



Uso do interferômetro de Lloyd para a caracterização de cristais fotorrefrativos

Karoline Ferreira Tornisiello^{1, a)} and Ivan de Oliveira^{1, b)}

Laboratório de Óptica, Faculdade de Tecnologia/UNICAMP, Limeira-SP, Brazil.

Neste trabalho estudamos o processo de registro holográfico em materiais fotorrefrativos da família das silenitas, tais como $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO) nominalmente puro, utilizando o Interferômetro de Lloyd. Utilizando esse sistema estudamos o processo de gravação em função da intensidade da luz. Verificamos que o uso desse interferômetro reduz as perturbações de fase causadas pelo ambiente. A partir da comparação dos dados experimentais com a teoria (modelo de dois centros) determinamos vários parâmetros que caracterizam o material.

Keywords: Espelho de Lloyd, Fotorrefrativo, Interferometria holográfica.

I. INTRODUÇÃO

Os cristais fotorrefrativos são materiais fotocondutores e eletro-ópticos. Sob determinadas condições pode-se gravar um holograma de fase no volume desses materiais^{1,2}. Os materiais que sob ação da luz tem as suas propriedades modificadas, de forma permanente, são chamados de irreversíveis, já aqueles que, por ação da luz ou por outro processo retomam suas propriedades originais são chamados de reversíveis. Dentre esses materiais fotossensíveis está o cristal $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$, da família das silenitas, que é um material, fotocondutor e eletro-óptico, rápido que pode ser utilizado para processamento de sinais, imagens, e medida de vibrações². Outro material condutor e eletro-óptico amplamente utilizado para o processamento de imagens² e para o armazenamento de informações³⁻⁶ na forma de uma modulação de índice de refração é o cristal $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$, que é um cristal fotovoltaico e que dependendo do seu estado de oxidação pode ter seu tempo de resposta modificado, ou seja, aumentando ou diminuindo a fotocondutividade. A rede (holograma) gravada nos materiais fotorrefrativos é uma combinação dos efeitos da fotocondutividade e do efeito eletro-óptico. Com luz de determinado comprimento de onda, elétrons são excitados 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 da origem a um campo elétrico que modula o índice de refração do material via o efeito eletro-óptico. O holograma gravado dessa ma-

neira pode ser apagado incidindo sobre a amostra um feixe de luz uniforme. Após o apagamento do holograma a amostra pode ser utilizada novamente para um novo registro. No entanto para certas aplicações a reversibilidade passa a ser um efeito indesejado e para contornar o efeito indesejado da reversibilidade há várias técnicas para fixar hologramas no volume do material^{5,7-10}. Uma técnica muito eficiente consiste em gravarmos um holograma (rede eletrônica) a temperatura ambiente e aquecimento posterior da amostra a altas temperaturas (80-200°C) ou realizando o processo de gravação a temperatura elevada (120°C). Quando a amostra é aquecida íons de cargas positivas (H^+) presentes no volume do material se movimentam devido aos efeitos térmicos e compensam a rede eletrônica. Após a compensação a amostra é iluminada com luz uniforme a temperatura ambiente. A luz uniforme redistribui os elétrons pelo volume do material, ficando dessa forma uma rede de cargas positivas que não é sensível a luz. O material que apresenta um ótimo desempenho no processo de fixação de hologramas é o cristal $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ que é um material fotovoltaico. Esse cristal permite gravarmos e fixarmos redes altamente eficientes^{5,11,12}. A origem centros fotoativos que dão origem as redes gravadas nos materiais fotorrefrativos são os defeitos intrínsecos causados durante o processo de crescimento das amostras ou por efeito de dopagem. Em materiais como LiNbO_3 a dopagem com Fe produz um aumento no efeito fotorrefrativo. Já em materiais como o $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO) a dopagem tem se mostrado como um fator que diminui o efeito fotorrefrativo. A diminuição do efeito devido à dopagem nos cristais do tipo BTO se deve ao fato da dopagem criar centros capazes de gerar buracos, entretanto amostras nominalmente puras do cristal do tipo BTO também tem apresentado

^{a)} Electronic mail: k159799@dac.unicamp.br

^{b)} Electronic mail: ivan@ft.unicamp.br - Orientador

centros doadores de buracos¹³. Vários pesquisadores^{14–16} têm utilizados as redes gravadas em materiais fotorrefrativos do tipo $\text{Bi}_{12}\text{XO}_{20}$ ($\text{X}=\text{Ti},\text{Si},\text{Ge}$) para a medida de vibrações e deformações. As redes lentas gravadas em materiais como $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ tem sido utilizadas para o armazenamento de informações e fabricação de dispositivos difrativos¹⁷.

Neste trabalho utilizamos o interferômetro de Lloyd para a caracterização dos cristais fotorrefrativos em especial o cristal $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$. Estudamos a estabilidade desse tipo de interferômetro em comparação com outros tipos de interferômetro tais como o interferômetro dado pela geometria de transmissão. Os resultados obtidos mostram que o interferômetro de Lloyd é mais estável que o interferômetro dado pela geometria de transmissão. Isso se confirmou através da qualidade dos dados obtidos.

II. TEORIA

A. Interferometria

A gravação de hologramas em cristais fotorrefrativos é baseada na incidência sobre o material de um padrão de interferência. Um padrão de interferência pode ser descrito matematicamente da seguinte forma,

$$I_T = I_S + I_R + 2\sqrt{I_S I_R} \cos \varphi \quad (1)$$

onde I_S e I_R são as intensidades dos feixes que sofrem a interferência e φ a diferença de fase entre eles. A Eq.(1) pode ainda ser escrita da seguinte maneira,

$$I_T = I_0(1 + m \cos \varphi) \quad (2)$$

com

$$m = \frac{2\sqrt{I_S I_R}}{I_S + I_R} \quad (3)$$

onde m é a visibilidade do padrão de franjas e $I_0 = I_S + I_R$. A visibilidade das franjas determina o contraste do padrão e pode assumir os valores $0 \leq m \leq 1$.

B. Formação do holograma

Incidindo sobre um cristal fotorrefrativo um padrão de franjas como o descrito pela Eq.(1) portadores de cargas, elétrons e/ou buracos, são excitados de centros doadores para a banda de condução (elétrons) ou banda de valência (buraco) onde eles se difundem ou são arrastados por ação de um campo elétrico externo. Após esse processo os portadores de cargas recombinam-se em centros aceitadores. Como o processo de excitação se dá nas regiões claras do padrão de franjas e a recombinação nas regiões escuras ocorre a formação de uma distribuição de cargas de um sinal na região clara e de sinal contrário na região escura. Essa modulação de carga gera um campo elétrico que modula o índice de refração do material via o efeito eletro-óptico.

A modulação de índice de refração dessa maneira é o que chamamos de holograma. A amplitude dessa modulação de índice é dada por,

$$\Delta n = -\frac{\pi n^3 r |E_{sc}|}{2\lambda \cos \theta} \quad (4)$$

com n , r , λ e E_{sc} sendo o índice de refração, o coeficiente eletro-óptico, o comprimento de onda da luz dos feixes que incide sobre o cristal com o ângulo (2θ) entre eles e o campo espacial de cargas respectivamente.

1. Eficiência de difração

Um parâmetro importante da formação do holograma é a eficiência de difração. A eficiência de difração determina o quanto de luz a rede holográfica gravada no volume é capaz de difratar a luz. A eficiência de difração é dada por,

$$\eta = \sin^2(\Delta n d) \quad (5)$$

onde Δn é a amplitude de modulação do índice de refração dado pela Eq.(4) e d a espessura do cristal.

C. Modelo de dois centros

O modelo de dois centros assume a presença de centros doadores de elétrons e de buracos. Os centros doadores de elétrons e buracos estão presentes entre a banda de condução e de valência. Os elétrons são excitados para a banda de condução já os buracos para a banda de valência. Na presença de elétrons e buracos o campo elétrico que modula o índice de refração do material se dá pelo acoplamento elétrico entre duas redes, uma rápida e outra lenta. Uma delas, a rápida, é formada majoritariamente por elétrons e a lenta por elétrons e buracos. Na presença de elétrons e buracos a evolução do campo elétrico no volume do material pode ser escrito como sendo¹,

$$E_{sc} = E_f(1 - e^{-t/\tau_f}) + E_s(1 - e^{-t/\tau_s}) \quad (6)$$

onde E_f e E_s são as amplitudes das redes rápida e lenta respectivamente com as constante de tempo τ_s e τ_f .

$$\frac{1}{\tau_f} = \frac{1}{\tau_{mf}} \frac{1}{1 + K^2 L_{Df}^2} \quad (7)$$

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{1}{\tau_{ms}} \frac{1}{1 + K^2 L_{Ds}^2} \quad (8)$$

onde $K = 2\pi/\Lambda$ com Λ sendo o período do padrão de franjas, τ_{mj} , com $j = s$ e f os tempos de relaxação de Maxwell para as redes rápida e lenta, L_{Dj} o comprimento de difusão dos elétrons e dos buracos respectivamente. Os parâmetros τ_j e L_{Dj} dependem da intensidade da luz e são dados por¹⁸,

$$\tau_j = \frac{C}{L_{Dj}^2 I_0} \quad (9)$$

com

$$LD_j = \frac{L_{D0j}}{\sqrt{1 + r_j f_j}} \quad (10)$$

onde C é uma constante que depende apenas dos parâmetros intrínsecos do cristal, L_{D0} o comprimento de difusão, $r_j = N_{Dj}/N_A$, $f_j = I_0/I_{\text{sat}}$ e $I_{\text{sat}} = \gamma_R N_A/s_j$ sendo N_D a concentração total de centros, N_A a concentração de centros não fotoativos que mantém equilíbrio elétrico no escuro, γ_j a constante de recombinação e I_0 a intensidade da luz.

Utilizando a Eq.(6) podemos escrever que a eficiência de difração, Eq.(5), na presença de elétrons e buracos como,

$$\eta = |A_f(1 - e^{-t/\tau_f}) + A_s(1 - e^{-t/\tau_s})|^2 \quad (11)$$

onde A_f e A_s são as amplitudes das respectivas redes.

III. EXPERIMENTOS

A. Gravação holográfica utilizando a geometria de transmissão

Na geometria de transmissão os feixes (I_R e I_S) que geram padrão de interferência incidem do mesmo lado da amostra como mostra a Fig.1. Nesse tipo de interferômetro o caminho percorrido (braço do interferômetro) pelo feixe de luz até a interferência na amostra é relativamente grande, como é possível perceber pela figura.

Com o objetivo de estudarmos o processo de gravação holográfica em cristais fotorrefrativos, como o $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO), utilizando a geometria de transmissão montamos o interferômetro mostrado na Fig.1. O interferômetro montado possui os seguintes elementos: **Laser**, fonte de luz de comprimento de onda 532 nm; **BS**, divisor de feixes; **PBS**, divisor polarizante de feixe; **M**, espelho plano; **OBJ**, lente objetiva; $\lambda/2$ e $\lambda/4$, lâminas de retardo; **P**, Polarizador e **PZT**, espelho piezoelétrico; **Det-1** e **Det-2**, fotodetectores.

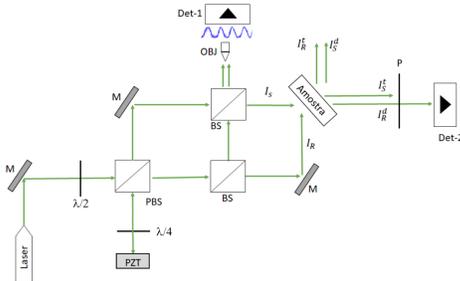


Figura 1. Montagem experimental.

As polarizações dos feixes de escrita foram escolhidas de modo que na saída os feixes transmitido e difratado

tenham polarizações ortogonais¹⁹ e devido a essa escolha podemos utilizar o polarizador **P** para bloquear o feixe transmitido (I_S^t) e deixando incidir sobre o fotodetector (**Det-2**) apenas a intensidade (I_R^d) de luz do feixe difratado.

O processo de gravação de hologramas em cristais fotorrefrativos é fortemente dependente da qualidade do padrão de interferência. Afim de determinarmos a qualidade do nosso padrão de interferência medimos a visibilidade (m). A visibilidade determina a qualidade do padrão de franjas. Com auxílio da lente **OBJ** expandimos o padrão de franjas sobre o fotodetector **Det-1** e com o espelho **PZT** provocamos o movimento do padrão de franjas e o resultado é mostrado na Fig.2.

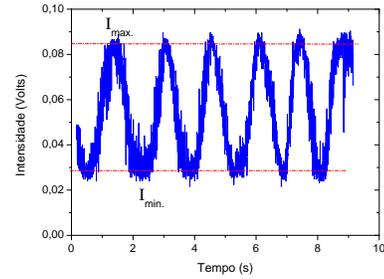


Figura 2. Movimento do padrão de franjas.

A visibilidade foi determinada a partir de²⁰,

$$m = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (12)$$

onde I_{max} e I_{min} estão representados na Fig.2 e o resultado obtido para a visibilidade foi $m \approx 0.6$.

1. Resultados

Utilizando a montagem experimental mostrada na Fig.1 medimos a evolução temporal da luz difratada (η) para diferentes intensidades dos feixes de escrita durante o processo gravação. O holograma foi gravado utilizando luz de comprimento de onda 532 nm e o cristal utilizado foi o $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO) nominalmente puro. A medida foi realizada da seguinte maneira: Com o shutter (**sh**) bloqueávamos o feixe I_S e deixamos o feixe I_R incidindo sobre a amostra, isso era necessário para que diminuíssemos a influência do efeito fotocromico. Após isso, abríamos o shutter e medimos a evolução temporal da luz difratada (η) para diferentes potências de luz. Na Fig.3 mostramos a evolução temporal da luz difratada durante a gravação. Nessa figura a linha tracejada é o ajuste com a Eq.(11) e a linha contínua o ajuste realizado com uma única exponencial.

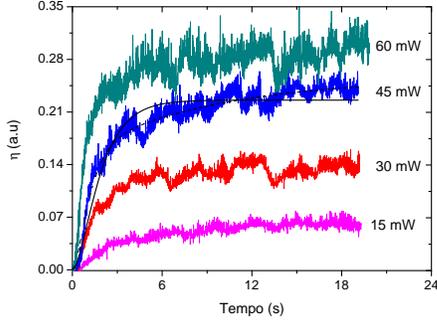


Figura 3. Eficiência de difração (η) durante a gravação do holograma em função do tempo para diferentes potências dos feixes de escrita. A linha tracejada é o ajuste com a Eq.(11) com os seguintes parâmetros obtidos: $A_f=0.39$, $A_s=0.11$, $\tau_f=0.8$ s e $\tau_s=8.44$ s, já linha contínua é o ajuste com uma única exponencial.

B. Gravação holográfica utilizando o interferômetro de Lloyd

O processo de gravação holográfica em materiais fotossensíveis pode ser realizado utilizando diferentes tipos de interferômetro, entretanto dependendo das características do interferômetro, como o tamanho dos braços do interferômetro, o processo de gravação pode ser extremamente sensível a perturbações de fase. A seguir descreveremos o interferômetro de Lloyd, que é interferômetro que tem como uma das características possuir os braços do interferômetro pequenos.

1. O Interferômetro de Lloyd

O interferômetro de Lloyd é um interferômetro como o mostrado na Fig.4. Nesse interferômetro o feixe de luz laser é expandido com auxílio uma lente objetiva (**OBJ**) e colimando pela lente (**L**). O feixe colimado possui área suficiente para iluminar o espelho (**M**) e a amostra (**crystal**). A amostra e o espelho formam entre si um ângulo de 90° .

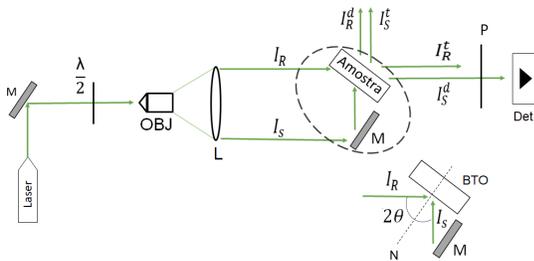


Figura 4. Interferômetro de Lloyd.

Parte do feixe colimando incide na amostra e a outra parte incide no espelho. Aquela que incide no espelho é refletida pelo mesmo e incide na amostra. Na Fig.4 o feixe refletido pelo espelho (I_S) interfere com o feixe direto (I_R) dando origem ao padrão de interferência na face do cristal. O interferômetro de Lloyd apresenta uma simplicidade muito grande em comparação aquele interferômetro mostrado na Fig.1.

2. Resultados

O interferômetro de Lloyd foi utilizado para a gravação de redes holográficas no cristal $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO). O holograma (rede de difração) foi gravado utilizando luz de comprimento de onda 532 nm. Como a amostra e o espelho formam um ângulo de 90° isso permite que a rede gravada tenha um período igual a $\Lambda=0.376 \mu\text{m}$. O período da rede gravada é determinado por $\Lambda = \lambda/(2 \sin \theta)$, com θ sendo o semi-ângulo entre os feixes I_S e I_R .

Utilizando o interferômetro de Lloyd medimos a eficiência de difração (luz difratada) durante o processo de gravação da rede holográfica para diferentes intensidades. Os resultados obtidos são mostrados nas Fig.5.

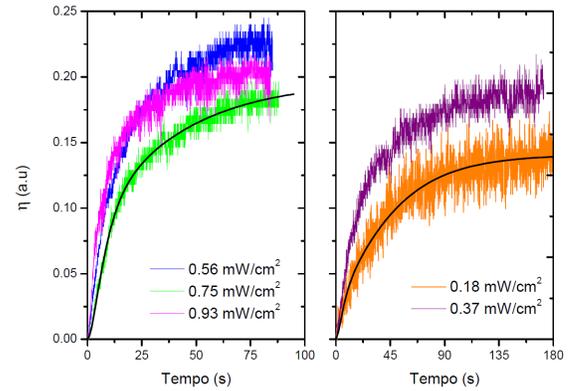


Figura 5. Evolução da eficiência de difração (η) durante o processo de gravação do holograma. A linha contínua é o ajuste com a Eq.(11).

Na Fig.5 a linha contínua é o ajuste com a Eq.(11). Do ajuste determinamos as constantes de tempo τ_f e τ_s das redes rápida e lenta respectivamente. Com os resultados obtidos para constantes de tempo um gráfico do inverso dessas constantes ($1/\tau_f$) e ($1/\tau_s$) em função da intensidade da luz foi feito e os resultados são mostrados nas Figs.6 e 7. Nessas figuras a linha contínua é o melhor ajuste com a Eq.(9) com **f** e **s** indicando as redes rápida e lenta. Desse ajuste conseguimos determinar alguns parâmetros que caracterizam o material e que são mostrados na tabela I. Na Tab.I o parâmetro Φ é a eficiência quântica, que determina a transformação de luz em portador de carga excitado.

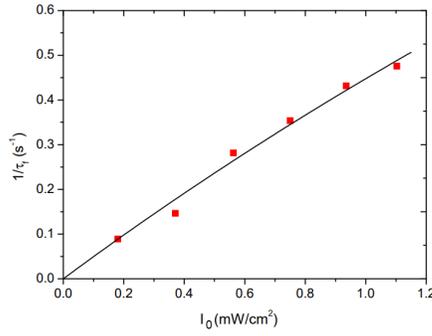


Figura 6. Inverso da constante de tempo da rede rápida ($1/\tau_f$) versus intensidade da luz. A linha contínua é o ajuste com a Eq.(9).

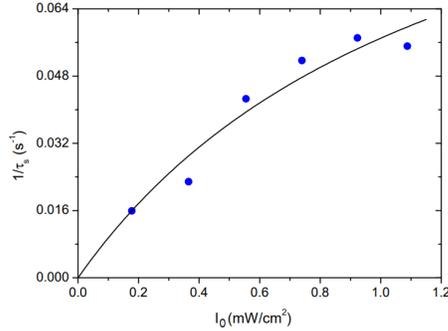


Figura 7. Inverso da constante de tempo da rede lenta ($1/\tau_s$) versus intensidade da luz. A linha contínua é o ajuste com a Eq.(9).

Parâmetros	Rede rápida	Rede lenta
L_{D0} (μm)	0.179	0.33
$I_{sat} \frac{N_A}{N_D}$ (W/m^2)	8.3	0.395
Φ	0.40	0.077

Tabela I. Parâmetros que caracterizam as redes rápida e lenta determinados pelo melhor ajuste com a Eq.(9).

IV. DISCUSSÕES E CONCLUSÕES

Neste trabalho utilizamos o interferômetro de Lloyd para o estudo processo de gravação de redes holográficas em materiais fotorrefrativos em especial no cristal nominalmente puro $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ (BTO). O processo de gravação utilizando o espelho de Lloyd como parte do interferômetro se mostrou extremamente eficiente na redução das perturbações de fase em comparação com a geometria de transmissão. Isso fica claro quando comparamos os resultados mostrados nas Fig.3 e Fig.5 para a evolução da eficiência de difração durante a gravação da rede.

A estabilidade no processo de registro holográfico das redes com o interferômetro de Lloyd permitiu obter dados confiáveis e reproduzíveis. Isso se traduz na gravação da rede lenta, uma vez que essa rede na presença de per-

turbações de fase torna-se difícil sua detecção. Por conta disso foi possível determinar alguns parâmetros que caracterizam as redes. O valor para o comprimento de difusão, $L_{D0}^f = 0.179\mu\text{m}$, obtido utilizando o interferômetro de Lloyd é o mesmo encontrado na ref.¹⁸ utilizando a técnica do registro auto-estabilizado. Para a rede lenta a literatura mostra um valor de $0.485\mu\text{m}$ porém para o comprimento de onda 514 nm ²¹. A eficiência quântica determinada para a rede rápida $\Phi_f = 0.4$ é o valor típico desses materiais²² já o valor para rede lenta $\Phi_s=0.077$ é um pouco maior se comparado com o encontrado na ref.²¹ ($\Phi_s=0.011$) porém o valor obtido nessa referência é para o comprimento 514 nm . Já o parâmetro $I_{sat}N_A/N_D=8.3\text{ W}/\text{m}^2$ para a rede rápida é ligeiramente maior ao encontrado ($5.7\text{ W}/\text{m}^2$) na literatura²³.

REFERÊNCIAS

1. J. Frejlich. *Photorefractive Materials: Fundamental Concepts, Holographic Recording, and Materials Characterization*. Wiley-Interscience, New York, 2006.
2. P. Günter. *Photorefractive Effects and Materials — Topics in Applied Physics: Photorefractive Materials and Their Applications I and II*, ed. by P. Günter, J.-P. Huignard. Volume 61 and 62, Springer-Verlag (Berlin, Heidelberg), 1988.
3. S. Breer, K. Buse, and F. Rickermann. *Opt. Lett.*, 23:73–75, 1998.
4. L. Arizmendi, A. Méndez, and J. V. Álvarez-Bravo. *Appl. Phys. Lett.*, 70:571–573, 1997.
5. J. Frejlich, I. de Oliveira, L. Arizmendi, and M. Carrascosa. *Appl. Opt.*, 46:227–233, 2007.
6. Jan Bassewitz, Ivan de oliveira, and Jaime Frejlich. *Appl. Opt.*, 47:5315–5320, 2008.
7. M. Carrascosa and F. Agullo-Lopez. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7:2317–2322, 1990.
8. K. Buse, A. Adibi, and D. Psaltis. *Nature*, 393:665–668, 1998.
9. Ivan de Oliveira, Jaime Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. *Opt. Commun*, 247:39–48, 2005.
10. Ivan de Oliveira, Jaime Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. *Opt. Lett.*, 28:1040–1042, 2003.
11. Ivan de Oliveira, Jaime Frejlich, Luis Arizmendi, and Mercedes Carrascosa. *Opt. Commun*, 229:371–380, 2004.
12. Vladimir Jerez, Ivan de Oliveira, and Jaime Frejlich. *J. Appl. Phys.*, 106:063116, 2009.
13. J. Frejlich and P.M. Garcia. *Appl. Phys. A*, 55:49–54, 1992.
14. J. P. Huignard, J. P. Herriau, and T. Valentin. *Appl. Opt.*, 16:2796–2798, 1977.
15. J. Frejlich and P.M. Garcia. *Optics & Lasers Engineering*, 32:515–527, 1999.
16. Ph. Lemaire and M. Georges. P. Günter and J-P. Huignard, 2007.
17. R. Müller, M. T. Santos, L. Arizmendi, and J. M. Cabrera. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 27:241–246, 1994.
18. Ivan de Oliveira, J.F. Carvalho, and Jaime Frejlich. *Appl. Phys. Lett.*, 102:251913–1–251913–3, 2013.
19. S. Mallick, D. Rouède, and Apostolidis. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4:1247–1259, 1987.
20. Grant R. Fowles. *Introduction to Modern Optics*. Holt, Rinehart and Winston, N. York, Chicago, Montreal, Toronto, London, 2nd. edition, 1975.
21. I. de Oliveira and Agnaldo A. Freschi and Igor Fier and J. Frejlich. *Opt. Mater. Express*, 2:228–234, 2012.
22. L. Mosquera and I de Oliveira and J. Frejlich and A. C. Hernandez and S. Lanfredi and J. F. Carvalho. *J. Appl. Phys.*, 90:2635–2641, 2001.
23. I. de Oliveira and J. Frejlich. *J. Appl. Phys.*, 112:113523, 2012.