem  $1.5\text{mm}$ . A relação  $[Fe^{2+}]/[Fe^{3+}] < 0.003$  para a amostra oxidada, tem um valor de  $Kl_{ph}[Fe^{3+}]/[Fe] = 2.4$  que foi medido pela diferença de fase como será descrito mais adiante. O registro foi sempre realizado com  $K = 10(\mu\text{m})^{-1}$  usando polarização extraordinária de um feixe de laser com comprimento de onda  $\lambda = 514.5\text{nm}$  e utilizando a técnica de registro auto-estabilizado. A eficiência de difração aqui reportada foi sempre medida usando-se um dos feixes de registro, como descrito detalhadamente na referência [41]. O registro auto-estabilizado até 100% em amostra reduzidas para  $\beta^2 > 1$  já foi reportada antes [37]. O mesmo resultado, para a presente amostra reduzida, foi obtida aqui para  $\beta^2 = 1$  como mostrada na figura (3.12), onde a condição para  $\eta = 1$  no final do processo foi indicado pela evolução de  $I_\Omega$  e foi independentemente verificado pela medida direta da eficiência de difração. Registros auto-estabilizados para uma amostra oxidada

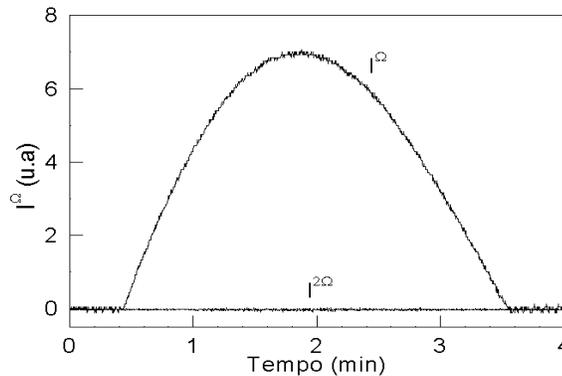


Figura 3.12: Registro auto-estabilizado em uma amostra reduzida de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  com  $\phi \approx \pi$  e  $\beta^2 \approx 1$  ( $I_R^0 = 141.1\text{W}/\text{m}^2$  e  $I_S^0 = 116\text{W}/\text{m}^2$ ). A evolução de  $I_S^\Omega$  e  $I_S^{2\Omega}$  durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo  $\eta = 1$  foi medido.

para  $\beta^2 \approx 1$  e para  $\beta^2 \approx 12$  são mostrados nas figuras (3.13) e (3.14) respectivamente. Em ambas figuras podemos notar que atingimos  $\eta = 1$ . Isto está de acordo com a teoria, que mostra o aumento do tempo de registro com o aumento de  $\beta^2$  e com o grau de oxidação. O segundo pico mostrado na figura (3.14) não é acidental mas uma característica

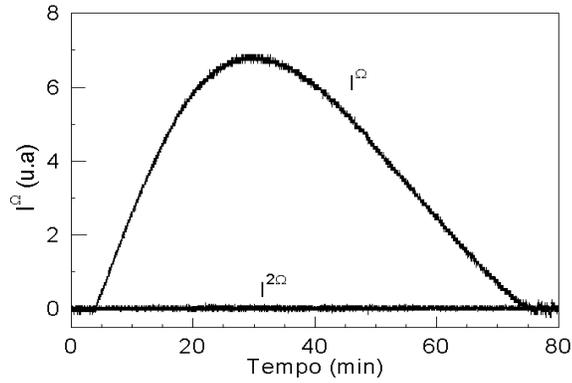


Figura 3.13: Registro auto-estabilizado em uma amostra oxidada de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  com  $\beta^2 \approx 1$  ( $I_R^0 = 113.5\text{W/m}^2$  e  $I_S^0 = 108.1\text{W/m}^2$ ). A evolução de  $I_S^\Omega$  e  $I_S^{2\Omega}$  durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo foi qualitativamente verificado que tínhamos  $\eta = 1$ .

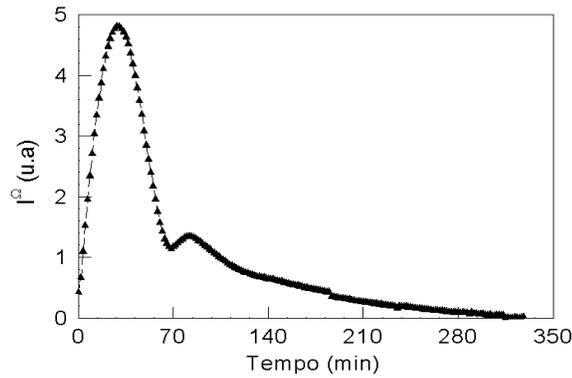


Figura 3.14: Registro auto-estabilizado em uma amostra oxidada de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  com  $\beta^2 \approx 12$  ( $I_R^0 = 243.2\text{W/m}^2$  e  $I_S^0 = 20.3\text{W/m}^2$ ). A evolução de  $I_S^\Omega$  e  $I_S^{2\Omega}$  durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias. No final do processo foi qualitativamente verificado que tínhamos  $\eta = 1$ .

que aparentemente não é possível explicar com a teoria desenvolvida neste trabalho.

As redes gravadas utilizando a técnica do registro auto-estabilizado, e para qualquer  $\beta^2$ , mostraram-se estar na condição de Bragg no final do registro. Isso foi verificado experimentalmente através da medida da eficiência de difração no final do processo. Esse fato também está de acordo com a teoria desenvolvida aqui.

A estabilização, como já foi dito, pode ser operada utilizando uma referência externa

de modo a fazer com que o padrão de franjas permaneça fixo em uma posição no espaço. Nessa situação a fase  $\varphi$  entre os feixes transmitido e difratado na saída do cristal podem ter qualquer valor. Para verificarmos essa situação gravamos um holograma no regime não auto-estabilizado (referência externa) utilizamos a montagem experimental mostrada na figura (3.15). Na figura temos representado os feixes de escrita  $I_R^0$  e  $I_S^0$ . Ao lado do

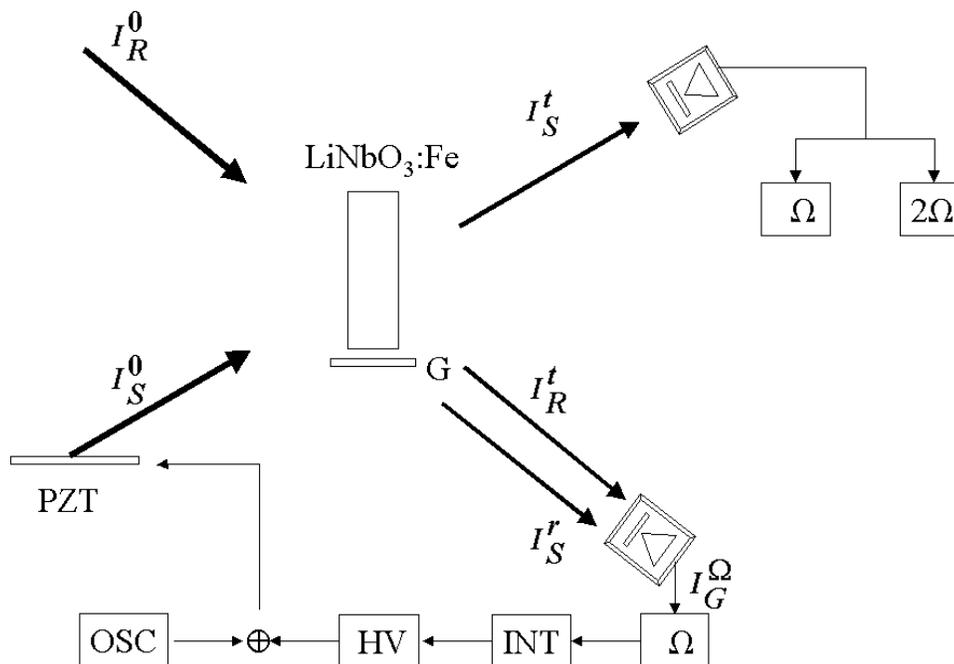


Figura 3.15: *Montagem Experimental*

cristal foi colado uma pequena lâmina de vidro (G) de modo a refletir parte do feixe  $I_S^0$ . Parte do feixe  $I_S^0$  refletido interfere com o feixe  $I_R^0$  transmitido e dessa maneira produz um padrão de franjas. Com uma objetiva ampliamos uma das franjas (franja clara) e utilizamos esse sinal como sinal de erro para operar o sistema de estabilização, uma vez que a fase do feixe na direção  $R$  é modulada pelo espelho  $PZT$  e temos termos harmônicos em  $\Omega$ ; com amplificadores "lock-in" sintonizados em  $\Omega$  ou  $2\Omega$  podemos operar o sistema de estabilização. A escolha do sinal de erro, neste caso, é arbitrária uma vez que esse sinal não tem nenhuma relação com o holograma que está sendo gravado. Obviamente é interessante utilizar o sinal de primeiro harmônico pois esse sinal é mais intenso. Na figura (3.16) mostramos a evolução do holograma para o registro não estabilizado. Vemos que no final do processo o sinal de primeiro harmônico passa por zero. Nesse ponto medimos a

eficiência de difração e verificamos que não era 100% e sim cerca de 85%. Na figura (3.16)  $I_G^S$  representa o sinal de erro devido a interferência entre os feixes transmitido e refletido pela lâmina (G). As condições experimentais são as mesmas que aquelas utilizadas para o registro auto-estabilizado, ou seja,  $\beta^2 \approx 1$  e  $K = 10\mu m$ . A figura (3.16) mostra que o sinal

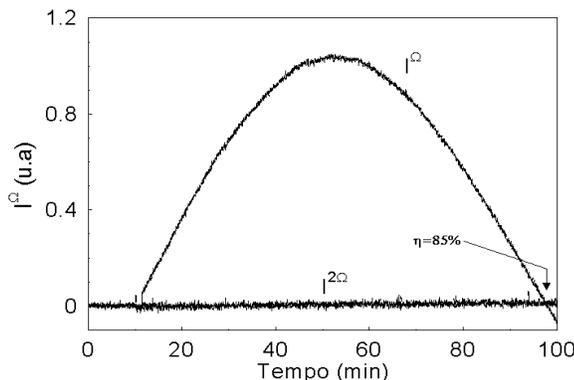


Figura 3.16: Registro holográfico em regime de não estabilização para uma amostra oxidada de  $LiNbO_3:Fe$  com  $\beta^2 \approx 1$  ( $I_R^0 = 97.3W/m^2$  e  $I_S^0 = 89.2W/m^2$ ). A evolução dos sinais  $I_S^\Omega$  e  $I_S^{2\Omega}$  durante o processo de registro são mostrados ambos em unidades arbitrárias.

de primeiro harmônico passa pelo zero ( $I^\Omega = 0$ ), mas isto não significa necessariamente que  $\eta = 0$  ou  $\eta = 1$ . De fato em regime de não estabilização  $\varphi$  não é fixa e sim está livre para variar podendo atingir  $\varphi = 0, \pi$  o que provavelmente aconteceu neste caso. Para explicar esse efeito mostramos na figura (3.17) uma simulação das equações (3.19,2.45,3.27) para  $\phi = 2.8$ . Nesta figura vemos que  $\varphi = \pi$  é atingida quando  $I^\Omega = 0$  mas esta claro que nesta condição  $\eta \neq 1$ . Para a mesma amostra oxidada e mesma condição experimental, em regime de não estabilização, mas com  $\beta^2 = 12$  foi impossível gravarmos um holograma.

### 3.6 Discussões e Conclusões

Nesta parte do trabalho mostramos a importância do sistema de auto-estabilização para o registro de hologramas em volume em cristais fotorrefrativos e em especial no cristal  $LiNbO_3:Fe$ . Vimos que o sistema auto-estabilizado não só minimiza as perturbações sobre o sistema mas sobretudo permite gravar redes em  $LiNbO_3:Fe$  com 100% de eficiência de difração. Mostramos que para qualquer estado de oxidação das amostras de  $LiNbO_3:Fe$  e qualquer condição experimental,  $\beta^2 \neq 1$  por exemplo, podemos obter redes altamente

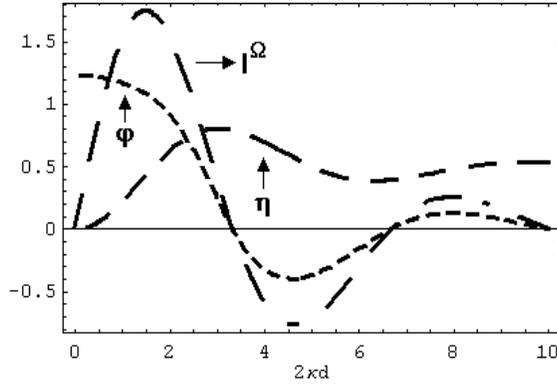


Figura 3.17: Simulação da evolução da eficiência de difração ( $\eta$ ) da fase  $\varphi$  e do primeiro harmônico ( $I^\Omega$ ) para o registro em regime de não estabilização para uma amostra oxidada.

eficientes utilizando o registro auto-estabilizado. Nas figuras (3.12), (3.13) e (3.14) vemos a evolução do sinal  $I^\Omega$  que representa a evolução do holograma. Em todas as figuras notamos que o sinal de primeiro harmônico tende a zero no final do registro, indicando que neste ponto temos eficiência de difração 100%. Podemos notar ainda que para a amostra reduzida, figura (3.12), o tempo de escrita é menor que para a amostra oxidada, figura (3.13), para a mesma intensidade dos feixes de escrita. Isso mostra que para uma mesma intensidade de luz amostras com estados de oxidação diferentes possuem tempos de escrita diferentes, ou seja, amostras reduzidas são mais rápidas que amostras oxidadas. É interessante salientarmos que o registro holográfico auto-estabilizado é de fundamental importância em amostras de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  sobretudo nas oxidadas, uma vez que o registro em tais amostras é lento. Na figura (3.14) vemos a evolução do holograma durante o registro auto-estabilizado para uma amostra oxidada e com  $\beta^2 = 12$ . É interessante notarmos que mesmo com  $\beta^2 \neq 1$  temos no final do processo eficiência de difração 100%. Já na figura (3.16) mostramos a evolução do sinal de primeiro harmônico durante o registro não auto-estabilizado. Vemos que o sinal de erro permanece em zero durante todo o registro e que o sinal de primeiro harmônico passa pelo zero, porém neste caso, não significa termos 100% de eficiência de difração. No final do processo medimos 85% de eficiência de difração. No caso de registro não auto-estabilizado a fase entre os feixes difratado e transmitido na saída do cristal pode assumir qualquer valor inclusive zero, isto explica o fato de não termos necessariamente 100% de eficiência de difração quando o sinal de

primeiro harmônico passa por zero. Na figura (3.17) temos uma simulação teórica que mostra esse comportamento durante o registro não auto-estabilizado.

# Capítulo 4

## Efeito da polarização no registro do holograma em $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

### 4.1 Introdução

O registro holográfico em materiais fotorrefrativos depende essencialmente da combinação do efeito da condutividade e principalmente do efeito eletro-óptico apresentados por esses materiais. Em cristais fotorrefrativos, como já vimos, na presença de um campo elétrico esses materiais sofrem uma mudança no índice de refração. Nas silenitas, (por exemplo,  $\text{Bi}_{12}(\text{Ti,Ge,Si})\text{O}_{20}$ ), a mudança no índice de refração percebida pela luz ao atravessar esses cristais é a mesma em qualquer direção de propagação. Podemos dizer em outras palavras que os elementos do tensor eletro-óptico que caracteriza a modulação de índice são todos iguais. Para outros tipos de materiais fotorrefrativos, como  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , que é utilizado neste trabalho, isso não ocorre pois os elementos do tensor eletro-óptico não são todos iguais, como vimos no capítulo (2) na seção (2.2.1). Para a configuração utilizada neste trabalho o coeficiente eletro-óptico na direção extraordinária ( $r_{33}$ ) é cerca de três vezes maior que aquele da direção ordinária ( $r_{13}$ ). Devido a isso fica evidente que para direções diferentes de propagação a luz percebera modulações diferentes de índice de refração. Conhecendo esse fato estudaremos o efeito do estado de polarização no registro holográfico em  $\text{LiNbO}_3$ .

### 4.1.1 Escrita do Holograma

A formação de hologramas em cristais fotorrefrativos consiste na excitação, pela luz, de portadores de cargas de centros doadores e recombinação em centros aceitadores. Após esse processo de excitação e recombinação aparece no volume do material uma modulação espacial de cargas que por sua vez gera um campo elétrico que modula o índice de refração do material via o efeito eletro-óptico. A cinética de registro da rede eletrônica em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é descrita pela equação (2.24) mostrada no capítulo (2). Para os materiais fotorrefrativos a modulação de índice de refração, como dita anteriormente, é produzida pela presença de um campo elétrico,  $E_{sc}$ , no volume do material. A modulação é definida da seguinte forma

$$\Delta n = \frac{1}{2} n^3 r_{\text{eff}} |E_{sc}| \quad (4.1)$$

onde  $n$  é índice de refração,  $r_{\text{eff}}$  o coeficiente eletro-óptico e  $E_{sc}$  o campo elétrico no volume do material. Para o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  temos [12]:  $n_{13} = 2.33$ ,  $n_{33} = 2.25$ ,  $r_{13} = 9.6 \text{ pm/V}$  e  $r_{33} = 30.9 \text{ pm/V}$  para os respectivos índices de refração e coeficientes eletro-ópticos.

### 4.1.2 Experimento

Para o estudo da influência do estado de polarização dos feixes de registro do holograma em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  utilizamos o processo de registro auto-estabilizado e a montagem holográfica mostrada na figura (5.3). Na figura (5.3) temos representados amplificadores "lock-in"

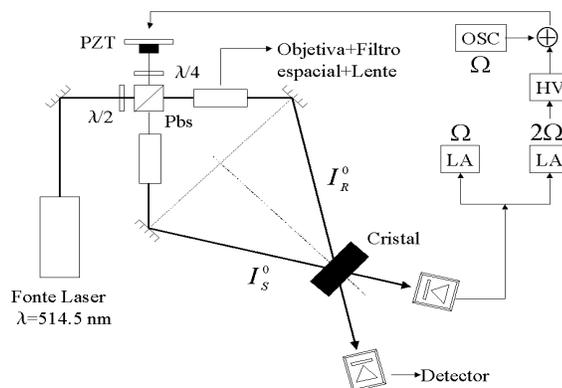


Figura 4.1: *Montagem experimental utilizada para o registro auto-estabilizado em cristais  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ .*

que utilizamos para a detecção dos sinais de primeiro ( $\Omega$ ) e segundo ( $2\Omega$ ) harmônicos, uma

fonte de alta tensão (HV) e um conjunto de lentes colimadoras e filtros espaciais. A fase é modulada por um espelho pizeoelétrico (PZT) que também é utilizado para a correção das perturbações ambientais e do próprio registro.

### 4.1.3 Resultados

Os hologramas foram registrados em cristais  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , em amostras com diferentes estados de oxidação. O grau de oxidação das amostras é determinado pela relação entre os centros doadores e aceitadores. A amostra oxidada (LNb1) possui  $1.5\text{mm}$  de espessura já a amostra reduzida (LNb2) tem  $1.0\text{mm}$ . Para as amostras temos as respectivas relações centro doador/aceitador: (LNb1)  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}] = 0.0021$ , (LNb2)  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}] = 0.0037$  e (751-8)  $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{Fe}^{3+}] > 0.1$ . O registro foi sempre realizado com  $K = 10(\mu\text{m})^{-1}$  usando polarização ordinária para os feixes de escrita, comprimento de onda  $\lambda = 514.5\text{nm}$  e utilizando a técnica de registro auto-estabilizado. A evolução do sinal de primeiro harmônico que descreve a formação do holograma para as amostras (LNb3) e (751-8) são mostradas nas figuras (4.2) e (4.3). Para as amostras LNb1 e LNb2 a evolução do holograma durante

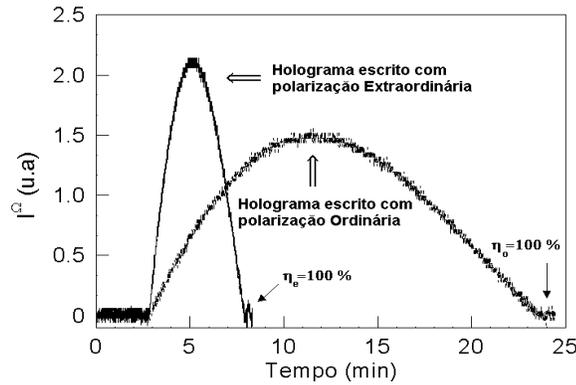


Figura 4.2: *Evolução do primeiro harmônico  $I^\Omega$  durante a escrita do holograma em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  utilizando o registro auto-estabilizado e polarização ordinária e extraordinária para os feixes de escrita.*

a escrita utilizando a técnica do registro auto-estabilizado e luz com polarização ordinária para os feixes é mostrada na figura (4.4). Na figura (4.4) a linha contínua representa o ajuste com a curva (3.7) com  $\eta$  dada pela equação (2.41) para  $\Gamma = 0$  que é a condição de registro auto-estabilizado para materiais fotovoltaicos, que é o caso do cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ .

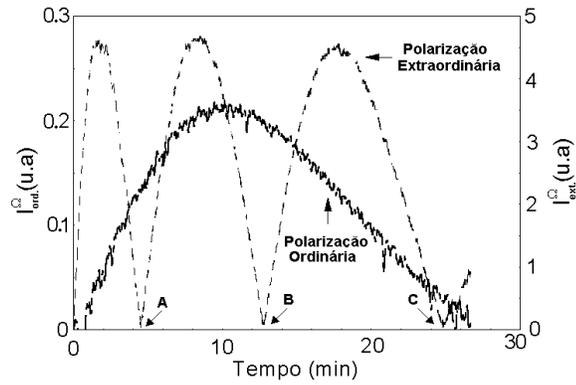


Figura 4.3: *Evolução do primeiro harmônico  $I^\Omega$  durante a escrita do holograma, em  $LiNbO_3:Fe$ , com polarização ordinária para os feixes de escrita, registro auto-estabilizado e leitura do holograma gravado com polarização extraordinária.*

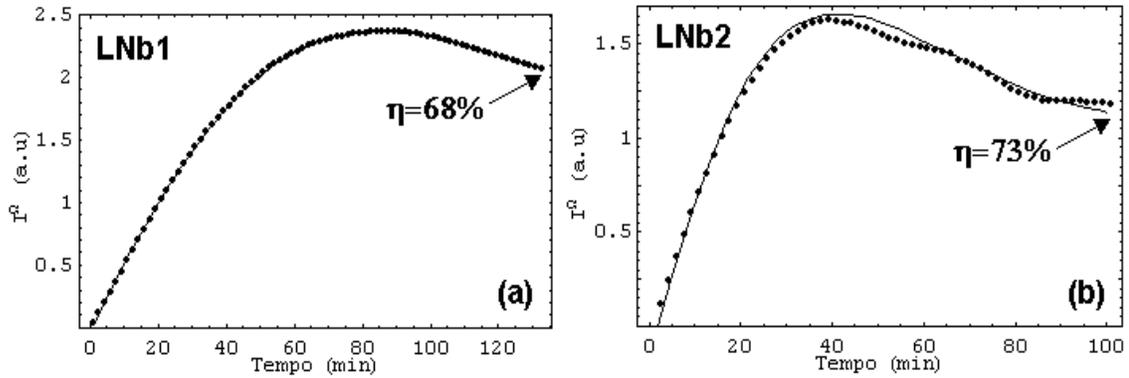


Figura 4.4: *Evolução do primeiro harmônico  $I^\Omega$  durante a escrita do holograma, em  $LiNbO_3:Fe$ , com polarização ordinária para os feixes de escrita, registro auto-estabilizado com as amostras LNb1 e LNb2.*

No final do processo a eficiência de difração foi medida utilizando os mesmos feixes de escrita, (técnica descrita no apêndice B), e os valores obtidos para cada amostra foram respectivamente,  $\eta_{LNb1} = 68\%$  e  $\eta_{LNb2} = 73\%$ . Com esses valores podemos calcular o valor do campo efetivo para cada amostra obtendo respectivamente  $[E_{\text{eff}}]^{LNb1} \approx 17kV/cm$  e  $[E_{\text{eff}}]^{LNb2} \approx 26kV/cm$ .

#### 4.1.4 Discussão

Na figura (4.2) vemos a evolução do sinal de primeiro harmônico, para a amostra (LNb3), durante a escrita do holograma em regime auto-estabilizado. Fica claro pela figura que quando a escrita do holograma é realizada com luz de polarização extraordinária a escrita é mais rápida que aquela com luz de polarização ordinária, obviamente para a mesma intensidade de luz. O mesmo acontece com amostras reduzidas como mostra na figura (4.3). Na figura (4.3) temos os sinais de primeiro harmônico, de forma simultânea, para escrita com luz ordinária e leitura com luz extraordinária. Pela figura (4.3) fica claro que quando fazemos a leitura do holograma com luz extraordinária a modulação de índice "vista" pela luz é maior que aquela "vista" pela luz com polarização ordinária. No ponto A e C temos  $\eta = 1$ . Já no ponto B a eficiência de difração é zero porém isso não indica que a modulação de índice de refração também seja zero. Isso também fica evidente quando analisamos a equação (A.35) que mostra que a eficiência de difração varia entre zero e  $\eta = 1$  dependendo do valor da modulação de índice. Na figura (4.4) temos representados a evolução do sinal de primeiro harmônico durante a escrita de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para as amostras LNb1 e LNb2 com luz de polarização ordinária. Vemos que o ajuste dos dados experimentais com a equação (3.10) e com  $\eta$  dada pela equação (2.41) concordam muito bem. É interessante notarmos que neste caso o sinal de primeiro harmônico não é zero. Com essas duas amostras não foi possível gravar uma rede com 100% de eficiência de difração. Acreditamos que isso se deve ao efeito de saturação dos centros ( $\text{Fe}^{2+}$ ). É fácil mostrar que o campo efetivo, na saturação, é dado por

$$E_{\text{eff}} \approx E_q \quad (4.2)$$

onde  $E_q$  é o máximo campo possível. Com os dados da tabela (5.3.2) e com o auxílio da equação (2.29) podemos calcular os valores para o campo  $E_q$ . Os valores obtidos para as amostras LNb1 e LNb2 foram respectivamente:  $E_q^{\text{LNb1}} \approx 20\text{kV/cm}$  e  $E_q^{\text{LNb2}} \approx 40\text{kV/cm}$ . O campo efetivo calculado a partir da eficiência de difração na saturação para as mesmas amostras foram respectivamente:  $E_{\text{eff}}^{\text{LNb1}} \approx 17\text{kV/cm}$  e  $E_{\text{eff}}^{\text{LNb2}} \approx 26\text{kV/cm}$ . Como o campo de saturação para a amostra LNb1 é próximo do campo efetivo, isso mostra o por que dessa amostra gravar uma rede menos eficiente que a amostra LNb2.

### 4.1.5 Conclusões

Nesta parte do trabalho concluímos que o estado de polarização dos feixes de registro tem grande importância no processo de formação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Vimos que quando utilizamos polarização extraordinária para a escrita do holograma atingimos mais rápido uma eficiência de difração 100% do que aquela a escrita com polarização ordinária, para a mesma intensidade de luz. Constatamos que quando fazemos a leitura do holograma, que foi gravado com luz de polarização ordinária, com luz de polarização extraordinária a modulação de índice de refração vista pela luz é da ordem de 3 vezes maior que a modulação vista com luz ordinária. Usaremos esse fato para obter redes fixadas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  altamente eficiente. O processo de fixação de tais hologramas será descrito no próximo capítulo.

# Capítulo 5

## Fixação de Hogramas em $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

### 5.1 Introdução

O armazenamento de informações em materiais fotorrefrativos na forma de uma modulação de índice de refração é de grande interesse para a fabricação de componentes ópticos difrativos [11]. R Müller et al. [22] utilizou um cristal de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para a fabricação de um filtro de Bragg. Heune et al. [42] armazenou cerca 1.7MB, (530 hologramas), de informações em um cristal de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . O grande obstáculo na fabricação de componentes óptico está no processo de leitura. Durante a iluminação do componente ocorre a destruição do mesmo, ou seja, apagamos a rede gravada. Isso acontece porque a modulação de índice de refração originalmente gravada pode ser apagada durante uma leitura. Essa modulação é devida a uma modulação de cargas no volume do material. Como já foi dito antes, essas cargas são sensíveis a luz, ou seja, podem ser excitadas. Nesse processo o material é iluminado com luz uniforme de mesmo comprimento de onda que foi utilizado para o registro. A luz uniforme redistribui as cargas no volume do material, causando dessa forma o apagamento da informação. Essa informação pode ser armazenada e lida sem sofrer nenhum dano pela presença luz de qualquer comprimento de onda. Essa técnica é conhecida como a fixação de hologramas. A técnica consiste em gravarmos um holograma (rede eletrônica) a temperatura ambiente ou a temperatura elevada [1, 3, 43], de modo que íons de cargas positivas presentes no material possam compensar a rede eletrônica.

Após a compensação o holograma é iluminado com luz uniforme, essa luz uniforme redistribui os elétrons pelo volume do material, ficando dessa forma uma rede de cargas positivas que não é sensível a presença da luz. Neste capítulo estudaremos o processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  de duas formas distintas. A primeira consiste fazer o registro da rede eletrônica utilizando o registro holográfico auto-estabilizado, a temperatura ambiente, e fixação a alta temperatura fora da montagem holográfica. Na segunda maneira utilizaremos a técnica do registro auto-estabilizado para registrar e fixar simultaneamente o holograma a alta temperatura. Usaremos a técnica do registro holográfico auto-estabilizado já que essa técnica se mostrou muito eficiente para minimizar as perturbações provocadas pelo ambiente e pelo próprio sistema de registro e também para obter redes com grande eficiência de difração.

## 5.2 Modelo para a fixação de hologramas em $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$

A fixação de hologramas em cristais fotorrefrativos é baseado na compensação de elétrons por íons positivos. É aceito que os portadores de cargas positivas que compensam a rede eletrônica são íons  $\text{H}^+$  [11]. Esses íons "são colocados" em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  durante ou após o crescimento do cristal [21]. Podemos descrever o processo de fixação da seguinte maneira: Um holograma (rede de elétrons) é registrado a temperatura ambiente ou a temperatura elevada. Após o registro à temperatura ambiente o cristal é aquecido a uma temperatura entre  $120 - 180^\circ\text{C}$ , nessa temperatura os íons  $\text{H}^+$  presente no material tornam-se móveis e se difundem pelo material. Nesse momento a rede formada pelos elétrons é compensada pelos íons. Após a compensação o cristal é mantido a temperatura ambiente, nessa temperatura os íons são imóveis. Nesse estágio não temos luz difratada, ou seja, não há holograma devido a compensação total feita pelos íons positivos. Após a compensação o cristal é iluminado com luz uniforme. Como os elétrons são sensíveis a luz eles são distribuídos uniformemente pelo volume do material (apagamento da rede eletrônica), como os íons não são fotoativos teremos no final do processo uma modulação de cargas não sensível a luz, ou seja, a rede poderá ser lida, com qualquer comprimento de onda, sem ser destruída. A figura (5.2) representa o processo de fixação. O modelo descrito aqui é proposto por Sturman et al [43]. O modelo considera que o transporte de elétrons

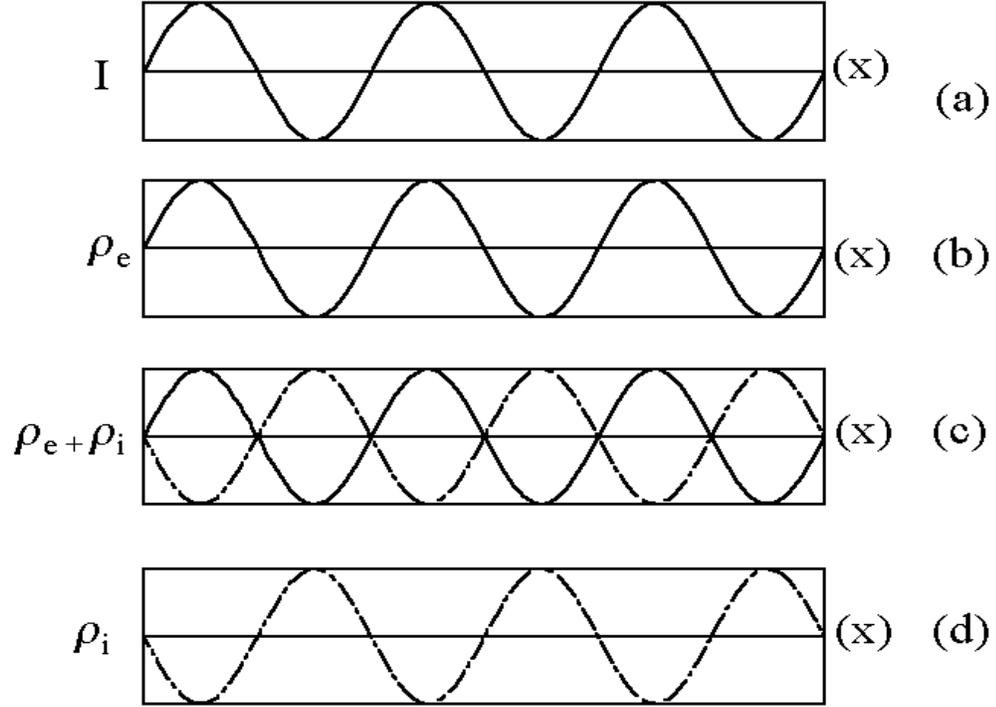


Figura 5.1: *Processo de Fixação de Hologramas-a) Padrão de intensidade que gera o holograma, b) Densidade de carga fotogerada (elétrons), c) Compensação dos elétrons pelos íons a alta temperatura, d) Rede de íons devido ao apagamento da rede eletrônica com luz uniforme.*

e íons são gerados devido a presença da luz e excitados termicamente, respectivamente. As variáveis dinâmicas são, a densidade de elétrons  $n_e$  fotogerados, a densidade de íons  $H$  e a densidade de armadilhas  $N_D^+$ . O conjunto de equações (2.13-2.16) pode ser escrito da seguinte forma para o caso de termos transporte de íons

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{\partial N_D^+}{\partial t} + \frac{1}{q} \nabla \cdot \vec{J}_e, \quad (5.1)$$

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = (N_D - N_D^+)(sI + \beta) - \gamma_R N_D^+ n_e, \quad (5.2)$$

$$J_e = q\mu_e n_e E + qD_e \frac{\partial n_e}{\partial x} + \kappa s I_0 (N_D - N_D^+) \quad (5.3)$$

$$\frac{\partial H}{\partial t} = -\frac{1}{q} \frac{\partial J_i}{\partial x}, \quad (5.4)$$

$$J_i = q\mu_i H E - qD_i \frac{\partial H}{\partial x} \quad (5.5)$$

e

$$\vec{\nabla} \cdot (\varepsilon_0 \epsilon \vec{E}) = q(N_D^+ - N_A + H - H_0 - n_e). \quad (5.6)$$

onde  $\mu_i$  e  $D_i$  são a mobilidade e o coeficiente de difusão dos íons respectivamente. Usando o mesmo argumento que antes, podemos escrever as variáveis dinâmicas da seguinte forma

$$n_e(x, t) = n_{e0} + \frac{1}{2}[n_{e1}(t) \exp(-iKx) + c.c], \quad (5.7)$$

$$N_D^+(x, t) = N_{D0}^+ + \frac{1}{2}[N_{D1}^+(t) \exp(-iKx) + c.c], \quad (5.8)$$

$$H(x, t) = H_0 + \frac{1}{2}[H_1(t) \exp(-iKx) + c.c], \quad (5.9)$$

$$E(x, t) = E_0 + \frac{1}{2}[E_{sc}(t) \exp(-iKx) + c.c], \quad (5.10)$$

Utilizando o conjunto de equações (5.1-5.6) e as equações (5.7-5.10) podemos escrever as variáveis dinâmicas da seguinte forma

$$\frac{\partial N_{D1}^+(t)}{\partial t} + \tilde{\gamma}_e(1 + \xi_e)N_{D1}^+(t) + \tilde{\gamma}_e H_1(t) = F \quad (5.11)$$

$$\frac{\partial H_1(t)}{\partial t} + \gamma_h(1 + \xi_h)H_1(t) + \gamma_h N_{D1}^+(t) = 0 \quad (5.12)$$

com

$$\tilde{\gamma}_e = \frac{1}{\tau_M^e} \frac{1}{1 + K^2 L_D^2} \quad (5.13)$$

$$\gamma_h = \frac{1}{\tau_M^h} \quad (5.14)$$

$$\xi_e = \frac{E_D}{E_q} - i \frac{E_{ph}}{E_q} \frac{N_A}{N_t} \frac{\gamma_e^{ph}}{\gamma_e} \quad (5.15)$$

$$\xi_h = \frac{E_D}{E_q} \frac{N_t}{H_0} \quad (5.16)$$

$$F = -i \frac{m}{2} N_t \gamma_e^{ph} \frac{E_{ph} + iE_D}{E_q} \quad (5.17)$$

onde  $E_D$ ,  $E_{ph}$  e  $E_q$  são respectivamente, o campo de difusão, campo fotovoltaico e o campo de saturação. A densidade efetiva de centros fotoativos é representada por  $N_t$  e  $N_A$  é a densidade de centros aceitadores,  $\tau_M^e$  e  $\tau_M^h$  são os tempos de relaxamento dielétrico,  $\gamma_e^{ph}$  é inverso do tempo de relaxamento dielétrico que está relacionado com a luz. O padrão de luz que da origen a rede eletrônica esta representado pela visibilidade  $m$ .

A evolução temporal do campo pode ser determinado da seguinte forma

$$E_{sc}(t) = -iE_q \frac{N_{D1}^+(t) + H_1(t)}{N_t} \quad (5.18)$$

com  $N_{D1}^+(t)$  e  $H_1(t)$  são soluções das equações (5.38) e (5.39).

### 5.2.1 Escrita a temperatura ambiente e fixação a alta temperatura

O processo de fixação que descrevemos nesta seção consiste em gravarmos uma rede (holograma) a temperatura ambiente e aquecimento posterior a alta temperatura. Após o registro da rede a temperatura ambiente a amostra é aquecida (até 150°C por exemplo) e durante esse aquecimento ions positivos  $H^+$  presentes no material se difundem. Durante a difusão desses ions ocorre a compensação da rede eletrônica inicialmente gravada. Na figura (5.2) vemos uma representação da evolução do campo total no volume do material durante o processo de compensação da rede eletrônica a alta temperatura. Na figura  $E_1^0(0)$  representa a amplitude da rede eletrônica inicialmente gravada a temperatura ambiente. O instante de tempo  $t_1$  é o início do processo de compensação da rede eletrônica. Vale notar que, neste procedimento, o processo de compensação ocorre no escuro, ou seja, na ausência de luz. Descreveremos mais adiante o processo de escrita e compensação simultânea. Resolvendo o conjunto de equações diferenciais (5.38,5.39) com  $F=0$  temos

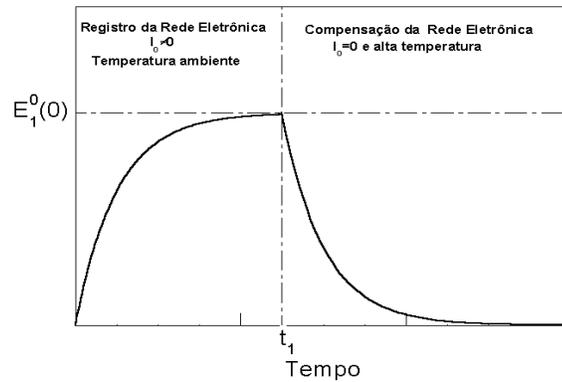


Figura 5.2: *Evolução do campo total no volume do material durante a compensação da rede eletrônica a alta temperatura.*

as equações que descrevem a evolução da rede eletrônica e iônica durante o processo de compensação a alta temperatura. As equações são dadas por

$$N_{D1}^+(t) = \frac{N_{D1}^0}{\lambda_2 - \lambda_1} [(\lambda_2 - \gamma_e) \exp(-\lambda_1 t) - (\lambda_1 - \gamma_e) \exp(-\lambda_2 t)] \quad (5.19)$$

$$H_1(t) = \frac{\gamma_h N_{D1}^0}{\lambda_2 - \lambda_1} [\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)] \quad (5.20)$$

onde

$$\lambda_{1,2} = \frac{-[\gamma_e + \gamma_h(1 + \xi_h)] \pm \sqrt{[\gamma_e - \gamma_h(1 + \xi_h)]^2 + 4\gamma_e\gamma_h}}{2} \quad (5.21)$$

Nas equações (5.19) e (5.20)  $N_{D1}^0$  representa a amplitude da rede eletrônica inicialmente gravada a temperatura ambiente.

### 5.3 Processo de Revelação da rede fixada

Um dos processos mais importante da fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é o processo de apagamento da rede eletrônica. O processo de apagamento, revelação da rede fixa, é que determina qual o valor final da eficiência de difração da rede iônica (rede fixa). Nesta seção descreveremos o processo de apagamento da rede eletrônica utilizando luz uniforme. Veremos também que durante o apagamento da rede eletrônica há um deslocamento dessa rede em relação a rede fixa. Através da medida da fase da onda durante o apagamento da rede eletrônica confirmamos que para amostras oxidadas o deslocamento da rede eletrônica é maior que para as amostras reduzidas [9]. O apagamento da rede eletrônica é feito incidindo sobre a amostra luz uniforme incoerente. O apagamento da rede eletrônica utilizando luz coerente (luz laser) produz redes parasitas que dificultam a medida da eficiência de difração. Aguilar et. al [44] propõem uma maneira de apagar a rede eletrônica utilizando um padrão de franjas. A técnica proposta pelo autores consiste em gravarmos uma rede eletrônica em contra fase a rede eletrônica inicialmente gravada. Dessa forma teríamos a revelação por completo da rede fixada, ou seja, revelaríamos 100% da rede fixada. Tal procedimento experimental não é uma tarefa simples mesmo utilizando a técnica do registro auto-estabilizado. Neste trabalho utilizamos essa técnica para o apagamento de uma rede eletrônica na ausência de uma rede iônica. Tal procedimento esta descrito no apêndice C. Resultados mostram que a técnica proposta na referência [44] para o apagamento de uma rede eletrônica pura (sem rede iônica), é mais eficiente quando utilizamos amostras reduzidas. Em amostras oxidadas há, como já dito antes, a formação de hologramas em movimento, e isso dificulta a gravação de uma outra rede em contra fase com a primeira gravada. Confirmaremos que o valor final da eficiência

de difração da rede fixa também esta determinado pelo estado de oxidação da amostra [8, 10].

### 5.3.1 Apagamento com Luz Uniforme

Para analisarmos o processo de apagamento da rede eletrônica com luz uniforme devemos estudar o comportamento da rede eletrônica na presença de uma outra rede fixa. A equação diferencial para a evolução temporal do campo elétrico que descreve a formação da rede da eletrônica é dada por [8]

$$\tau_{sc} \frac{\partial E_e(t)}{\partial t} + E_e(t) = m E_{eff} \quad (5.22)$$

com

$$\tau_{sc} = \tau_M \frac{1 + K^2 L_D^2}{1 + K^2 l_s^2 - i K l_{ph} \frac{N_D^+}{N_D}} \quad (5.23)$$

$$E_{eff} = \frac{E_{ph} + i E_D}{1 - i K l_{ph} \frac{N_D^+}{N_D}} \quad e \quad K l_{ph} = \frac{E_{ph}}{E_q} \quad (5.24)$$

onde  $m$  é a visibilidade do padrão de franjas,  $E_e(t)$  a amplitude do campo de carga gerado pela luz,  $E_q$  é o campo de saturação,  $\tau_M$  é tempo de relaxamento de Maxwell,  $E_{ph}$  e  $E_D$  são respectivamente o campo fotovoltaico e o campo de difusão,  $N_D^+$  é a concentração de centro aceitador e  $N_D$  a concentração total de centros. Os parâmetros  $l_s$  e  $L_D$  são o comprimento de Debye e o comprimento de difusão, respectivamente. Na presença de uma rede fixa a equação (5.22) fica [8]

$$\tau_{sc} \frac{\partial E_e(t)}{\partial t} + E_e(t) + \xi E_h = -m E_{eff} \quad (5.25)$$

com

$$\frac{1}{\xi} = 1 - i K l_{ph} \frac{N_D^+}{N_D} \quad (5.26)$$

onde  $E_h$  é o campo produzido pela rede fixa. Para o cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , que é utilizado neste trabalho, temos que  $K^2 L_D^2 \ll 1$  e  $K^2 l_s^2 \ll 1$ .

Para o apagamento com luz uniforme devemos fazer  $m = 0$  na equação (5.25) com isso a solução geral da equação (5.25) fica

$$E_e(t) = C e^{-t/\tau_{sc}} - \xi E_h \quad (5.27)$$

onde  $C$  é uma constante determinada pela condição de contorno. Tal condição nos diz que no início do processo de revelação há uma rede eletrônica com amplitude  $E_e^0$  que deverá ser apagada. Utilizando essa condição a solução da equação (5.25) torna-se

$$E_e(t) = E_e^0 e^{-t/\tau_{sc}} - \xi E_h [1 - e^{-t/\tau_{sc}}] \quad (5.28)$$

O campo total dentro do volume do material é dado pelo campo gerado pela luz e pelo campo gerado pela rede fixa, ou seja

$$E_T(t) = E_e(t) + E_h \quad (5.29)$$

Finalmente a equação que descreve a evolução do campo total dentro do volume do material é

$$E_T(t) = E_e^0 e^{-t/\tau_{sc}} - \xi E_h [1 - e^{-t/\tau_{sc}}] + E_h \quad (5.30)$$

Para o caso em que a compensação da rede eletrônica é total, ou seja,  $E_e^0 = -E_h$ , a equação (5.30) fica

$$E_T(t) = E_h (1 - \xi) [1 - e^{-t/\tau_{sc}}] \quad (5.31)$$

É interessante notarmos que na equação (5.31) o termo  $\tau_{sc}$  possui uma parte real e outra imaginária. Isso mostra que durante o processo de apagamento da rede eletrônica há um deslocamento dessa rede em relação a rede fixa. Esse deslocamento pode ser calculado da seguinte forma [8, 9]

$$\Phi(t) = \arctan \left[ \frac{\Im\{E_T(t)\}}{\Re\{E_T(t)\}} \right] \quad (5.32)$$

O deslocamento da rede eletrônica é maior dependendo do estado de oxidação da amostra [8, 9]. O estado de oxidação da amostra está representado na equação (5.23) pela grandeza  $Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D}$ . Para amostras reduzidas temos que  $Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D} \ll 1$  e para amostras oxidadas temos  $Kl_{ph} \frac{N_D^+}{N_D} \gg 1$ . Em outras palavras podemos dizer que uma amostra é reduzida quando a quantidade de  $Fe^{2+} \gg Fe^{3+}$  e oxidada quando  $Fe^{2+} \ll Fe^{3+}$ . Para o cristal  $LiNbO_3:Fe$  a quantidade  $Fe^{2+}$  é o centro doador e  $Fe^{3+}$  o centro aceitador. Da equação (5.31) podemos determinar a relação entre o campo total e o campo produzido pela rede fixa, ou seja, o quanto da rede fixa podemos produzir no final do processo de apagamento com luz uniforme. A razão é dada por [8, 10]

$$\mathcal{F} = \frac{E_T}{E_h} = \frac{\tau_M \omega_I}{\sqrt{1 + \tau_M^2 \omega_I^2}} \quad (5.33)$$

Pela equação (5.33) fica claro que para amostras fortemente oxidadas podemos ter um campo total predominantemente de íons.

### 5.3.2 Experimentos

Em nosso experimento sobre fixação gravamos uma rede eletrônica, a temperatura ambiente, com um período de  $\Lambda \approx 0.63\mu m$ , com um laser de comprimento de onda  $514.5nm$ , com intensidade total de  $I_S^0 + I_R^0 = 162W/m^2$  e  $\beta^2 = I_S^0/I_R^0 \approx 1$ , usando a técnica do registro auto-estabilizado, como descrito anteriormente e na referência [32, 7] e esquematicamente mostrado na figura (5.3). As características das amostras de  $LiNbO_3:Fe$

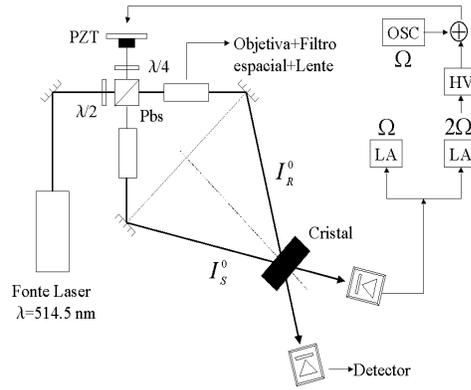


Figura 5.3: *Montagem experimental para o registro auto-estabilizado usando o sinal de segundo harmônico como sinal de erro para operar o sistema de retroalimentação. M: espelhos, PZT: espelho piezoelétrico, PBS: divisor polarizante de feixes, LA: amplificador Lock-in, HV: Fonte de alta tensão e OSC: Oscilador.*

utilizadas no processo de fixação são mostradas na tabela (5.3.2).

Amostra	$[Fe^{2+}]/[Fe^{3+}]$	$[H^+] (cm^{-3})$	d (mm)
LNb1	0.002	$6 \times 10^{17}$	1.5
LNb2	0.0037	$2.7 \times 10^{19}$	1.0

Tabela 5.3.2-*Características das amostras.*

Para estudarmos a eficiência de difração para redes fixas utilizamos as amostras LNb1 e LNb2. Para cada amostra foi registrada, a temperatura ambiente, uma rede eletrônica,

utilizando o registro auto-estabilizado e polarização ordinária. As redes eletrônicas gravadas inicialmente tinham cerca de 68% e 73% de eficiência de difração respectivamente para as amostras LNb1 e LNb2. A necessidade do registro ser feito com polarização ordinária decorre do fato de podermos gravar uma rede que, quando "vista" pela luz de polarização extraordinária produza alta eficiência de difração. Após o registro a temperatura ambiente as amostras foram aquecidas durante 20 minutos a  $150^{\circ}C$ , nessas condições verificamos que ocorreu a compensação total da rede eletrônica pelos íons presentes no volume do material. Ocorrida a compensação e fixação a alta temperatura a amostra, após atingir a temperatura ambiente, foi submetida a luz branca, para que houvesse o apagamento da rede eletrônica de forma a restar somente a rede fixa. Além da redistribuição dos elétrons uniformemente no volume do material, durante a revelação também há um deslocamento relativo entre as duas redes eletrônica e iônica [8, 9]. A evolução da eficiência de difração durante o processo de revelação são mostradas nas figuras (5.4) e (5.5).

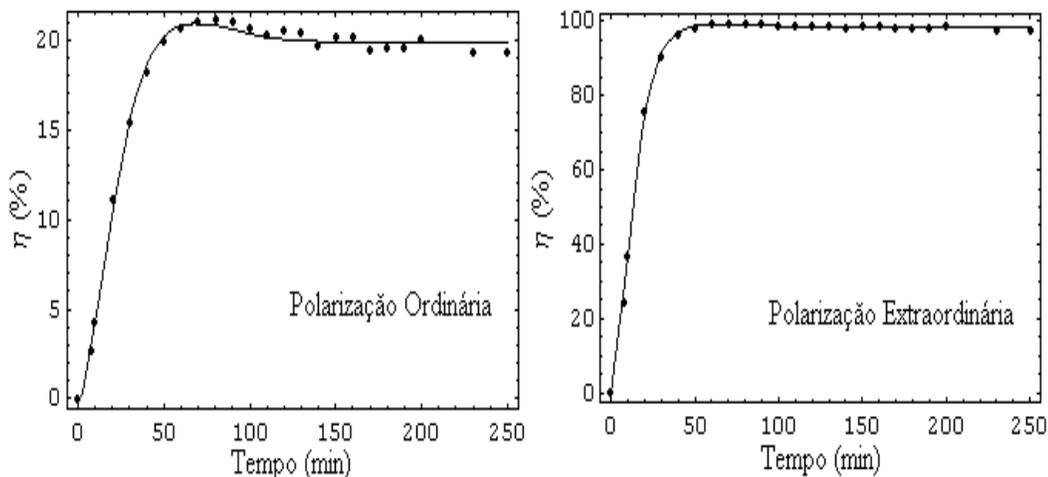


Figura 5.4: *Evolução da eficiência de difração durante o processo de revelação com luz branca, para amostra LNb2.*

Nas figuras (5.4) e (5.5) a curva contínua representa ajuste feito com a equação (A.35) e com  $E_{sc}^T$  dado por (5.31). Os dados para a eficiência de difração com luz extraordinária foram obtidos da seguinte forma: Com um experimento preliminar medimos o valor da eficiência de difração com luz ordinária e após rodar o plano de polarização da luz com auxílio de uma lâmina de retardo ( $\lambda/2$ ), medimos o valor da eficiência de difração para luz extraordinária e com esses valores calculamos a seguinte relação, que chamaremos de

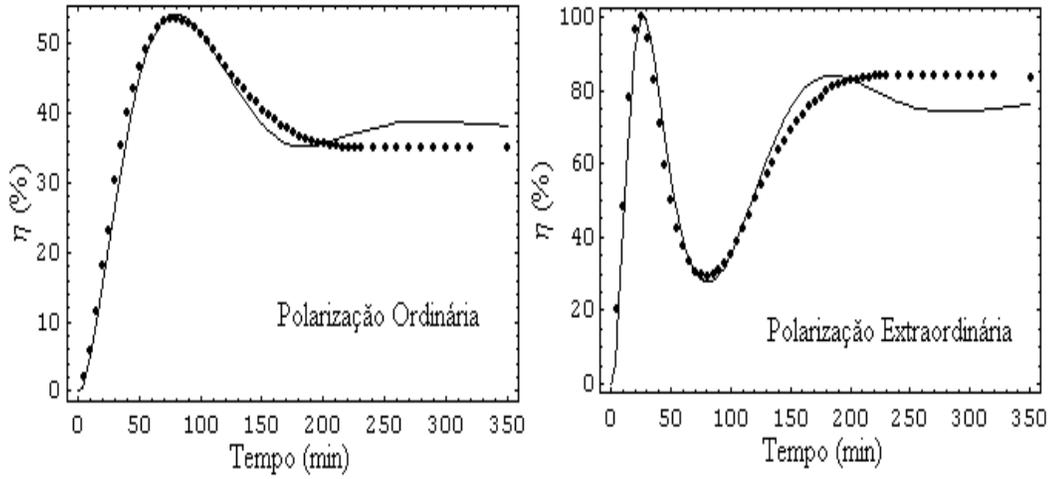


Figura 5.5: *Evolução da eficiência de difração durante o processo de revelação com luz branca, para a amostra LNb1.*

$f$ ,

$$f = \frac{\arcsin \sqrt{\eta_{ext.}}}{\arcsin \sqrt{\eta_{ord.}}} = \frac{(\kappa d)_{ext.}}{(\kappa d)_{ord.}} = 3.115 \quad (5.34)$$

Com o valor de  $f$  calculado dessa maneira transformamos os dados da eficiência de difração com luz ordinária para luz extraordinária da seguinte forma

$$\eta_{ext.} = \sin^2(f \arcsin \sqrt{\eta_{ord.}}) \quad (5.35)$$

Após o final do processo de revelação com luz, medimos a eficiência de difração com luz extraordinária com o cristal nas mesmas condições. Os valores obtidos para as amostras (LNB1 e LNB2), foram respectivamente,  $\eta_{ext} = 81.3\%$  e  $\eta_{ext} = 88\%$ . A diferença entre os valores medidos e os valores convertidos serão discutidos mais adiante.

### 5.3.3 Medida da evolução da diferença de fase entre as redes

O valor final da eficiência de difração da rede fixa depende fortemente de quanto a rede eletrônica se deslocou da rede iônica. Esse deslocamento é maior para amostras oxidadas como já tínhamos dito antes. Para estudarmos a evolução da diferença de fase entre as redes, gravamos uma eletrônica com 50% de eficiência de difração na amostra oxidada e após o processo de fixação, que ocorreu a  $150^\circ C$  durante 35 minutos, medimos a diferença de fase entre as ondas difratada e transmitida durante o processo de apagamento com luz

uniforme. A diferença de fase entre as ondas foi medida utilizando a técnica da modulação de fase [30]. A diferença de fase entre as ondas é dada por

$$\tan \varphi = \frac{J_2(\psi_d) I^\Omega}{J_1(\psi_d) I^{2\Omega}} \quad (5.36)$$

onde  $\psi_d$  é a amplitude da modulação provocada em um dos feixes,  $I^\Omega$  e  $I^{2\Omega}$  são os respectivos primeiro e segundo harmônicos em  $\Omega$ . A medida de fase em holografia é uma tarefa um pouco complicada devido às perturbações do ambiente. Para minimizar esse problema as medidas foram feitas estabilizando o padrão de franjas. Essa técnica difere do processo de registro auto-estabilizado. Quando o registro é auto-estabilizado impomos um valor fixo a diferença de fase entre os feixes difratado e transmitido. Essa diferença de fase depende do material e também das condições experimentais. Quando estabilizamos o padrão de franjas em relação a uma referência externa a fase na saída só depende das características do material que esta sendo estudado. Já quando utilizamos a técnica do registro auto-estabilizado a fase na saída tem um valor fixo. A fase  $\varphi$  foi medida mediante pulsos de luz sobre a amostra durante o apagamento com luz uniforme. Os pulsos eram rápidos o suficientes para que não desse tempo de se formar uma nova rede eletrônica no material, uma vez que a medida era feita com os mesmos feixes de escrita da rede eletrônica. A estabilização das franjas foi realizada tomando como sinal de erro o sinal obtido através da interferência do feixe transmitido com o feixe refletido por uma lâmina de vidro colada ao lado do cristal. Tal processo de estabilização é idêntico ao descrito anteriormente. Através da medida do primeiro ( $I^\Omega$ ) e do segundo harmônicos  $I^{2\Omega}$  e com auxílio de amplificadores *lock-in* sintonizados em  $\Omega$  e  $2\Omega$  medimos a diferença de fase na saída. A diferença de fase entre as redes esta relacionada a fase  $\varphi$  na saída da seguinte forma [30]

$$\Phi = \arctan \left[ \frac{1}{\tan \varphi} \right] \quad (5.37)$$

Podemos usar a equação (5.37) pois estamos em ausência de auto-difração, ou seja, não há interação das redes com a luz que está sendo usada tanto para apagar como para medir a diferença de fase. O efeito da auto-difração é importante durante o processo de registro da rede eletrônica pois esse efeito provoca acoplamento de fase e dessa forma um entortamento do holograma [45].

### 5.3.4 Montagem holográfica

A medida da diferença de fase entre as redes foi realizada com auxílio da montagem mostrada na figura (5.6).

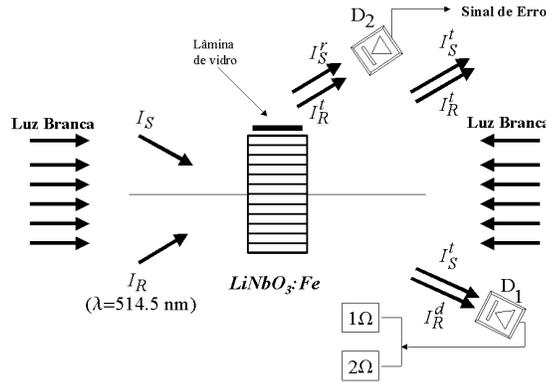


Figura 5.6: *Montagem experimental para a medida da fase entre as redes.*

Na figura (5.6) temos representado as fontes de luz branca responsáveis pelo apagamento da rede eletrônica. O sinal de erro utilizado para a estabilização das franjas foi obtido da interferência entre os feixes  $I_R^t$ , transmitido e  $I_S^r$  refletido pela lâmina de vidro mostrada na figura. Os amplificadores *lock-in* estão representados por  $1\Omega$  e  $2\Omega$ , e os detectores por  $D_1$  e  $D_2$ .

### 5.3.5 Experimento

A medida do deslocamento da rede eletrônica em relação a rede fixa foi feito como descrito anteriormente e utilizando a montagem holográfica mostrada na figura (5.6). A evolução do deslocamento durante o processo de revelação com luz branca (uniforme) é mostrado na figura (5.7). É interessante notarmos pela figura que apesar de utilizarmos a técnica de estabilização das franjas ainda há uma dispersão dos dados. A medida do deslocamento é feita utilizando os feixes de escrita da rede, dessa forma devemos incidir os feixes o tempo suficiente para fazer a medida. Isso é necessário pois há possibilidade de escrevermos uma nova rede eletrônica e dessa maneira estaríamos medindo uma diferença de fase  $\varphi$  diferente daquela que representa o deslocamento relativo entre as redes. O fato de a amostra oxidada ter uma fotocondutividade baixa facilita a medida do deslocamento. Para uma amostra reduzida, na qual o deslocamento é menor, torna-se mais complexa

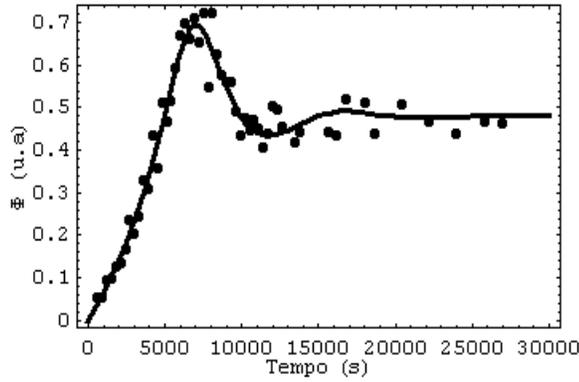


Figura 5.7: *Evolução da fase entre as redes eletrônica e fixa durante o processo de apagamento da rede eletrônica com luz uniforme para uma amostra oxidada.*

a medida, pois mesmo com baixa intensidade de luz ainda podemos gerar uma rede durante a medida do deslocamento. Isso ocorre porque a fotocondutividade é alta em amostras reduzidas. A linha contínua mostrada na figura (5.7) é o ajuste feito com a equação teórica (5.32). Os parâmetros que melhor se ajustam aos dados experimentais são:  $Kl_{ph}N_D^+/N_D = 2.37$  e  $\tau_M = 62.5$  min. Na figura (5.8) mostramos a evolução das redes eletrônica e iônica durante o processo de apagamento da rede eletrônica. Vemos que para a amostras oxidadas o deslocamento entre as redes é maior e isso está fortemente ligado a rede final fixada.

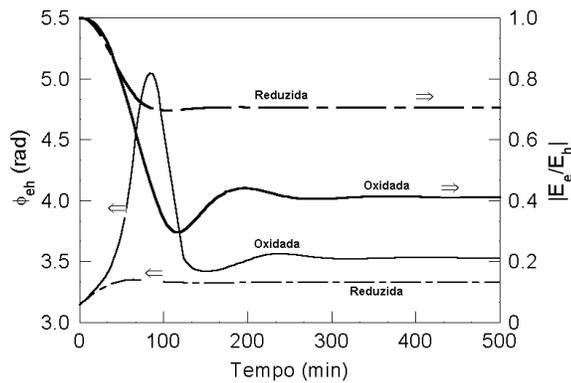


Figura 5.8: *Evolução da fase entre as redes eletrônica e fixa durante o processo de apagamento da rede eletrônica com luz uniforme para amostras oxidada e reduzidas .*

## 5.4 Escrita e fixação a alta temperatura

O processo de fixação de hologramas em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  descrito anteriormente é baseado em três etapas. A primeira consiste em gravarmos uma rede eletrônica a temperatura ambiente, a segunda é o processo de fixação a alta temperatura e na etapa final ocorre o processo de revelação da rede fixada. Nesta parte do trabalho descreveremos o processo de escrita e fixação simultânea da rede eletrônica a alta temperatura, ou seja, a cada elétrons que excitamos pela ação da luz há um íon excitado térmicamente de modo que ocorra a compensação entre as redes de forma simultânea. A diferença entre o processo descrito anteriormente e o processo que descreveremos nesta parte do trabalho, decorre do fato que podemos obter redes altamente eficientes independentemente do estado de oxidação da amostra. Vimos que utilizando o processo em três etapas somente conseguimos redes altamente eficiente com amostras oxidadas. Já com o processo de escrita e fixação alta temperatura conseguimos redes altamente eficientes tanto para amostras oxidadas quanto para amostras reduzidas. Para verificarmos essa afirmação utilizamos uma amostra reduzida de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para o processo de escrita e fixação simultânea. Tal amostra se mostrou pouco eficiente quando fixada utilizando o processo em três etapas. A principal vantagem desse processo está no fato de podermos esgotar todos os centros responsáveis pela formação do holograma, e dessa maneira produzir uma rede final (fixa) bastante eficiente.

### 5.4.1 Equações para o processo de escrita e fixação simultânea

Para estudarmos o processo de escrita e fixação simultânea utilizaremos o sistema de equação diferenciais dado pelas equações (5.1-5.6) e (5.7-5.10). Para essa situação temos as equações

$$\frac{\partial N_{D1}^+(t)}{\partial t} + \tilde{\gamma}_e(1 + \xi_e)N_{D1}^+(t) + \tilde{\gamma}_e H_1(t) = F \quad (5.38)$$

$$\frac{\partial H_1(t)}{\partial t} + \gamma_h(1 + \xi_h)H_1(t) + \gamma_h N_{D1}^+(t) = 0 \quad (5.39)$$

Vale salientar que a dependência com o padrão de luz está dada pelo termo  $F$  no conjunto de equações. Os parâmetros que aparecem nas equações acima já foram descritos anteriormente. Para o processo de escrita e fixação simultânea utilizaremos a técnica do

registro auto-estabilizado, uma vez que essa técnica se mostrou muito eficiente no registro holográfico. Nas condições do registro auto-estabilizado devemos fazer a seguinte substituição

$$m \rightarrow m_0 e^{-i\Omega t} \quad (5.40)$$

onde  $m_0$  é a amplitude do padrão de franjas para  $\Omega = 0$ . Resolvendo o sistema de equações diferenciais acima com a condição dada pela equação (5.40) temos as evoluções temporais

$$N_D^+(t) = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} - \frac{m a_3 E_{\text{eff}} e^{-i\Omega t}}{a_2 - i\Omega(a_1 - \Omega)} \quad (5.41)$$

$$H(t) = - \left\{ 1 + \frac{[\gamma_e(1 + \xi_e) + i\Omega]}{a_2 - i\Omega(a_1 - \Omega)} \right\} \frac{m E_{\text{eff}} e^{-i\Omega t}}{\gamma_e} + \left[ \frac{\lambda_1}{\gamma_e} - (1 - \xi_e) \right] C_1 e^{-\lambda_1 t} + \left[ \frac{\lambda_2}{\gamma_e} - (1 - \xi_e) \right] C_2 e^{-\lambda_2 t} \quad (5.42)$$

As constantes  $a_1$ ,  $a_2$  e  $a_3$  são dependentes apenas dos parâmetros do cristal. É interessante notarmos pelas equações acima que durante o processo de escrita e fixação simultânea há a formação de uma rede eletrônica que se movimenta acompanhando o padrão de franjas e uma rede iônica que também acompanha a rede eletrônica. A evolução do campo total no volume do material é dado pela equação (5.18) com  $N_D^+(t)$  e  $H^+(t)$  dados pelas equações (5.41-5.42).

## 5.4.2 Experimento

Para o estudo do processo de escrita e fixação simultânea utilizamos a montagem mostrada na figura (5.3). Utilizamos a técnica do registro auto-estabilizado descrita anteriormente. A rede eletrônica foi gravada utilizando luz laser de comprimento de onda  $\lambda = 514.5\text{nm}$  e um padrão de franjas com visibilidade  $m \approx 1$  e  $K = 10(\mu\text{m})^{-1}$ . Na figura (5.9) mostramos um esquema do porta-amostra utilizado no processo. Como descrito antes a técnica do registro auto-estabilizado requer um sinal de erro para alimentarmos o sistema de estabilização. A velocidade no processo compensação da rede eletrônica pelos íons depende obviamente da temperatura em que está ocorrendo a compensação. O sinal de erro a ser utilizado nesse processo depende da diferença entre as amplitudes das redes eletrônica e iônica. Se a diferença entre as redes for pequena teremos um sinal de erro fraco, o que é ruim para o sistema de estabilização, por motivos óbvios. Para as nossas

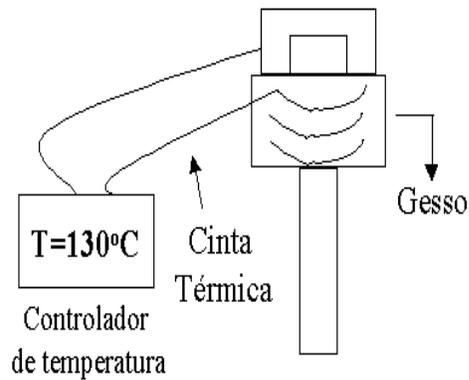


Figura 5.9: *Esquema do porta-amostra utilizado no processo de escrita e fixação simultânea.*

condições de intensidade de luz e para a nossa amostra verificamos que a temperatura de 130° é ideal para o processo de escrita e fixação simultânea. Nas figuras (5.10) e (5.11) vemos a evolução da luz difratada durante o processo de escrita e fixação simultânea. Os sinais de difração correspondem a rede líquida, ou seja, diferença entre as redes eletrônica e a iônica. Fica claro pelas figuras que quanto maior a temperatura em que ocorre o processo menor a luz difratada pela rede líquida.

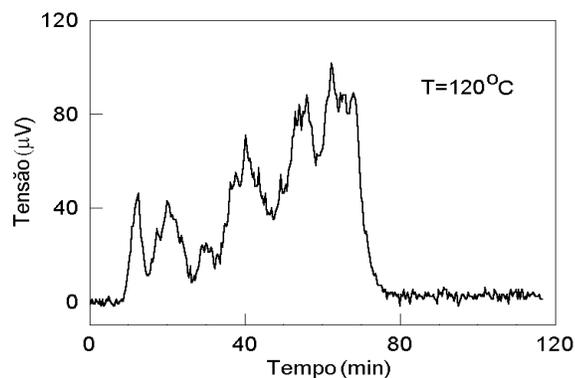


Figura 5.10: *Evolução do sinal difratado durante o processo de escrita e fixação simultânea para T=120° C.*

### 5.4.3 Resultados

Na figura (5.12) vemos a evolução da eficiência de difração, da rede fixa, com o tempo de escrita e fixação simultânea. Os dados mostrados na figura foram obtidos com um

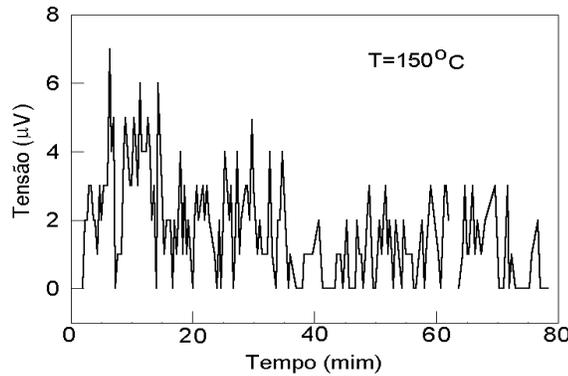


Figura 5.11: *Evolução do sinal difratado durante o processo de escrita e fixação simultânea para  $T=150^{\circ}C$ .*

amostra reduzida de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  para uma temperatura constante de  $T \approx 135^{\circ}\text{C}$ . Na figura fica claro que a eficiência de difração da rede final aumenta a medida que o tempo de escrita também aumenta. Mostramos também na figura (5.12) o valor obtido com o processo de 3 etapas descrito anteriormente. Para essa mesma amostra obtivemos uma rede fixa com apenas 3% de eficiência de difração. Com a técnica do processo de escrita e fixação simultânea conseguimos aumentar a eficiência de difração em mais de 8 vezes.

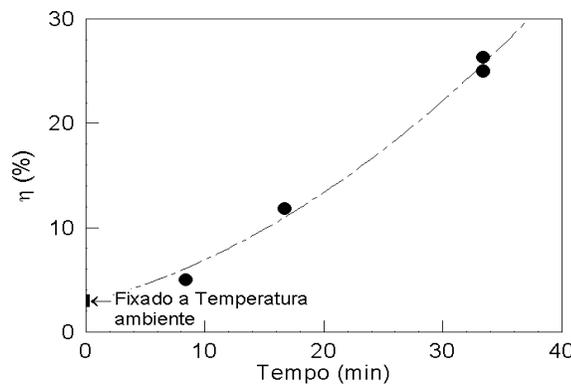


Figura 5.12: *Evolução da eficiência de difração da rede final (fixa) com o tempo de escrita e compensação simultânea para uma amostra de  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  reduzida. O processo ocorreu a uma temperatura de  $130 \leq T \leq 135^{\circ}C$ .*

## 5.5 Discussão e Conclusão

Neste capítulo estudamos o processo de fixação de hologramas em cristais  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Confirmamos que para amostras mais oxidadas a eficiência de difração da rede fixa é maior em relação as amostras mais reduzidas. Realizamos um estudo teórico e experimental do processo de revelação da rede fixa. Através da medida da fase, de forma estabilizada, durante o processo de revelação verificamos que há um deslocamento relativo entre as redes durante o apagamento. Tal deslocamento é maior para amostras oxidadas o que também está relacionado com a eficiência de difração da rede final (fixa). Utilizamos uma técnica muito simples para se obter redes fixadas altamente eficiente. A técnica se baseou no registro de uma rede eletrônica, a temperatura ambiente, utilizando luz com polarização ordinária e leitura da rede fixa com luz de polarização extraordinária. Utilizando essa técnica conseguimos uma rede com 100% de eficiência de difração. Utilizamos a técnica do registro auto-estabilizado para gravarmos e fixarmos de forma simultânea a alta temperatura redes altamente eficientes. Vimos que a medida que o tempo de escrita e fixação simultânea aumenta a eficiência de difração da rede final (fixa) também aumenta. A grande diferença entre os métodos é que, com o registro auto-estabilizado a alta temperatura podemos obter redes fixadas altamente eficiente tanto para amostras oxidadas como para amostras reduzidas. Amostras reduzidas se mostraram pouco eficientes quando fixadas utilizando o processo em 3 etapas. Para uma mesma amostra reduzida conseguimos utilizando o processo de 3 etapas 3% de eficiência de difração, já com a escrita e fixação simultânea obtivemos cerca de 25% de eficiência de difração. Fica claro que podemos atingir 100% de eficiência de difração utilizando o processo de a escrita (auto-estabilizada) e fixação simultânea.

# Capítulo 6

## Discussões e Conclusões

O presente trabalho mostra a importância fundamental que o registro holográfico auto-estabilizado tem na gravação de hologramas em materiais fotorrefrativos e em especial em um material como o niobato de lítio, onde a gravação pode durar horas dependendo das condições experimentais. Vimos que para amostras oxidadas o tempo de registro é cerca de 80 minutos e para amostras reduzidas esse tempo diminui para 5 minutos. Nessas condições é impossível que o padrão de franjas se mantenha fixo e isento de qualquer perturbação externa durante a escrita do holograma. Isso mostra a importância do registro ser auto-estabilizado. Mostramos que somente com o uso desta técnica é possível obter hologramas com eficiência de difração de até 100%, para qualquer grau de oxidação do material e qualquer relação de intensidade entre os feixes de escrita.

Mostramos que é possível obtermos um holograma fixado com  $\eta \approx 1$  realizando o registro (auto-estabilizado) com luz polarizada ordinária e observando-o com luz extraordinariamente polarizada. Mostramos ainda a possibilidade de realizar a gravação e compensação, simultaneamente, a alta temperatura, mesmo com cristais reduzidos. O nosso experimento, realizado numa montagem muito rudimentar, sem cuidados especiais para reduzir os efeitos da convecção térmica sobre o registro holográfico, mostra um enorme potencial da técnica de registro auto-estabilizado.

No estudo do processo de revelação da rede verificamos experimentalmente, através da medida da fase entre as ondas durante o processo de revelação da rede fixada, o deslocamento relativo entre as redes eletrônica e iônica. Constatamos que o deslocamento é maior para amostras oxidadas e que esse deslocamento está diretamente ligado ao valor

final da eficiência de difração da rede fixada. Através desse estudo ficou evidente que o estado de oxidação da amostra tem importância fundamental no valor final da eficiência de difração da rede fixada.

Quanto ao desenvolvimento futuro fica claro o interesse em se aperfeiçoar a montagem utilizando uma câmara sob vácuo para colocar o cristal em melhores condições e facilitar assim a operação do sistema de estabilização. Nesse caso será necessário também utilizar janelas de vidro de boa qualidade óptica, com "coating" anti-refletor para evitar distorções das ondas de registro e reflexões múltiplas que comprometem a qualidade do registro holográfico. Com uma montagem deste tipo seria possível obter excelentes resultados com cristais reduzidos, onde a gravação é muito fácil e mais rápida.

# Apêndice A

## Teoria das Ondas Acopladas

### A.1 Introdução

O processo de leitura dos hologramas em volume é de grande importância na caracterização dos cristais fotorrefrativos. Uma grandeza importante no estudo dos hologramas em volume é a eficiência de difração. A eficiência de difração determina a capacidade da rede (holograma) em difratar a luz. A formulação matemática da eficiência de difração dos hologramas em volume é descrita pela *Teoria das Ondas Acopladas* [29]. A seguir, determinaremos as equações das ondas acopladas. Através delas e de suas soluções, poderemos determinar a equação para a eficiência de difração e também estudar a troca de energia entre os feixes. O modelo proposto por Kogelnik [29] considera que a rede (holograma) está fixa no volume do material, garantindo dessa forma que não há interação entre o feixe de leitura e o holograma. Para os cristais fotorrefrativos o processo de registro dos hologramas é dinâmico, ou seja, há uma interação, em tempo real, dos feixes de escrita com a rede que se forma.

### A.2 Equações das Ondas Acopladas

A teoria das ondas acopladas considera que a luz incidente sobre o holograma seja monocromática, incida no ângulo de Bragg e tenha polarização perpendicular ao plano de incidência. Para o nosso caso, consideraremos que a rede formada não esteja inclinada em relação ao eixo  $z$ . A figura abaixo mostra o esquema proposto pelo modelo,

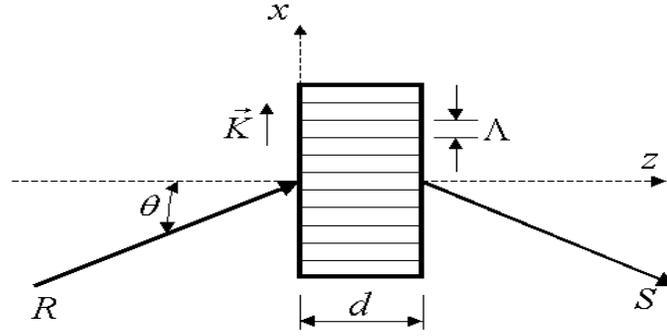


Figura A.1: *Processo de leitura de redes em volume*

onde  $R$  e  $S$  são as ondas incidente e difratada,  $\vec{K}$  é o vetor da rede que é perpendicular às franjas e definido como

$$|\vec{K}| = \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad (\text{A.1})$$

onde

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\pi \sin \theta} \quad (\text{A.2})$$

é o período da rede e  $d$  sua espessura. Uma onda se propagando nesse meio obedece à equação

$$\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} = 0, \quad (\text{A.3})$$

onde  $\vec{E}$  é o vetor campo elétrico da onda luminosa. Neste caso  $\vec{E}$  é independente de  $y$  (eixo perpendicular ao eixo  $x$ ) e oscila com frequência angular  $\omega$ . A constante de propagação  $k$  relaciona a condutividade ( $\sigma$ ) e a constante dielétrica ( $\epsilon$ ) do meio através da relação

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon - i\omega\mu\sigma, \quad (\text{A.4})$$

onde  $c$  é a velocidade da luz no vácuo e  $\mu$  é a permeabilidade do meio que assumiremos como sendo igual a permeabilidade do vácuo. No modelo proposto, o holograma é representado por uma modulação espacial da constante dielétrica e da condutividade elétrica do meio, que estão em fase, dadas por

$$\epsilon(x) = \epsilon_0 + \epsilon_1 \cdot \cos(\vec{K} \cdot \vec{x}) \quad (\text{A.5})$$

$$\sigma(x) = \sigma_0 + \sigma_1 \cdot \cos(\vec{K} \cdot \vec{x}) \quad (\text{A.6})$$

onde  $\epsilon_0$  e  $\sigma_0$  são a constante dielétrica e a condutividade média do meio, respectivamente. Os termos  $\epsilon_1$  e  $\sigma_1$  representam as amplitudes das modulações espaciais da constante

dielétrica e da condutividade do meio, respectivamente. Substituindo as equações (A.5) e (A.6) em (A.4) temos

$$k^2 = \beta^2 - 2i\alpha\beta + 2\kappa\alpha\beta[\exp(i\vec{K} \cdot \vec{x}) + \exp(-i\vec{K} \cdot \vec{x})] \quad (\text{A.7})$$

onde  $\alpha$ ,  $\beta$  e  $\kappa$  são as constantes de absorção, propagação e acoplamento, respectivamente. A constante  $\kappa$  descreve o acoplamento entre as ondas incidente  $R$  e difratada  $S$ , sendo ela a responsável pela troca de energia entre as ondas. Se  $\kappa$  é nulo não há acoplamento entre as ondas, portanto não há difração. Kogelnik [29] demonstrou que a constante de acoplamento pode ser escrita como

$$\kappa = \frac{n_1\pi}{\lambda} - i\frac{\alpha_1}{2}, \quad (\text{A.8})$$

onde

$$n_1 = \frac{\epsilon_1}{2\sqrt{\epsilon_0}} \quad (\text{A.9})$$

e

$$\alpha_1 = \frac{\mu c \sigma_1}{2\sqrt{\epsilon_0}}. \quad (\text{A.10})$$

A modulação espacial indicada por  $n_1$  e  $\alpha_1$  forma uma rede que acopla as duas ondas  $R(z)$  e  $S(z)$ , permitindo uma troca de energia entre ambas. Podemos escrever essas ondas com amplitudes complexas que variam ao longo de  $z$  como resultado da troca de energia, ou por causa da perda de energia devida a absorção. O campo elétrico na rede é a superposição das ondas, transmitida  $R$  e difratada  $S$ , ou seja

$$E(x, z) = R(z) \exp(-i\vec{\rho} \cdot \vec{x}) + S(z) \exp(-i\vec{\delta} \cdot \vec{x}) \quad (\text{A.11})$$

Os vetores  $\vec{\rho}$  e  $\vec{\delta}$  contém informações sobre a constante de propagação e sobre a direção de propagação das ondas  $R$  e  $S$ . O vetor  $\vec{\rho}$  é suposto igual ao vetor da onda  $R$  na ausência de acoplamento,  $\vec{\delta}$  está relacionado ao vetor  $\vec{\rho}$  e ao vetor da rede  $\vec{K}$  por

$$\vec{\delta} = \vec{\rho} - \vec{K} \quad (\text{A.12})$$

A equação (A.12) descreve a condição de Bragg. Como o campo elétrico na rede tem a forma da equação (A.11) podemos determinar as equações de ondas acopladas substituindo a equação (A.11) na equação (A.3). Difração de ordens superiores são desprezadas pois envolvem energias muito pequenas ou não existem. Considerando que a troca de

energia entre  $S$  e  $R$  é lenta e que a energia é absorvida lentamente temos que as equações obtidas são

$$\cos \theta \frac{dR(z)}{dz} + \alpha R(z) = -i\kappa S(z) \quad (\text{A.13})$$

e

$$\cos \theta \frac{dS(z)}{dz} + \alpha S(z) = -i\kappa R(z). \quad (\text{A.14})$$

As equações (A.13) e (A.14) são conhecidas como equações das ondas acopladas. Neste trabalho será considerada apenas a rede devida a modulação de índice de refração. Para os cristais fotorrefrativos a amplitude da modulação no índice de refração é dada por

$$n_1 = -\frac{n^3 r_{41} E_{sc}}{2} \quad (\text{A.15})$$

onde  $n$  é o índice de refração médio,  $r_{41}$  é o elemento do tensor eletro-óptico e  $E_{sc}$  a amplitude do campo que provoca a modulação no índice de refração do cristal.

### A.2.1 Solução das Equações das Ondas Acopladas

Para o nosso caso consideraremos dois feixes incidindo no ângulo de Bragg e simétricos em relação ao eixo  $z$ , como mostrado na figura (A.2).

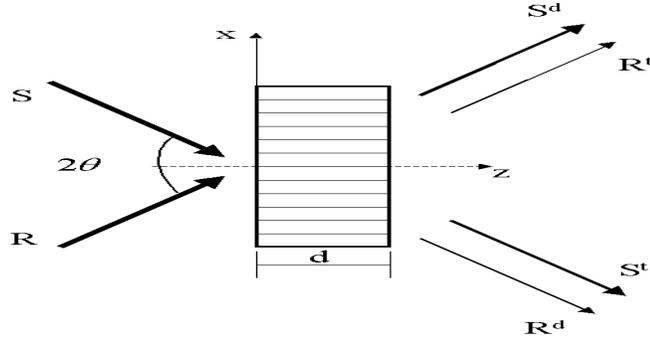


Figura A.2: *Processo de escrita e leitura de redes em volume*

As soluções para as equações das ondas acopladas definidas pelo sistema de equações (A.13) e (A.14), para a configuração mostrada na figura (A.2), são facilmente obtidas e podem ser escritas como

$$R(z) = [C_0 \exp(i\kappa_0 z) + C_1 \exp(-i\kappa_0 z)] \exp\left(-\frac{\alpha_0}{2} z\right) \quad (\text{A.16})$$

e

$$S(z) = [-C_0 \exp(i\kappa_0 z) + C_1 \exp(-i\kappa_0 z)] \exp(-\frac{\alpha_0}{2} z), \quad (\text{A.17})$$

onde

$$\kappa_0 = \frac{\kappa}{\cos \theta} \quad (\text{A.18})$$

e

$$\frac{\alpha_0}{2} = \frac{\alpha}{\cos \theta} \quad (\text{A.19})$$

são a constante de acoplamento e o coeficiente de absorção do meio. As constantes  $C_0$  e  $C_1$  são determinadas através das condições de contorno.

As amplitudes das ondas  $R$  e  $S$  podem ser calculadas com ajuda das condições de contorno na face de entrada do cristal ( $z = 0$ ) que são

$$R(0) = \sqrt{I_R^0} \exp(-i\phi_R^0) \quad (\text{A.20})$$

e

$$S(0) = \sqrt{I_S^0} \exp(-i\phi_S^0), \quad (\text{A.21})$$

onde  $I_R^0$ ,  $I_S^0$  são as intensidades incidentes na face de entrada do cristal. As fases das ondas  $R$  e  $S$  na face de entrada do cristal são  $\phi_R^0$  e  $\phi_S^0$ , respectivamente. Logo as amplitudes ficam

$$R(z) = [\sqrt{I_R^0} \cos(\kappa_0 z) \exp(-i\phi_R^0) - i\sqrt{I_S^0} \sin(\kappa_0 z) \exp(-i\phi_S^0)] \exp(-\frac{\alpha_0}{2} z) \quad (\text{A.22})$$

e

$$S(z) = [-i\sqrt{I_R^0} \sin(\kappa_0 z) \exp(-i\phi_R^0) + \sqrt{I_S^0} \cos(\kappa_0 z) \exp(-i\phi_S^0)] \exp(-\frac{\alpha_0}{2} z). \quad (\text{A.23})$$

Através das equações (A.22) e (A.23) podemos escrever as intensidades como

$$I_R = [I_R^0 \cos^2(\kappa_0 z) + I_S^0 \sin^2(\kappa_0 z) + \sqrt{I_R^0 I_S^0} \sin(2\kappa_0 z) \sin(\phi_R^0 - \phi_S^0)] \exp(-\frac{\alpha_0}{2} z) \quad (\text{A.24})$$

e

$$I_S = [I_S^0 \cos^2(\kappa_0 z) + I_R^0 \sin^2(\kappa_0 z) - \sqrt{I_R^0 I_S^0} \sin(2\kappa_0 z) \sin(\phi_R^0 - \phi_S^0)] \exp(-\frac{\alpha_0}{2} z). \quad (\text{A.25})$$

As equações acima são semelhantes a menos de um sinal. Esse fato interessante está relacionado com a troca de energia entre os feixes. Podemos notar que nas equações (A.24)

e (A.25) quem determina o sentido da troca de energia é a diferença de fase ( $\phi_R^0 - \phi_S^0$ ). No modelo de Kogelnik [46] a diferença de fase  $\phi_R^0 - \phi_S^0$  é a fase holográfica, ou seja, defasagem entre o padrão de franjas e o holograma resultante. Em cristais fotorrefrativos a fase holográfica depende do processo de registro do holograma [46]. De maneira geral podemos escrever a fase holográfica da seguinte forma [46]

$$\phi = \varphi \pm \frac{\pi}{2} \quad (\text{A.26})$$

onde  $\varphi$  é a diferença de fase entre os feixes de escrita.

Como vimos no capítulo anterior, a equação do campo elétrico que modula o índice de refração do cristal, foi obtida fazendo uso da aproximação do primeiro harmônico espacial, ou seja  $|m| \ll 1$ . Na prática,  $|m| \ll 1$ , consiste em ter um feixe com intensidade alta e outro com intensidade baixa. O feixe com intensidade alta será denominado feixe forte e aquele com intensidade baixa, feixe fraco. A energia pode ser transferida do feixe fraco para o forte (ganho negativo) ou do forte para o fraco (ganho positivo). É fácil mostrar, utilizando a equação (A.11), que a intensidade total, na face de entrada, do material é dada por

$$I_T = I_0 \{1 + |m| \cos[Kx - (\phi_R^0 - \phi_S^0)]\}, \quad (\text{A.27})$$

onde  $m$  é a modulação dos feixes,  $I_0$  é a soma das intensidades incidentes sobre o cristal e  $(\phi_R^0 - \phi_S^0)$  a diferença de fase entre as ondas, definidos como

$$|m| = \frac{2\sqrt{I_R^0 I_S^0}}{I_R^0 + I_S^0} \quad (\text{A.28})$$

e

$$I_0 = I_R^0 + I_S^0. \quad (\text{A.29})$$

## A.2.2 Eficiência de Difração

Um parâmetro importante no estudo de hologramas em volume é a eficiência de difração. Como o próprio nome diz, a eficiência de difração mede quanto da luz incidente é difratada pela rede (holograma). A eficiência de difração é definida como[29]

$$\eta = \frac{|S^d|^2}{|S^i|^2} \quad (\text{A.30})$$

onde  $S^d$  e  $S^i$  são amplitudes complexas das ondas difratadas e incidentes, respectivamente.

Como podemos ver através da figura (A.2), temos, para cada feixe incidente, um feixe transmitido e outro difratado. Para determinarmos a eficiência de difração nas direções  $R$  e  $S$  temos que conhecer os feixes incidentes e difratados nas respectivas direções. Com auxílio da figura (A.2) e das equações (A.22) e (A.23) temos que os feixes incidentes e difratados na direção  $R$  são

$$S^i = \sqrt{I_S^0} \exp(-i\phi_R^0) \quad (\text{A.31})$$

e

$$S^d = -i\sqrt{I_S^0} \sin(\kappa_0 z) \exp[-(i\phi_R^0 + \alpha_0 z)]. \quad (\text{A.32})$$

Utilizando a equação (A.30) temos que a eficiência de difração fica

$$\eta = \sin^2(\kappa_0 z) \exp(-\alpha_0 z), \quad (\text{A.33})$$

onde

$$\kappa_0 = \frac{\kappa}{\cos \theta} = \frac{n_1 \pi}{\lambda \cos \theta}. \quad (\text{A.34})$$

Calculando a partir da direção do feixe  $S$  encontramos a mesma relação. Para os cristais fotorrefrativos podemos escrever a eficiência de difração da seguinte forma

$$\eta = \sin^2 \left[ \frac{\pi n^3 r_{41} |E_{sc}| d}{2 \lambda \cos \theta} \right] \quad (\text{A.35})$$

onde  $n$ ,  $r_{41}$ ,  $|E_{sc}|$ ,  $\lambda$ ,  $\theta$  e  $d$  são o índice de refração do material, elemento do tensor eletro-óptico, o modulo do campo elétrico que modula o índice de refração, o comprimento de onda, o ângulo de incidência e a espessura da rede, respectivamente. O processo de registro de hologramas em cristais fotorrefrativos é um processo dinâmico, ou seja, há uma interação entre os feixes de escrita e o holograma que está sendo gravado. Essa interação causa mudança nas amplitudes e nas fases dos feixes de escrita. Esse processo é conhecido como auto-difração [47]. A fórmula de Kogelnik [29] não descreve a dependência da eficiência de difração na presença da auto-difração.

Determinaremos agora a equação para o caso em que temos a influência da auto-difração no processo de registro dos hologramas em cristais fotorrefrativos. Como já foi visto as equações de ondas acopladas são

$$\frac{dR(z)}{dz} = i \frac{\kappa}{\cos \theta} m(z) S(z) \quad (\text{A.36})$$

e

$$\frac{dS(z)}{dz} = i \frac{\kappa^*}{\cos \theta} m^*(z) R(z), \quad (\text{A.37})$$

onde

$$m(z) = 2 \frac{S^*(z) R(z)}{I}, \quad (\text{A.38})$$

$$\kappa = \kappa_0 \exp(-i\phi) \quad (\text{A.39})$$

e

$$\kappa_0 = \frac{-\pi n^3 r_{41} E_{\text{eff}}}{2\lambda}, \quad (\text{A.40})$$

onde  $m$  é a visibilidade do padrão de luz,  $\kappa$  a constante de acoplamento e  $\phi$  a fase holográfica, diferença de fase entre o padrão de luz e o holograma formado.

Substituindo as equações (A.38) e (A.39) nas equações (A.36) e (A.37) temos

$$\frac{dR}{dz} = \frac{2i\kappa_0}{\cos \theta} \frac{|S(z)|^2 R(z)}{I} \exp(-i\phi) \quad (\text{A.41})$$

$$\frac{dS}{dz} = \frac{2i\kappa_0}{\cos \theta} \frac{|R(z)|^2 S(z)}{I} \exp(-i\phi) \quad (\text{A.42})$$

As soluções das equações (A.41) e (A.42) são facilmente obtidas fazendo

$$R(z) = \sqrt{I_R(z)} \exp(-i\phi_R) \quad (\text{A.43})$$

$$S(z) = \sqrt{I_S(z)} \exp(-i\phi_S) \quad (\text{A.44})$$

onde  $\phi_R$  e  $\phi_S$  são as fases das ondas  $R$  e  $S$  respectivamente. Substituindo as equações (A.43) e (A.44) nas equações (A.36) e (A.37) temos

$$\frac{d}{dz} I_R = -4 \frac{\kappa_0}{\cos \theta} \frac{I_S I_R}{I_R + I_S} \sin \phi \quad (\text{A.45})$$

$$\frac{d}{dz} I_S = -4 \frac{\kappa_0}{\cos \theta} \frac{I_S I_R}{I_R + I_S} \sin \phi \quad (\text{A.46})$$

$$\frac{d}{dz} \phi_R = -2 \frac{\kappa_0}{\cos \theta} \frac{I_S}{I_R + I_S} \cos \phi \quad (\text{A.47})$$

$$\frac{d}{dz} \phi_S = -2 \frac{\kappa_0}{\cos \theta} \frac{I_R}{I_R + I_S} \cos \phi \quad (\text{A.48})$$

Considerando que temos apenas uma rede de fase pura (conservação de energia) podemos escrever

$$I_R + I_S = I = I_0 \quad (\text{A.49})$$

onde  $I_0 = (cte.)$  é o valor da intensidade na face de entrada, com isso e fazendo um pouco de cálculo, temos que

$$I_R(z) = I_R^0 \frac{1 + \beta^2}{\beta^2 + \exp(\Gamma z)} \quad (\text{A.50})$$

e

$$I_S(z) = I_S^0 \frac{1 + \beta^2}{1 + \beta^2 \exp(-\Gamma z)}, \quad (\text{A.51})$$

onde

$$\beta^2 = \frac{I_R^0}{I_S^0} \quad (\text{A.52})$$

$$\Gamma = 4\kappa_0 \frac{\sin \phi}{\cos \theta} \quad (\text{A.53})$$

A solução das equações (A.47) e (A.48) determina as fases das ondas  $R$  e  $S$ , portanto as fases são

$$\phi_R(z) = \phi_R^0 - \frac{\gamma z}{4} - \Theta \quad (\text{A.54})$$

e

$$\phi_S(z) = \phi_S^0 - \frac{\gamma z}{4} + \Theta, \quad (\text{A.55})$$

onde

$$\gamma = 4\kappa_0 \frac{\cos \phi}{\cos \theta} \quad (\text{A.56})$$

e

$$\Theta = \frac{1}{2 \tan \phi} \ln \frac{\exp(\frac{\Gamma z}{2}) + \beta^2 \exp(-\frac{\Gamma z}{2})}{1 + \beta^2}. \quad (\text{A.57})$$

Na presença de absorção óptica as equações (A.50) e (A.51) ficam

$$I_R(z) = I_R^0 \frac{1 + \beta^2}{\beta^2 + \exp(\Gamma z)} \exp(-\alpha z) \quad (\text{A.58})$$

$$I_S(z) = I_S^0 \frac{1 + \beta^2}{1 + \beta^2 \exp(-\Gamma z)} \exp(-\alpha z) \quad (\text{A.59})$$

As equações (A.43) e (A.44) para  $R$  e  $S$  sempre resolvem o sistema de equações acopladas (A.36) e (A.37), mas podemos encontrar uma nova solução para esse sistema fazendo a transformação [30]

$$\mathcal{R} = -S^* \quad (\text{A.60})$$

e

$$\mathcal{I} = R^*. \quad (\text{A.61})$$

Como a nova solução é linearmente independente podemos determiná-la fazendo o produto de  $\frac{R_0^*}{I}$  pela velha solução  $(R, S)$  e subtraindo o produto de  $\frac{S_0^*}{I}$  pela nova solução  $(\mathcal{R}\mathcal{S})$  obtemos a solução para a onda difratada na direção de  $R$ , logo

$$\mathcal{R}_R = \frac{1}{I}[R_0^*R + S_0S^*] \quad \mathcal{R}_R^0 = 1. \quad (\text{A.62})$$

$$\mathcal{I}_R = \frac{1}{I}[-S_0R^* + R_0^*S] \quad \mathcal{I}_R^0 = 0. \quad (\text{A.63})$$

A eficiência de difração pode ser calculada utilizando a equação (A.30), ou seja

$$\eta = \frac{|\mathcal{I}_R|^2}{|\mathcal{R}_R^0|^2} \quad (\text{A.64})$$

Utilizando as equações (A.43) e (A.44) e suas respectivas fases podemos facilmente mostrar que a eficiência de difração na presença de auto difração e de absorção óptica é dada por

$$\eta = 2 \frac{I_R^0 I_S^0}{I} \frac{[\cosh(\frac{\Gamma z}{2}) - \cos(\frac{\gamma z}{2})]}{I_R^0 \exp(\frac{-\Gamma z}{2}) + I_S^0 \exp(\frac{\Gamma z}{2})} \exp(-\alpha z) \quad (\text{A.65})$$

Na presença da absorção óptica o tempo de relaxação dielétrica ( $\tau_M$ ) varia ao longo da espessura do material devido a absorção. Devido a isso os termos  $\Gamma z$  e  $\gamma z$  na equação (A.65) devem ser escritos na forma [48, 49, 50]

$$\Gamma z = \int \Gamma dz \quad (\text{A.66})$$

e

$$\gamma z = \int \gamma dz, \quad (\text{A.67})$$

com

$$\Gamma = \Im \left\{ \frac{4\kappa}{\cos \theta} \right\} \quad (\text{A.68})$$

e

$$\gamma = \Re \left\{ \frac{4\kappa}{\cos \theta} \right\}. \quad (\text{A.69})$$

# Apêndice B

## Medida da eficiência da difração de redes em volume

### B.1 Introdução

Eficiência de difração de redes em volume tem sido o objeto de estudo [29, 51, 52, 53] na última década tanto como interesse acadêmico como para aplicações. A eficiência de difração é de grande importância para a caracterização de materiais fotossensíveis entre os quais os cristais fotorrefrativos ocupam uma posição de destaque. A medida da eficiência de difração não é uma medida direta e livre de erros. Uma fonte de erro se deve a alta seletividade angular de Bragg intrínseca dos hologramas gravados em volume, tal erro na seletividade produz uma eficiência de difração baixa. Em materiais fotorrefrativos devido ao grau de curvatura das superfícies das amostras ocorre um efeito tipo lente. Esse efeito pode, dependendo da situação, aumentar ou diminuir o valor da eficiência de difração.

Uma técnica muito utilizada para a medida da eficiência de difração é a utilização de uma feixe de prova (de baixa potência) colocado no ângulo de Bragg da rede gravada. A eficiência de difração é feita fazendo a medida das intensidades transmitida e difratada. Entretanto como veremos mais tarde para uma amostra de  $2mm$  de espessura e uma rede com um período espacial de  $0.5\mu m$ , a seletividade angular de Bragg [29] é aproximadamente  $0.2mrad$ . O feixe de um laser de He-Ne comercial possui divergência angular de 1 a  $2mrad$ , dessa maneira torna-se difícil o posicionamento do feixe auxiliar. É possível mostrar que, exceto para redes com baixa eficiência de difração (pequena modulação de

índice) , a luz difratada, utilizando o feixe auxiliar, não é proporcional a eficiência de difração. E nessa condição o feixe auxiliar não pode ser utilizado como um controle qualitativo do processo.

Nesta parte do trabalho mostraremos uma nova técnica de medida de eficiência de difração utilizando os feixes de registro do holograma. Dessa forma evitaremos os problemas apresentados pelo feixe auxiliar, uma vez que os feixes de registro obedecem automaticamente a condição de Bragg.

### **B.1.1 Medida da eficiência de difração utilizando os feixes de registro**

A maneira de evitar o erro na medida da eficiência de difração devido a seletividade angular de Bragg é utilizar os feixes de registro pois eles estão necessariamente na condição de Bragg da rede que foi gravada.

A medida da eficiência de difração também pode ser realizada utilizando os feixes de registro e a técnica da modulação de fase. A técnica consiste modular a fase de um dos feixes de registro com uma pequena amplitude e alta frequência de modo que a frequência seja maior que a resposta do material de forma a não interferir no processo de registro. Utilizando amplificadores "lock-in" podemos medir os sinais de primeiro e o segundo harmônicos e dessa maneira calcular a eficiência de difração [27, 31]. A vantagem dessa técnica é a possibilidade de fazer a medida em tempo real. A desvantagem aparece na dependência dos parâmetros que são utilizados na conversão de voltagem em intensidade de luz (sensibilidade dos detectores) e a outros parâmetros que estão relacionados com a técnica: resposta dos amplificadores "lock-in" utilizados para sintonizarem o primeiro e o segundo harmônicos e a resposta em frequência do modulador de fase. O processo de calibração do sistema em frequência é delicado pois utilizamos um espelho piezoelétrico (PZT) (que são freqüentemente utilizados pelo fato de terem um baixo custo e de fácil manuseio) porque a resposta do PZT não é fácil de determinar com precisão e também não é um sistema muito estável.

Outra possibilidade de fazer a medida da eficiência de difração utilizando os feixes de registro é medir as intensidades difratada e transmitida enquanto um dos feixes é momentaneamente bloqueado. O tempo de bloqueio de um dos feixes deve ser suficiente

para fazer a medida e também para não perturbar a rede gravada. Entretanto, os feixes atrás da amostra não são colimados ou são fortemente focalizados ou desfocalizados dependendo do efeito de lente produzido pela amostra. A figura (B.1) mostra o efeito tipo lente produzido pela amostra. Neste caso a intensidade medida atrás da amostra

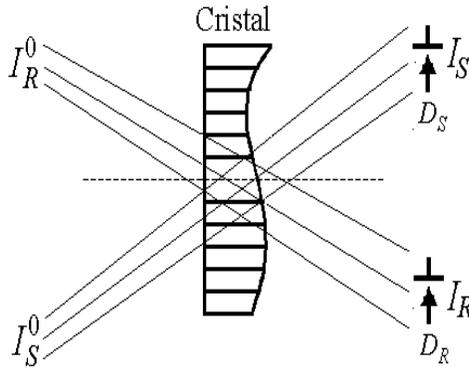


Figura B.1: *Medida da eficiência de difração: Os feixes não são colimados e a amostra produz efeito de lente.*

é fortemente dependente da posição do detector atrás da amostra e a dessa maneira a medida da eficiência de difração fica comprometida. É sempre possível realizar a medida utilizando a potência total dos feixes, mas para esse propósito é necessário utilizar lentes de modo a coletar dentro do detector toda a luz que passa pela amostra, ou podemos reduzir o tamanho dos feixes. A redução da área iluminada em cristais fotorefrativos com campo elétrico aplicado ou em cristais fotovoltaicos é indesejável pois isso provocará o acúmulo de cargas nos eletrodos e isso prejudicará a medida da eficiência difração.

Mostraremos que é sempre possível usar os feixes de registro para medir a eficiência de difração tendo efeito de lente produzido pela amostra. Vamos assumir que as intensidades ao longo de cada direção, atrás da amostra, pode ser escrita da seguinte forma

$$I_S = I_S^{t0}(1 - \eta) + I_R^{t0}\eta - 2\sqrt{\eta(1 - \eta)}\sqrt{I_S^{t0}I_R^{t0}}\cos\varphi \quad (\text{B.1})$$

$$I_R = I_R^{t0}(1 - \eta) + I_S^{t0}\eta + 2\sqrt{\eta(1 - \eta)}\sqrt{I_S^{t0}I_R^{t0}}\cos\varphi \quad (\text{B.2})$$

onde  $\varphi$  é a diferença de fase entre os feixes difratado e transmitido e  $\eta$  a eficiência de difração, definida como

$$\eta = \frac{I_d}{I_{t0}} \quad I_{t0} \equiv I_t + I_d \quad (\text{B.3})$$

onde  $I_t$  e  $I_d$  são as intensidades transmitida e difratada respectivamente. Pelo fato de serem redes grossas só teremos uma ordem de difração. A formulação mostrada na equação (B.3) é usualmente empregada [31, 54, 8] afim de evitar efeitos da absorção e do espalhamento da luz pela amostra. A resposta de cada detector nas correspondentes posições são  $K_S$  e  $K_R$  respectivamente. Consideraremos aqui detectores de natureza diferente. Neste caso as tensões medidas em cada um dos detectores  $D_S$  e  $D_R$  são respectivamente

$$V_S = K_S I_S \quad (\text{B.4})$$

$$V_R = K_R I_R \quad (\text{B.5})$$

É importante notarmos que qualquer que seja a forma dos feixes, transmitido e o difratado (ao longo da mesma direção) tem a mesma forma porque o feixe difratado é apenas a reconstrução holográfica da onda transmitida. Isto quer dizer que cada detector esta sempre medindo uma frente com uma forma constante. Para medirmos a eficiência de difração para o caso de detectores não calibrados, assumindo somente que eles possuem respostas lineares, e na presença do efeito de lente produzido pela amostra procederemos da seguinte forma:

1º- Primeiro bloqueamos o feixe incidente  $I_R^0$  e medimos em ambos os detectores os respectivos sinais dos feixes difratado e transmitido

$$V_S^S = K_S I_S^{t0} (1 - \eta) \quad (\text{B.6})$$

$$V_R^S = K_R I_S^{t0} \quad (\text{B.7})$$

2º- Da mesma maneira bloqueamos o outro feixe e repetimos a medida e, medimos os respectivos sinais

$$V_S^R = K_S I_R^{t0} \eta \quad (\text{B.8})$$

$$V_R^R = K_R I_R^{t0} (1 - \eta) \quad (\text{B.9})$$

No caso em que a medida seja feita em materiais fotossensível ela deve ser feita em um

tempo suficiente, para a aquisição dos sinais e de modo a não perturbar o holograma. Com auxílio das equações (B.6-B.9) temos

$$\frac{V_S^S / V_S^R}{V_R^S / V_R^R} = \left[ \frac{1 - \eta}{\eta} \right]^2 \quad (\text{B.10})$$

que é uma equação de 2nd. ordem em  $\eta$  e que é facilmente resolvida. É interessante salientarmos que a única exigência é que os detectores tenham repostas lineares.

### B.1.2 Medida da eficiência de difração utilizando um feixe auxiliar- Feixe de prova

A eficiência de difração de uma rede em volume devido a modulação de índice de refração foi formulada por Kogelnik [29] e descrita pela seguinte relação

$$\eta = \frac{\sin^2 \sqrt{\xi^2 + \nu^2}}{1 + \xi^2 / \nu^2} \quad (\text{B.11})$$

$$\xi \approx \theta K d / 2 \quad (\text{B.12})$$

$$\nu = \frac{\pi n_{\text{eff}}^3 r_{\text{eff}} E_{\text{sc}} d}{2 \lambda \cos \alpha} \quad (\text{B.13})$$

onde  $\theta$  é a deslocamento angular fora da condição de Bragg,  $K \equiv 2\pi/\Delta$  é o módulo do vetor da rede e  $\Delta$  o período espacial,  $d$  a espessura do holograma,  $\lambda$  o comprimento de onda da luz utilizada para a medida da eficiência de difração e  $\alpha$  o ângulo de incidência dentro do material. O valor da modulação da rede é dada por  $\nu$  que é aqui formulada para o caso particular de cristais fotorrefrativos com  $r_{\text{eff}}$  e  $n_{\text{eff}}$  sendo o coeficiente eletro-óptico e o índice de refração do material. A modulação é causada pelo campo espacial de cargas  $E_{\text{sc}}$  no volume do material. A medida da eficiência de difração pode ser feita levando-se em conta o espectro angular de ondas planas do feixe laser usado para a medida, devido a forma gaussiana do feixe a distribuição de intensidade deve ser formulada da seguinte forma [55]

$$A = A_0 e^{-\theta^2/a^2} \quad (\text{B.14})$$

onde  $a$  é a largura do espectro angular. Para um laser comercial (marca Uniphase) de  $10mW$  He-Ne e com  $0.7mm$  de diâmetro do feixe temos  $a \approx 1.2mrad$ . A medida pratica da eficiência de difração de uma rede é calculada como sendo uma soma coerente ao longo

de todo o espectro angular. Utilizando o teorema da fase estacionária [56] a eficiência de difração fica dada por

$$\bar{\eta} = I_d/I_{t0} \quad (\text{B.15})$$

com

$$I_d = \int_{\bar{\theta}-\pi/2}^{\bar{\theta}+\pi/2} \eta e^{-(\theta-\bar{\theta})^2/a^2} d\theta \quad (\text{B.16})$$

e

$$I_{t0} = \int_{\bar{\theta}-\pi/2}^{\bar{\theta}+\pi/2} e^{-\theta^2/a^2} d\theta \quad (\text{B.17})$$

onde  $\bar{\theta}$  é o ângulo central no qual será feita a integração e  $I_{t0}$  representa a intensidade total atrás da amostra como aquela descrita pela equação (B.3). É evidente que podemos expandir e colimar o feixe laser de modo a cumprir a condição de Bragg, mas este procedimento é raramente empregado pois requer alta qualidade dos componentes e consome um tempo desnecessário.

### B.1.3 Experimento

O procedimento experimental será descrito para o caso particular de uma rede em volume (1.5mm) com uma frequência espacial de  $K = 10(\mu m)^{-1}$  registrada em um cristal  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  (amostra ES002) usando polarização ordinária para os feixes de registro e comprimento de onda ( $\lambda = 514.5nm$ ). Após o registro da rede a temperatura ambiente a rede foi fixada termicamente utilizando o procedimento descrito na literatura [8] que resulta na substituição da rede eletrônica original por uma rede essencialmente de íons positivos que não é foto sensível. Após o processo de fixação a amostra é recolocada na mesma posição na qual foi realizado o registro da rede eletrônica, isso só é possível com a ajuda de um suporte fabricado especialmente para essa finalidade. Dessa maneira a eficiência de difração foi medida sem qualquer risco de dano ao holograma. A medida foi realizada utilizando os mesmos feixes de registro, como descrito anteriormente. O resultado obtido foi

$$\eta_{514}^o = 0.352 \quad (\text{B.18})$$

que pela equação (B.11) resulta em uma modulação de índice de refração de

$$\nu_{514}^o = 0.635 \quad (\text{B.19})$$

O valor da modulação de índice obtido com  $\lambda = 514.5nm$  (Eq. (B.19)) foi convertida para  $\lambda = 633nm$  obtendo

$$\nu_{633}^o = \nu_{514}^o \frac{514.5}{633} = 0.516 \quad (\text{B.20})$$

Substituindo o valor da modulação, obtido na equação (B.20), na equação (B.11) com  $\xi = 0$  temos o valor teórico para a eficiência de difração

$$\eta_{633}^o = 0.244 \quad (\text{B.21})$$

para luz com polarização ordinária e comprimento de onda  $\lambda = 633nm$ . Após a medida da eficiência de difração com luz de comprimento de onda  $\lambda = 514.5nm$  a amostra foi retirada da montagem e colocada em uma montagem auxiliar para a medida da eficiência de difração com luz de comprimento de onda  $\lambda = 633nm$ . O valor experimental da eficiência de difração foi  $[\eta_{633}^o]_{\text{exp.}} = 0.16$ . Substituindo esse valor ( $[\eta_{633}^o]_{\text{exp.}} = 0.16$ ) na equação (B.15) junto com o valor calculado na equação (B.20) e resolvendo a correspondente equação usando um algoritmo apropriado, para  $\bar{\theta} = 0$ , encontramos uma divergência  $a = 0.35mrad$  para o feixe . Com isso podemos agora checar nossos resultados para luz com polarização extraordinária de comprimento de onda  $\lambda = 633nm$ . Para isso rodamos o laser para a polarização extraordinária e realizamos a medida da eficiência de difração para diferentes valores de  $\bar{\theta}$ , tais resultados estão mostrados na figura (B.2).

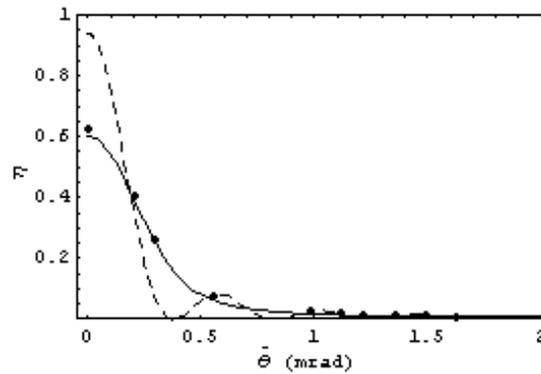


Figura B.2: *Eficiência de difração como função do deslocamento angular de Bragg  $\bar{\theta}$  em mrad para os valores medidos (círculos) e a curva teórica calculada para  $a = 0.35mrad$  (curva contínua) e para  $a \rightarrow 0$  (curva tracejada) .*

Com o resultado da modulação de índice para comprimento de onda  $\lambda = 633nm$  e luz

com polarização ordinária calculamos a modulação da rede para luz extraordinária, da seguinte forma

$$\nu_{633}^e = b_r \nu_{633}^o \quad (\text{B.22})$$

$$b_r = (n_e/n_o)^3 (r_{33}/r_{13}) \cos(2\alpha) = 2.57 \quad (\text{B.23})$$

com [12]:  $n_e = 2.22$ ,  $n_o = 2.286$ ,  $r_{33} = 30.9$  pm/V e  $r_{13} = 9.6$  pm/V. Substituindo o valor obtido para  $\nu_{633}^e$  na equação (B.15) e da mesma forma que antes calculamos a eficiência de difração como função do deslocamento angular de Bragg  $\bar{\theta}$  utilizando o valor  $a = 0.35$  mrad que caracteriza a divergência angular do feixe laser utilizado como mostrado na figura (B.2) (curva contínua). É evidente pela figura que temos uma boa concordância entre os dados experimentais e a teoria. É interessante notarmos que a curva teórica está apenas sobreposta aos dados experimentais, ou seja, não é um "fitting". A curva tracejada também mostrada na figura (B.2) é a representação teórica da eficiência de difração medida utilizando um feixe laser de prova (hipotético) com divergência angular zero ( $a \rightarrow 0$ ).

#### B.1.4 Discussão

Com um cálculo simples e com os resultados experimentais mostramos como devemos proceder para a medida da eficiência de difração quando nos deparamos com amostras que apresentam efeito de lente e também na presença inevitável da divergência angular dos feixes de prova utilizados para tais fins, especialmente em cristais fotorrefrativos onde temos uma rede gravada no volume do material onde o efeito da seletividade angular de Bragg é importante. Pode ser surpresa que uma baixa divergência como  $a = 0.35$  mrad possa produzir erros na medida da eficiência de difração, como ilustrado na figura (B.2). Este fato também é ilustrado na figura (B.3) onde calculamos a modulação aparente  $\bar{\nu}$  da medida da eficiência de difração (média)  $\bar{\eta}$

$$\bar{\nu} = \arcsin \sqrt{\bar{\eta}} \quad (\text{B.24})$$

Sem considerar a divergência angular finita do feixe de prova utilizado na medida da eficiência de difração. Pela figura (B.3) esta claro que  $\bar{\nu}$  é diferente de  $\nu$  e, principalmente

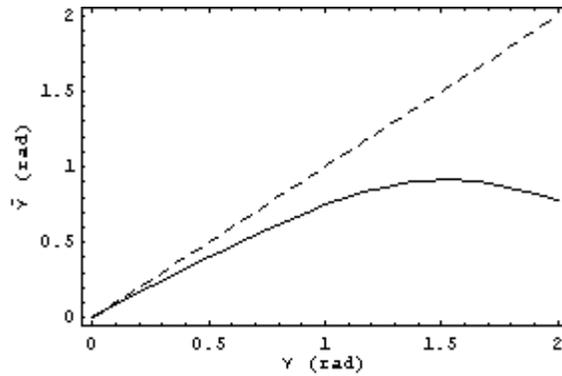


Figura B.3:  $\bar{\nu}$ , calculada pela equação (B.24), como função de  $\nu$  na condição de Bragg e com os mesmos parâmetros utilizados na figura (B.2).

podemos notar que eles não são proporcionais, exceto para valores baixos da eficiência de difração (pequena modulação de índice) .

### B.1.5 Conclusões

Nesta parte do trabalho apresentamos uma nova técnica de medida da eficiência de difração de hologramas gravados em volume, utilizando os feixes de registro que estão automaticamente na condição de Bragg. Mostramos também que o uso de um feixe de prova para a medida da eficiência de difração pode nos levar a valores incorretos devido a divergência angular, finita, que os feixes lasers possuem. O uso do feixe de prova só apresenta resultados satisfatórios para redes de baixa eficiência, quando evidentemente tomamos o cuidado em ajustar o feixe na condição de Bragg da rede.

# Apêndice C

## Apagamento seletivo

O apagamento seletivo de uma rede previamente registrada em  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  é baseado no registro de uma rede em contra-fase a rede já gravada [44, 57]. O processo de apagamento seletivo é importante no processo de fixação pois, permite conseguirmos 100% de eficiência de difração para a rede fixa, como já mostrada anteriormente. Os resultados que serão apresentados aqui se referem ao apagamento seletivo de uma rede eletrônica pura, ou seja, sem a presença de uma rede fixa obtida pelo processo de fixação. A evolução do campo eletrônico durante o apagamento seletivo da rede eletroônica pode ser escrita, com auxílio da equação (5.31), da seguinte forma

$$E_{sc}(t) = -mE_{\text{eff}}(1 - e^{-t_R/\tau_{sc}})e^{-t/\tau_{sc}} + mE_{\text{eff}}(1 - e^{-t/\tau_{sc}}) \quad (\text{C.1})$$

onde  $m$ ,  $E_{\text{eff}}$  e  $\tau_{sc}$  são as grandezas definadas anteriormente. O primeiro termo da equação (C.1) representa uma rede registrada em um tempo  $t_R$  que será apagada, o segundo termo representa a nova rede que esta sendo registrada. Para uma amostra reduzida o campo efetivo  $E_{\text{eff}}$  da equação (C.1) fica sendo o campo fotovoltaico  $E_{ph}$  como mostrado anteriormente, dessa forma temos

$$E_{sc}(t) = -mE_{ph}(1 - e^{-t_R/\tau_{sc}})e^{-t/\tau_{sc}} + mE_{ph}(1 - e^{-t/\tau_{sc}}) \quad (\text{C.2})$$

O apagamento total da rede acontece quando

$$E_{sc}(t) = -mE_{ph} \left[ 1 - (2 - e^{-t_R/\tau_{sc}})e^{-t/\tau_{sc}} \right] = 0 \quad (\text{C.3})$$

O registro de uma rede em contra fase (apagamento seletivo) é uma tarefa difícil devido as instabilidade do processo de registro holográfico. Para minimizar esse inconve-

niente a solução é utilizar a técnica do registro auto-estabilizado que foi descrito anteriormente. Vimos que o sinal de segundo harmônico pode ser escrito da seguinte forma

$$I_S^{2\Omega} = -4J_2(\psi_d)I_S^0(0)\frac{\beta^2}{1+\beta^2}\frac{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} - e^{\frac{\Gamma d}{2}} + (1-\beta^2)\cos\frac{\gamma d}{2}}{\beta^2 e^{-\frac{\Gamma d}{2}} + e^{\frac{\Gamma d}{2}}} \quad (\text{C.4})$$

se escrevermos

$$2\kappa d \equiv \sqrt{(\Gamma d)^2 + (\gamma d)^2} \quad (\text{C.5})$$

que representa a evolução da modulação de índice durante o registro, e encontrarmos os valores de  $\phi$  que produz  $I_S^{2\Omega} = 0$  para qualquer valor de  $2\kappa d$  podemos utilizar o sinal  $I_S^{2\Omega}$  com sinal de erro para operar o sistema de estabilização. Na figura (C.1) mostra que para  $\beta^2 = 1$   $I_S^{2\Omega}$  torna-se zero para  $\Gamma = 0$  ( $\phi = 0, \pi$ ) que é uma característica de amostras reduzidas. É possível mostrar que mudando o sinal do  $I_S^{2\Omega}$  no sistema de estabilização,

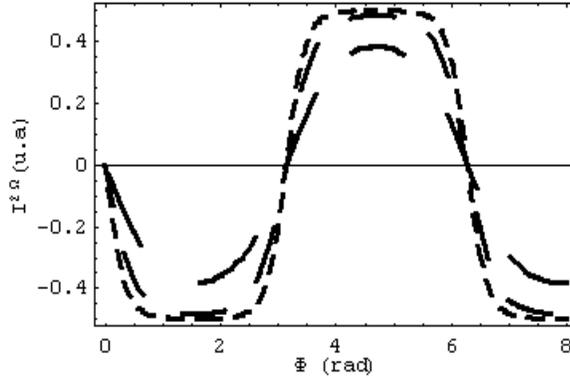


Figura C.1: Segundo harmônico  $I_S^{2\Omega}$  como função de  $\phi$  para  $\beta^2 = 1$  e  $2\kappa d = 1, 2$  e  $3$ .

após o registro de uma rede, produz uma defasagem no padrão de franjas. Entretanto essa defasagem é  $\pi$  somente para certas condições experimentais. Para amostras reduzidas, que significa um holograma local, e para  $\beta^2 = 1$  fica claro pela figura (C.1) que os zeros do sinal  $I_S^{2\Omega}$  é sempre espaçado de  $\pi$ . Dessa maneira uma mudança de sinal no  $I_S^{2\Omega}$  produz uma nova rede defasada exatamente de  $\pi$ , produzindo assim o apagamento. Para o caso em que temos  $\beta^2 = 10$  as posições dos sucessivos zeros não estão espaçados de  $\pi$ , como podemos ver pela figura (C.2). O fato de os sucessivos zero não estarem defasados exatamente de  $\pi$  implica que uma mudança no sinal  $I_S^{2\Omega}$  não irá apagar a rede registrada e sim produzira uma nova rede em outro lugar.

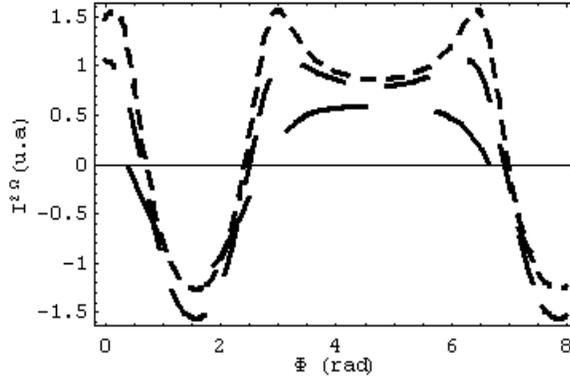


Figura C.2: Segundo harmônico  $I_S^{2\Omega}$  como função de  $\phi$  para  $\beta^2 = 10$  e  $2\kappa d = 1, 2$  e  $3$ .

## C.1 Experimentos

O experimento sobre o apagamento seletivo foi realizado com auxílio da montagem mostrada na figura (5.3). Incidimos sobre uma amostra reduzida de  $LiNbO_3 : Fe$  um padrão de intensidade com visibilidade  $m \approx 1$ . A rede foi registrada com um período  $\Lambda \approx 0.63\mu m$ ,  $I_R^0 = 141.1W/m^2$  e  $I_S^0 = 116W/m^2$ . Com um detector ao longo da direção  $S$  atrás da amostra medimos as irradiancias e com amplificadores "lock-in" sintonizados em  $\Omega$  e  $2\Omega$  estudamos a evolução dos sinais  $I_\Omega$  e  $I_{2\Omega}$ . Um feixe (não mostrado na figura) de comprimento de onda  $\lambda = 633nm$  foi colocado no ângulo de Bragg da rede registrada com  $\lambda = 514.5nm$  para seguirmos a evolução da eficiência de difração durante o processo.

## C.2 Resultados

A evolução durante o processo de apagamento seletivo auto-estabilizado é mostrado na figura (C.3). Pela figura podemos ver que o sinal de primeiro harmônico ( $I_S^\Omega$ ) aumenta em valor absoluto até um máximo, nesse ponto temos  $\eta = 50\%$ , e então decresce até atingir o ponto zero. No ponto onde  $I_S^\Omega = 0$  temos o valor máximo para a eficiência de difração, ou seja,  $\eta = 100\%$ . Vale ressaltar novamente que só atingimos  $\eta = 1$  utilizando o processo de registro auto-estabilizado. No segundo ciclo mostrado na figura (C.3) mostra a mesma evolução para o primeiro harmônico ( $I_S^\Omega$ ), com a diferença que quando atingimos  $\eta = 100\%$  mudamos o sinal do segundo harmônico, ou seja, provocamos uma defasagem de  $180^\circ$  no padrão de franjas. Nesta segunda situação sinal  $I_S^\Omega = 0$  representa a mínima

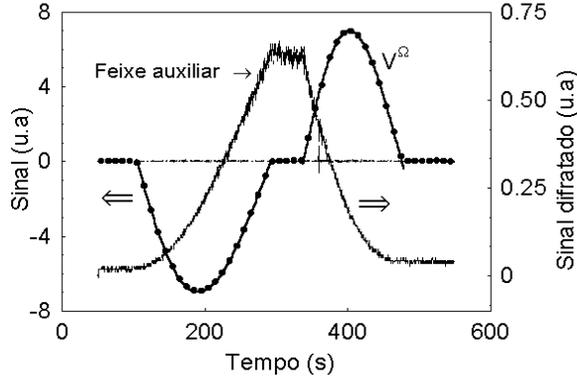


Figura C.3: *Evolução do  $I_S^\Omega$  e da eficiências de difração durante o processo de apagamento seletivo auto-estabilizado.*

eficiência de difração, ou seja, ocorreu o apagamento da rede inicialmente gravada. Para a situação mostrada na figura (C.3) o valor final para a eficiência de difração foi de 5% de uma rede inicialmente de 100% de eficiência de difração valor . Isso fica evidente quando analisamos a evolução da eficiência de difração com o feixe de auxiliar. Os dados mostrados na figura (C.3) foram ajustados com as seguintes equações

$$\left[ I_S^\Omega(t) \right]^R = J_1(\psi_d) \sqrt{I_S^0 I_R^0} \sin \left[ B m E_{ph} (1 - e^{-t/\tau_M}) \right] \quad (C.6)$$

$$\left[ I_S^\Omega(t) \right]^E = J_2(\psi_d) \sqrt{I_S^0 I_R^0} \sin \left[ B m E_{ph} (1 - (2 - e^{-t/\tau_M})) e^{-t/\tau_M} \right] \quad (C.7)$$

com

$$B \equiv \frac{\pi n_{\text{eff}}^3 r_{\text{eff}} d}{\lambda \cos \theta} \quad (C.8)$$

onde  $n_{\text{eff}}$  e  $r_{\text{eff}}$  são o índice de refração e o coeficiente eletro-óptico respectivamente,  $d$  é a espessura do cristal,  $\lambda$  o comprimento de onda de do feixe de registro e  $\theta$  o ângulo de registro dentro da amostra. Dos ajuste podemos tirar os seguintes parâmetros :  $\tau_M = 554s$  e  $\tau_M = 544s$  para a escrita e apagamento respectivamente. Um parâmetro importante para o cristal  $LiNbO_3 : Fe$  é a constante fotovoltaica que nos da informações sobre o campo fotovoltaico. Do ajuste temos para o seguinte valor para o campo fotovoltaico  $E_{ph} = 60kV/cm$  e neste caso temos para a constante fotovoltaica  $\kappa_{ph} = 19pm/V$ .

### C.3 Discussões e Conclusões sobre Apagamento Seletivo

Podemos notar pela figura (C.3) que as equações (C.6) e (C.7) se ajustam muito bem aos dados experimentais produzindo uma diferença de apenas 1% nos valores correspondentes de  $\tau_M$ . O ajuste também mostra que estamos registrando uma rede exatamente em contra fase a já existente, que não é o caso mostrado na referência [37] onde os experimentos foram realizados com  $\beta^2 \neq 1$  e os ciclos mostrados nessa referência se deve provavelmente ao registro de novas redes. Pela figura fica evidente que o processo de pagamento seletivo é mais rápido que o processo de escrita. Para o processo de escrita temos  $t_R = 187.1s$  e para o apagamento temos  $t_E = 137.6s$ . A análise da diferença entre os tempo pode ser feita com auxílio da equação (C.2). Na equação (C.2) há um termo que representa a queda da amplitude do campo como se o apagamento fosse feito com luz uniforme. Esse termo é que acelera o processo de apagamento. A medida que a nova rede vai crescendo a rede existente vai diminuindo e também o campo total se desloca de modo a uniformizar as densidades de carga pelo volume do material, tal descolamento uniforme é dado pelo primeiro termo da equação (C.2). O valor encontrado para a constante fotovoltaica esta de acordo com valor,  $\kappa_{ph} = 17pm/V$ , encontrado na literatura [19]. Como conclusão podemos dizer que é possível apagar uma rede previamente registrada em  $LiNbO_3 : Fe$  utilizando a técnica do registro auto-estabilizado para registrar uma rede em contra fase a uma já existente no material. Isso só é possível em amostras reduzidas e para  $\beta^2 = 1$ . Esses resultados também mostram a possibilidade de utilizar essa técnica para o apagamento de uma rede eletrônica após o processo de fixação a alta temperatura. Essa técnica permitiria obter uma rede fixa com 100% de eficiência de difração.

# Bibliografia

- [1] J. J. Amodei and D. L. Staebler. *Appl. Phys. Lett.*, 18:540–542, 1971.
- [2] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, M. S. Soskin, and V. L. Vinetskii. “Holographic Storage in Electrooptic Crystals. I. Steady State”. *Ferroelectrics*, 22:949–960, 1979.
- [3] M. Carrascosa and F. Agulló-López. “Theoretical modelling of fixing and developing of holographic grating in  $\text{LiNbO}_3$ ”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7:2317–2322, 1990.
- [4] A. Yariv, S. Orlov, and G. Rakuljik. . *J. Opt. Soc. Am. B*, 13:2513, 1996.
- [5] K. Buse, A. Adibi, and D. Psaltis. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals. *Nature*, 393:665–668, 1998.
- [6] A. A. Freschi, P. M. Garcia, I. Rasnik, K. Buse, and J. Frejlich. “Avoiding hologram bending in photorefractive crystals”. *Opt. Lett.*, 21:152–154, 1996.
- [7] Ivan de Oliveira, J. Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. “Self-stabilized holographic recording in reduced and oxidized lithium niobate crystals”. *Opt. Commun.*, 229:371–380, 2004.
- [8] Eva M. de Miguel, Joseja Limeres, M. Carrascosa, and Luis Arizmendi. “Study of developing thermal fixed holograms in lithium niobate”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17:1140–1146, 2000.
- [9] Ivan de Oliveira, J. Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. “Holographic phase-shift measurement during development of a fixed grating lithium niobate crystals”. *Opt. Lett.*, 28:1040–1042, 2003.

- [10] Ivan de Oliveira, J.Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. “Highly efficient fixed holograms in LiNbO<sub>3</sub>:Fe crystals”. *Opt. Commun.*, to be publish, 2005.
- [11] P. Günter. “*Photorefractive Effects and Materials—in Topics in Applied Physics: Photorefractive Materials and Their Applications I*”. Volume 61, Springer-Verlag (Berlin, Heidelberg), pp. 7-73, 1988.
- [12] A. Yariv. *Optical Electronics*. Holt, Rinehart and Winston, 3rd. international edition, 1985.
- [13] K. Buse. “Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods”. *Appl. Phys. B*, 64:273–291, 1997.
- [14] P. Günter. “Holography, coherent light amplification and optical phase conjugation with photorefractive materials”. *Physics Reports*, 93:199–299, 1982.
- [15] J.Frejlich, P.M.Garcia, and A.A.Freschi. “Advances in real-time holographic interferometry for the measurement of vibrations and deformations”. In *3rd. International Conference on vibration measurement by laser techniques*, volume 3411, pages 138–147, Ancona, Italy, June 16-19 1998. SPIE.
- [16] Ivan de Oliveira. “Modulação de índice de refração de grande amplitude em cristais fotorrefrativos”. In “*Tese de Mestrado*”, Agosto, 2001.
- [17] Luis Mosquera, Ivan de Oliveira, and J.Frejlich. “Dark conductivity, photoconductivity, and lighth-induced absorption in photorefractive crystals”. *J. Appl. Phys.*, 88:2635–2641, 2001.
- [18] L. Arizmendi and R. C. Powell. “Anisotropic self-diffraction in Mg-doped LiNbO<sub>3</sub>”. *J. Appl. Phys.*, 61:2128–2131, 1987.
- [19] R. Sommerfeldt, L. Holtman, E. Krätzig, and B. C. Grabmaier. ”Influence Mg Doping and Composition on the Light-Induced Charge Transport in LiNbO<sub>3</sub>”. *Phys.Stat.Sol.*, 106:89–98, 1988.
- [20] R. Sommerfeldt, L. Holtman, and E. Krätzig. ”The light-induced charge transport in LiNbO<sub>3</sub>:Mg,Fe crystals”. *Ferroelectrics*, 92:219–225, 1989.

- [21] J.M. Cabrera, J. Olivares, M. Carrascosa, J. Rams, R. Müller, and E. Dieguez. Hydrogen in lithium niobate. *Adv. Phys.*, 45:349, 1996.
- [22] R. Müller, M. T. Santos, L. Arizmendi, and J. M. Cabrera. “A narrow-band interference filter with photorefractive LiNbO<sub>3</sub>”. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 27:241–246, 1994.
- [23] W. Bollmann and M. Gernard. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 9:301, 1972.
- [24] A. M. Glass, D. von der Linde, and T. J. Negran. “High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO<sub>3</sub>”. *Appl. Phys. Lett.*, 25:233, 1974.
- [25] T. J. Hall, R. Jaura, L. M. Connors, and P. D. Foote. The Photorefractive Effect - A Review. *Progress in Quantum Electronics*, 10:77–146, 1985.
- [26] S. Stepanov and P. Petrov. *Photorefractive Materials and Their Applications I*, volume 61 of *Topics in Applied Physics*, chapter 9, pages 263–289. P. Günter and J.-P. Huignard, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1988.
- [27] Ivan de Oliveira and J.Frejlich. “Photorefractive running holograms for materials characterization”. *J.Opt.Soc.Am. B*, 18:219, 2001.
- [28] Ivan de Oliveira and J.Frejlich. “Dielectric relaxation time measurement in absorbing photorefractive materials”. *Opt. Commun.*, 178:251–255, 2000.
- [29] H. Kogelnik. “Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings”. *Bell Syst. Tech. J.*, 48:2909–2947, 1969.
- [30] 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.
- [31] Ivan de Oliveira and J.Frejlich. “Gain and stability in photorefractive holograms under applied electric field”. *Physical Review A*, 64:033806–1–7, 2001.
- [32] M. C. Barbosa, I. de Oliveira, and J. Frejlich. “Feedback operation for fringe-locked photorefractive running hologram”. *Opt. Commun.*, 201:293–299, 2002.

- [33] S. Bian and J. Frejlich. “Photorefractive Response Time Measurement in GaAs Using Phase Modulation in Two-Wave Mixing”. *Opt. Lett.*, 19:1702–1704, 1994.
- [34] S. Bian and J. Frejlich. “Actively stabilized holographic recording for the measurement of photorefractive properties of a Ti-foped KNSBN crystal”. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12:2060–2065, 1995.
- [35] 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.
- [36] J. Frejlich. “Fringe-Locked Running Hologram and Multiple Photoactive Species in  $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ ”. *J. Appl. Phys.*, 68:3104–3109, 1990.
- [37] P. M. Garcia, K. Buse, D. Kip, and J. Frejlich. “Self-stabilized holographic recording in  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  crystals”. *Opt. Commun.*, 117:235–240, 1995.
- [38] H. Kurz and E. Krätzig and W. Keune and H. Engelmann and U. Gonser and B. Dischler and A. Räuber. Photorefractive Centers in  $\text{LiNbO}_3$ , studied by Optical, Mössbauer- and EPR-methods. *Appl. Phys.*, 12:355, 1977.
- [39] R. Müller, M. T. Santos, L. Arizmendi, and J. M. Cabrera. . *Appl. Phys. Lett.*, 60:3212, 1992.
- [40] J. R. Herrington, B. Dischler, A. Rauber, and J. Schneider. *Solid State Commun.*, 12:351, 1973.
- [41] Ivan de Oliveira and J. Frejlich. “Diffraction efficiency measurement in photorefractive thick volume holograms”. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 5:S428–S431, 2003.
- [42] J. F. Heune, M. C. Bashaw, A. J. Baiber, R. Snyder, and L. Hesselink. . *Opt. Lett.*, 21:1615, 1996.
- [43] B. I. Sturman, M. Carrascosa, F. Agulló-López, and J. Limeres. “Theory of high-temperature photorefractive phenomena in  $\text{LiNbO}_3$  crystals and applications to experiment”. *Physical Review B*, 57:12792–12805, 1998.

- [44] Maria Aguilar, M. Carrascosa, and F. Agulló-López. “Optimization of selective erasure in photorefractive memories”. *J. Opt.Soc.Am. B*, 14:110–115, 1997.
- [45] K. Buse, S. Kämper, J. Frejlich, R. Pankrath, and K. H. Ringhofer. “Tilting of holograms in photorefractive  $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$  crystals by self-diffraction”. *Opt. Lett.*, 21:2249–2251, 1995.
- [46] D. L. Staebler and J. J. Amodei. “Coupled-Wave Analysis of Holographic Storage in  $\text{LiNbO}_3$ ”. *J. Appl. Phys.*, 43:1042–1049, 1972.
- [47] J. Frejlich. “Real-Time Photorefractive Hologram Phase-Shift Measurement and Self-Diffraction Effects”. *Opt. Commun.*, 107:260–264, 1994.
- [48] P. D. Foote and T. J. Hall. “Influence of optical activity on two beam coupling constants in photorefractive  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ”. *Opt. Commun.*, 57:201–206, 1986.
- [49] 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*, 2000.
- [50] E. Shamonina, K. H. Ringhofer, A. A. Freschi, Yi Hu, and Vladimir Ya Gayvoronsky. “The effect of bulk light absorption on running photorefractive holograms”. *Journal Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2:34–38, 2000.
- [51] J. Marotz, K. H. Ringhofer, R. A. Rupp, and S. Treichel. “Light-induced scattering in photorefractive crystals”. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-22:1373–1383, 1986.
- [52] L. Solymar and D. J. Cooke. “*Volume Holographic and Volume Grating*”. London Academic, 1981.
- [53] P. Yeh. “*Intdoduction to Photorefractive Nonlinear Optics*”. Wiley series in Pure and Apllied Optics, New York, 1993.
- [54] P. M. Garcia, A. A. Freschi, J. Frejlich, and E. Krätzig. “Scattering reduction for highly diffractive holograms in  $\text{LiNbO}_3$  crystals”. *Appl. Phys. B*, 63:207–208, 1996.
- [55] Joseph W. Goodman. “*Introduction to Fourier Optics*”. McGraw-Hill Book Company, 1968.

- [56] M. Born and E. Wolf. "*Principles of Optics*". Pergamon Press, Oxford, New York, Toronto, Sydney, Paris, 5th edition, 1975.
- [57] J. V. Alvares-Bravo and Luis Arizmendi. "Coherent erasure and updating of holograms in  $LiNbO_3$ ". *Optical Materials*, 4:419–422, 1995.