

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

Facultad de Ciencias Exactas

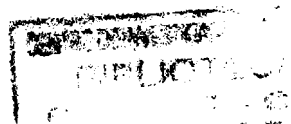
Departamento de Física



**Redes Fotorrefractivas Armónicas en el Marco del  
Modelo de Kukhtarev y sus Extensiones**

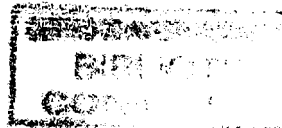
Tesis Doctoral  
**Pablo Vaveliuk**

Noviembre del 2000





Redes Fotorrefractivas Armónicas en el Marco del Modelo de  
Kukhtarev y sus Extensiones



Tesis presentada por Pablo Vaveliuk para optar al título de Doctor en Física

Director de tesis: Dr. Néstor Bolognini

Co-Director: Dr. Ricardo Duchowicz

Lugar de realización: *Centro de Investigaciones Ópticas (CIOp)*, CONICET-CICBA  
cc 124, (1900), Gonnet, Pdo. de La Plata, Pcia. de Buenos Aires

*A Beatriz Ruiz*

Los siguientes trabajos contribuyeron a la realización de esta tesis

*" Behavior of the Steady-State Photorefractive Harmonic Gratings "*

P. Vaveliuk, B. Ruiz and N. Bolognini

Physical Review B **59**, 10850 (1999).

*" Theoretical Analysis of the Photocurrent Dark Decay in Photorefractive Media"*

P. Vaveliuk, B. Ruiz, R. Duchowicz and N. Bolognini

IEEE Journal of Quantum Electronics **Q-36**, 692 (2000).

*" Transient Behavior of the Photorefractive Space-Charge Field"*

P. Vaveliuk, B. Ruiz, N. Bolognini and J. Fernandez

Physical Review B **62**, 4511 (2000).

*" Steady-State Photorefractive Harmonic Gratings within the Shallow-Trap Model"*

P. Vaveliuk, B. Ruiz, N. Bolognini and J. Fernandez

Remitido a Physical Review B.

*" An Electron-Hole Transport Model for the Analysis of the Steady-State Photorefractive Harmonic Gratings"*

P. Vaveliuk, B. Ruiz, N. Bolognini and J. Fernandez

En preparación.

# Índice

<b>I</b>	<b>Introducción general</b>	<b>7</b>
I.1	Antecedentes y objetivos . . . . .	7
I.2	Esquema general . . . . .	13
<b>II</b>	<b>Generalidades del efecto fotorrefractivo</b>	<b>15</b>
II.1	Introducción . . . . .	15
II.2	Caracterización experimental del efecto fotorrefractivo . . . . .	18
II.2.1	Técnica del compensador . . . . .	18
II.2.2	Técnica holográfica . . . . .	20
II.2.3	Posibles configuraciones de la técnica holográfica . . . . .	23
II.3	Características del efecto fotorrefractivo . . . . .	24
II.3.1	Parámetros intrínsecos más relevantes . . . . .	26
II.3.2	Aplicaciones del efecto fotorrefractivo . . . . .	27
<b>III</b>	<b>Modelos teóricos</b>	<b>29</b>
III.1	Antecedentes históricos . . . . .	29
III.2	El cristal fotorrefractivo como sistema mecanocuántico . . . . .	31
III.3	Modelo de Kukhtarev . . . . .	34
III.4	Modelo de trampas superficiales . . . . .	39
III.5	Modelo con un mecanismo de transporte electrón-hueco . . . . .	43
<b>IV</b>	<b>Obtención de las redes fotorrefractivas armónicas</b>	<b>48</b>
IV.1	Introducción . . . . .	48
IV.2	Desarrollo de Fourier del campo espacial de carga . . . . .	49
IV.3	Amplitudes de las redes fotorrefractivas armónicas . . . . .	51
IV.3.1	En el marco del modelo de Kukhtarev . . . . .	51
IV.3.2	En el marco del modelo de trampas superficiales . . . . .	55
IV.3.3	En el marco de modelos con transporte bipolar de carga . . . . .	57
<b>V</b>	<b>Comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas</b>	<b>62</b>
V.1	Introducción . . . . .	62
V.2	En el marco del modelo de Kukhtarev . . . . .	63
V.2.1	Dependencia con la intensidad, factor de modulación, espaciado de red y campo aplicado . . . . .	63

<i>Índice</i>	6
V.2.2 Distribución espacial del campo fotorrefractivo . . . . .	70
V.3 En el marco del modelo de trampas superficiales . . . . .	74
V.3.1 Dependencia sublineal de los portadores de carga en función de la intensidad de excitación . . . . .	75
V.3.2 Dependencia con la intensidad, factor de modulación, espaciado de red y campo aplicado . . . . .	77
V.3.3 Distribución espacial del campo fotorrefractivo . . . . .	91
V.4 En el marco de modelos con transporte bipolar de carga . . . . .	95
V.4.1 Dependencia de las redes armónicas con los principales parámetros externos . . . . .	96
V.4.2 Distribución espacial del campo fotorrefractivo . . . . .	109
<b>VI Conclusiones</b>	<b>113</b>
VI.1 Conclusiones generales . . . . .	113
VI.2 Resumen de las conclusiones . . . . .	117
<b>Bibliografía</b>	<b>119</b>

# Capítulo I

## Introducción general

### I.1 Antecedentes y objetivos

El efecto fotorrefractivo fue descubierto accidentalmente por Ashkin y col. en 1966 cuando intentaban generar la segunda armónica en un cristal de niobato de litio ( $\text{LiNbO}_3$ ) utilizando altas intensidades de radiación<sup>[1]</sup>. Dichos investigadores observaron una dispersión espacial del haz incidente al atravesar el cristal y a este fenómeno lo llamaron *daño óptico*, ya que el mismo inhibía las condiciones de acoplamiento de fase necesarias para la generación del segundo armónico. Luego, el mismo fenómeno fue observado en otro tipo de materiales, y se lo asoció con un cambio local en el índice de refracción<sup>[2]</sup>. Desde su descubrimiento, numerosos grupos de investigación se abocaron a la tarea de comprender y explicar dicho efecto y los procesos microscópicos en él involucrados. Sin embargo, un modelo global que explicase la mayoría de los resultados experimentales no fue desarrollado hasta una década más tarde, en 1976, por un grupo de investigadores de Kiev<sup>[3],[4]</sup>. Dicho modelo fue universalmente aceptado y se conoce como *modelo de transporte por bandas*<sup>1</sup>, ó modelo de Kukhtarev, y describe la interacción no lineal entre la radiación inhomogénea incidente y el medio fotorrefractivo por la combinación de varios procesos: fotogeneración y atrapamiento de portadores de carga libres, electrones ó huecos, a partir de centros de impurezas y defectos en el medio, junto con el transporte de tales portadores por mecanismos de difusión y/ó arrastre que produce inhomogeneidades locales en la densidad de carga en el medio, que a su vez origina un campo eléctrico local, llamado campo espacial de carga.

---

<sup>1</sup>del inglés *band transport model*, nombre introducido en la ref.[6], con posterioridad a la formulación de Kukhtarev.

Dicho campo es, finalmente, el responsable del cambio en el índice de refracción vía el efecto Pockels ó electroóptico lineal. La interacción entre la luz láser y el medio fotorrefractivo conduce a que estos materiales tengan una diversidad de aplicaciones en el campo de la óptica, optoelectrónica y fotónica, entre las cuales citamos<sup>[5]</sup>: registros de hológramas de volumen en tiempo real, almacenamiento de los mismo por tiempos prolongados, filtros interferenciales, conjugadores de fase, acoplamiento de dos haces, y otros.

Desde un punto de vista teórico, el aspecto fundamental es determinar el comportamiento del campo espacial de carga dentro del cristal en el marco del modelo de Kukhtarev, a partir de un conjunto de ecuaciones no-lineales y acopladas, llamadas ecuaciones del material, puesto que la intensidad de dicho campo local determina la intensidad de la red de índice de refracción almacenada en el cristal fotorrefractivo y cuya existencia se manifiesta midiendo la eficiencia de difracción  $\eta$ , observable fundamental del efecto fotorrefractivo<sup>[6]</sup>. La eficiencia de difracción está relacionada con la variación de índice de refracción  $\Delta n$ , por medio de la teoría del acoplamiento de ondas en medios materiales, desarrollada por Kogelnik<sup>[7]</sup>. Cuando los experimentos son realizados en el régimen de muy baja intensidad de la modulación  $m$ , a partir de un patrón de excitación de dos ondas coherentes que interfieren, tal que se cumple la condición experimental  $m \ll 1$ , una única red de índice (la red fundamental) es registrada en el medio. Este es el llamado régimen lineal<sup>[8]</sup>, el cual se estudió intensamente desde un punto de vista teórico obteniéndose soluciones analíticas de las ecuaciones de Kukhtarev. Tales soluciones determinaron la evolución temporal y el comportamiento estacionario de la red fundamental en ciertos casos particulares de excitación y para materiales que satisfacían ciertos requisitos en sus propiedades intrínsecas<sup>[8]-[13]</sup>. Pero sólo recientemente una solución analítica general para la red fundamental, válida para la mayoría de los regímenes de excitación fue encontrada y verificada experimentalmente<sup>[14]</sup>.

Por otro lado, también se observó difracción en redes de índice armónicas, en condiciones experimentales que producen elevados valores en el factor de modulación. Las redes armónicas fueron observadas en diversos materiales fotorrefractivos como titanato de bario ( $\text{BaTiO}_3$ )<sup>[15],[16]</sup>, niobato de bario y estroncio (SBN)<sup>[15]</sup>, niobato de bario, estroncio, potasio y sodio (BSKNN)<sup>[15]</sup>, óxido de bismuto y titanio (BTO)<sup>[17]</sup>, y óxido de bismuto y silicio (BSO)<sup>[18],[19],[20]</sup>. Cada una de las  $\nu$ -ésimas redes armónicas fotorrefractivas representa una red de difracción sinusoidal de frecuencia espacial  $\nu K$  con  $\nu \in \mathbb{N}$  y siendo  $K$  la frecuencia espacial de la red fundamental, tal que cada  $\nu$ -ésima red armónica difracta un haz de lectura en ángulo de incidencia que satisface la condición de Bragg para su período espacial.



La observación de las redes fotorrefractivas armónicas generó grandes expectativas respecto de una de las principales aplicaciones de estos cristales: el almacenamiento de información en forma holográfica. Además de la información registrada en la red fundamental, el cristal permitiría almacenar información en las redes armónicas, potenciando su uso como memoria holográfica. Pero también las redes armónicas pueden producir un efecto indeseable: pérdida de calidad de la información almacenada en una red a causa del entrecruzamiento de la información registrada en las diferentes redes (*cross-talk*). Todo ello motivó a muchos grupos de grupos de investigación a estudiar el comportamiento de las redes armónicas con el fin de precisar los rangos de valores de los parámetros internos y externos donde las redes armónicas deberían ser apreciables experimentalmente. Los estudios se realizaron en el marco del modelo de Kukhtarev, que considera especies de impurezas fotoactivas que generan niveles energéticos profundos dentro del  $\text{gap}^2$  de energías prohibidas y un único portador de carga, ó electrones ó huecos, en el medio fotorrefractivo. Desafortunadamente, la complejidad de las ecuaciones del material, por ser no-lineales y acopladas, sumado al hecho de no poder desprestigiar los términos de orden superior en los desarrollos de Fourier de las soluciones, no ha permitido, hasta la fecha, obtener soluciones analíticas exactas que predigan rigurosamente la evolución del campo espacial de carga, en el llamado régimen no lineal ( $m \sim 1$ ). En dicho régimen, las ecuaciones de Kukhtarev fueron resueltas mediante métodos aproximados, de carácter perturbativo<sup>[21]–[25]</sup>, ó numérico<sup>[26]–[33]</sup>. Lamentablemente, los resultados obtenidos en dichos trabajos fueron poco significativos y en algunos casos imprecisos. La utilización de métodos aproximados condujo a la aparición de ciertas inconsistencias y contradicciones, como por ejemplo, que partiendo de similares consideraciones teóricas, la dependencia de la intensidad de las redes armónicas en función del factor de modulación resultó superlineal en ciertos trabajos<sup>[16],[28]–[31],[34]</sup>, y sublineal en otros<sup>[26]–[27],[36]</sup>.

A esta limitación teórica sobre el conocimiento del modelo de Kukhtarev se le sumó otra de índole experimental. Una revisión bibliográfica dió cuenta de muchos resultados en diversos materiales que no pudieron ser interpretados por este modelo. Esto indica que la formación de redes fotorrefractivas se ve directamente afectada por la intervención de determinados procesos dinámicos que no son tenidos en cuenta por el modelo de Kukhtarev. Ciertos resultados, como la dependencia sublineal de la fotoconductividad en función de

---

<sup>2</sup>Conservamos la terminología inglesa ya que la misma se utiliza usualmente en la bibliografía en idioma español, aunque el término *salto* es también utilizado.

la intensidad media de excitación<sup>[37]</sup>, la dependencia del ritmo del decaimiento en la oscuridad de la red fundamental en función de la intensidad de registro<sup>[38]</sup>, la formación y el decaimiento de la eficiencia de difracción en tiempos múltiples<sup>[39]–[44]</sup>, decaimiento en tiempos múltiples de la fotocorriente<sup>[40],[42],[45],[46]</sup>, la dependencia con la intensidad y el vector de onda del acoplamiento electroóptico<sup>[47]</sup>, y la amplificación de la amplitud de la red fundamental mediante un campo eléctrico alternante de alta frecuencia<sup>[48]</sup>, únicamente pudieron ser interpretados postulando la existencia de niveles energéticos superficiales, originados por defectos ó impurezas adicionales a las que generan los niveles profundos. Estos resultados indican la presencia de trampas superficiales en muchos materiales, entre los cuales podemos citar sillenitas como el BSO, ferroeléctricos como el BaTiO<sub>3</sub> y semiconductores como el CdTe, en variantes con diferentes dopantes y concentración de impurezas. Dichos niveles superficiales tienen la propiedad de acumular carga y ser térmicamente reexcitables a temperatura ambiente. Al igual que en el modelo de Kukhtarev, se mantiene un mecanismo de transporte unipolar de carga en el material, es decir la conducción se produce, ya sea por electrones ó por huecos, pero no simultáneamente. A esta extensión del modelo de Kukhtarev se la llamó *modelo de trampas superficiales*<sup>3</sup> y comenzó a ser muy utilizado a principios de los noventa. Desde un punto de vista teórico, la resolución de las ecuaciones del material en el marco de este modelo es todavía más dificultosa que dentro del modelo de Kukhtarev, debido a la variable adicional postulada (especie de impureza superficial) que hace más complejo al conjunto de ecuaciones materiales. Dentro del régimen lineal,  $m \ll 1$ , el modelo de trampas superficiales fue también extensamente estudiado y la evolución temporal de la red fundamental y su comportamiento estacionario fueron determinados en muchos casos particulares de interés<sup>[49]</sup>. Sin embargo, y como consecuencia de una mayor dificultad en la resolución de las ecuaciones materiales donde los términos de orden superior del desarrollo de Fourier de las soluciones no pueden ser despreciados, el modelo de trampas superficiales no ha sido utilizado en analizar y predecir el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas, ni aún con restricciones específicas. Esto pone en evidencia una falencia en el conocimiento de la respuesta de los materiales que en determinadas condiciones de excitación generan y/ó utilizan sus trampas superficiales en los procesos fotorrefractivos dentro del régimen no lineal.

Desafortunadamente, el modelo de trampas superficiales no logró interpretar todos

---

<sup>3</sup>del inglés *shallow-trap model*

los resultados experimentales en los que falla el modelo de Kukhtarev. En efecto, cualquier modelo que postula transporte unipolar de la carga no explica los resultados obtenidos en medidas del coeficiente de ganancia, parámetro que indica el intercambio energético entre los haces que interfieren, en función del período de la red y/o intensidad de radiación en ciertos materiales fotorrefractivos, dopados ó no dopados, como algunas sillenitas, ferroeléctricos y semiconductores<sup>[50]-[60]</sup>. Muchos experimentos muestran un cambio de signo en el coeficiente de ganancia<sup>[54],[56],[61]-[62]</sup>. Como se sabe que dicho coeficiente es directamente proporcional al campo espacial de carga<sup>[6]</sup>, tal peculiar comportamiento fue necesariamente atribuido a un proceso de competición electrón-hueco en el transporte de la carga, y el signo en el coeficiente de ganancia fue unívocamente relacionado con el portador de carga mayoritario<sup>[62]</sup>. Más aún, el portador minoritario puede hacerse significativo frente al mayoritario y la compensación de la carga producida puede apantallar el campo espacial de carga, perjudicando la eficiencia en el registro de las redes de índice de refracción. Por lo tanto, es importante un conocimiento teórico detallado de la influencia del transporte simultáneo electrón-hueco en los procesos fotorrefractivos.

Dentro de este marco, Valley<sup>[63]</sup> y Strohkendl y col.<sup>[64]</sup> fueron los primeros en analizar materiales fotorrefractivos por medio de modelos con fotogeneración, transporte y reatrapamiento simultáneo de electrones y de huecos. En efecto, tomando como base el modelo de Kukhtarev, Valley desarrolló un modelo de conducción electrón-hueco que postula especies de impurezas fotorrefractivas que generan niveles energéticos profundos dentro del gap de energías prohibidas que a su vez son responsables de la fotogeneración y recombinación de ambos tipos de portadores de carga: las impurezas donoras se asocian con la fotogeneración y recombinación de electrones, mientras que las aceptoras son responsables de la fotogeneración y recombinación de huecos<sup>[63]</sup>. A este modelo lo llamaremos *modelo de transporte bipolar de carga*<sup>4</sup>. Desde un punto de vista experimental, se estudiaron muchos materiales fotorrefractivos con conducción simultánea de electrones y huecos por más de dos décadas<sup>[65]-[66]</sup>. Debido a las simplificaciones en las ecuaciones que introduce el llamado régimen lineal, el comportamiento de la amplitud fundamental del campo espacial de carga se estudió extensamente en dicho régimen y su dependencia con los principales parámetros fue predicha en muchos casos de interés<sup>[50],[53],[60],[63]-[64],[67]</sup>. También, modelos de conducción electrón-hueco con diferente número de especies fotorrefractivas fueron analizados

---

<sup>4</sup>A diferencia del modelo de Kukhtarev y el de trampas superficiales, a este modelo no se le asigna un nombre específico en la literatura.

recientemente desde un punto de vista comparativo<sup>[68]</sup> y se determinaron parámetros fundamentales del material asociados con cada uno de los portadores<sup>[69]</sup>. El extenso estudio reportado en régimen lineal contrasta con el escaso estudio en régimen no lineal. Como consecuencia, prácticamente no se conoce el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas en el marco del esquema de transporte electrón-hueco. En efecto, se reporta un único trabajo, concebido por Boutsikaris y col.<sup>[70]</sup>, que analiza en forma aproximada, mediante un método perturbativo de resolución, el comportamiento relativo de la red fundamental y segundo armónico.

En vista de todo lo mencionado, queda claro que el conocimiento del régimen no lineal, donde se generan las redes fotorrefractivas armónicas está prácticamente limitado a un conocimiento aproximado del modelo de Kukhtarev. A esto se agrega la inexistencia casi total de un análisis teórico del régimen no lineal para materiales en los cuales existen trampas superficiales eficientes, ó un mecanismo de transporte electrón-hueco. Por lo tanto, dicho desconocimiento limita el análisis de las redes fotorrefractivas armónicas a situaciones casi ideales: un reducido número de materiales fotorrefractivos que no presentan procesos dinámicos adicionales a los postulados por el modelo de Kukhtarev y bajo condiciones de excitación muy restrictivas que no tienen en cuenta el régimen no lineal. Estas limitaciones nos han motivado a investigar el comportamiento teórico de las redes fotorrefractivas armónicas estacionarias en un marco global, es decir, resolviendo en forma exacta y sin simplificaciones las ecuaciones materiales dentro del modelo de Kukhtarev y las mencionadas extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de transporte bipolar de carga, en un rango muy amplio de variación de los parámetros experimentales que incluye el régimen no lineal. Ello permite analizar las redes armónicas en términos de la intensidad media de excitación, la profundidad de modulación, el espaciado de red y el campo eléctrico aplicado. También, a partir del riguroso conocimiento de las amplitudes y fases de las redes fotorrefractivas armónicas, es posible obtener la precisa distribución del campo espacial de carga dentro del cristal en conjunción con la cantidad de componentes armónicas necesarias para su convergencia. Todo ello permite identificar las diferentes regiones de comportamiento lineal y no lineal. Todos los resultados han sido comparados para los modelos dinámicos aquí estudiados.

## I.2 Esquema general

En el Capítulo II, se presentan las generalidades del efecto fotorrefractivo, y la primera sección describe el efecto desde su accidental descubrimiento, hasta su relación con la variación en el índice de refracción del medio, caracterizándolo como un efecto no lineal asociado a una susceptibilidad de tercer orden. En la siguiente sección se describe brevemente las técnicas experimentales usuales que se emplean para caracterizar el efecto fotorrefractivo, es decir las técnicas del compensador y la técnica holográfica. Se identifica y se define al observable fundamental en la caracterización del efecto: la eficiencia de difracción en términos de la amplitud de la red de índice para las configuraciones de transmisión y reflexión. Luego, en las siguientes secciones se describen brevemente los materiales más usuales que presentan dicho efecto, acotando los valores de los parámetros intrínsecos más relevantes, como por ejemplo, los tiempos de respuesta y de almacenamiento para los distintos materiales fotorrefractivos. En la última sección se menciona brevemente las aplicaciones más usuales y potenciales de los cristales fotorrefractivos.

A continuación, en el Capítulo III, se describen los modelos teóricos que generalmente se emplean para explicar desde un punto de vista fenomenológico el efecto fotorrefractivo. Tras una breve introducción histórica, se hace una descripción teórica de la estructura energética de los sólidos. La siguiente sección comienza con la descripción del clásico y bien conocido modelo de Kukhtarev. Se presentan los axiomas básicos de dicho modelo y se deriva el conjunto completo de las llamadas ecuaciones del material que describen matemáticamente dicho modelo. Las secciones siguientes detallan las extensiones dinámicas del modelo de base de Kukhtarev. Primero se describe el modelo de trampas superficiales. Se comienza con el nacimiento y desarrollo histórico de tal modelo, justificado para interpretar ciertos resultados experimentales que no pudieron ser explicados con el modelo de Kukhtarev. Luego de los axiomas generales, se describen matemáticamente las ecuaciones del material correspondientes a este modelo. Por último, se introduce el modelo de transporte bipolar (electrón-hueco) de carga generadas a partir de especies de impurezas donoras y aceptoras. Tal modelo es el más utilizado para describir los resultados experimentales que no pueden ser explicados por modelos de transporte unipolar de carga, como el cambio de signo en el coeficiente de ganancia en el acoplamiento de haces. Además, se postulan los axiomas generales y se obtienen las ecuaciones del material.

El Capítulo IV está referido a la obtención en términos de los principales parámetros

propios del medio y externos, de las redes fotorrefractivas armónicas que se observaron en diversos materiales fotorrefractivos a partir de las ecuaciones del material. Se relaciona a las distintas redes de índice de refracción con las diferentes componentes de Fourier de campo espacial de carga, caracterizadas por la amplitud y el corrimiento de fase con respecto al patrón de excitación interferométrico. Por último, se obtiene en forma analítica las amplitudes y fases de las componentes armónicas en el marco de los modelos descritos en el capítulo precedente, lográndose un conocimiento detallado de las redes fotorrefractivas armónicas y su rol en la caracterización del efecto fotorrefractivo.

En el Capítulo V se estudia el comportamiento de la red fotorrefractiva fundamental y sus armónicos en función de los principales parámetros de excitación: la intensidad de excitación, la profundidad de modulación, el espaciado de red, y el campo eléctrico externo, en un amplio rango experimental. Se identifican los diferentes intervalos de estos parámetros en donde el material responde de manera lineal y no lineal, y las regiones de los mismos donde las redes fotorrefractivas armónicas son apreciables frente a la red fundamental. También, se analiza la distribución espacial del campo fotorrefractivo dentro del medio y la relación entre la pérdida del perfil sinusoidal con los efectos no lineales de generación de las redes armónicas superiores. Cada una de las secciones se dedica al análisis para uno de los modelos descritos en esta tesis. También, se analiza comparativamente el comportamiento de las redes y se asocian los distintos comportamientos con la influencia de los parámetros propios de cada uno de estos modelos.

Finalmente, en el Capítulo VI, se resumen las conclusiones de este trabajo. En la primer sección se describen las conclusiones generales y en la segunda se resumen los resultados más significativos del comportamiento de la red armónica fundamental y sus armónicos relevantes, como así también la respuesta lineal y no lineal del medio, asociada con la generación ó no de estos armónicos, en el marco del modelo de Kukhtarev, de trampas superficiales y el modelo de conducción bipolar de carga con impurezas donoras y aceptoras.

## Capítulo II

# Generalidades del efecto fotorrefractivo

### II.1 Introducción

Se denomina efecto fotorrefractivo al cambio local en el índice de refracción de un medio producido por radiación electromagnética espacialmente inhomogénea, en el intervalo de frecuencias ópticas, aunque dependiendo de las características del material, también puede generarse si se irradia en los rangos infrarrojo y ultravioleta. Fue descubierto por Ashkin y col. mientras intentaban generar segundo armónico empleando cristales de niobato de litio ( $\text{LiNbO}_3$ ) y tantalato de litio ( $\text{LiTaO}_3$ ). Observaron que cuando un haz de un láser de alta intensidad incidía sobre el cristal, se producía una distorsión en el perfil del haz transmitido, la cual aumentaba cuando la polarización de los haces era paralela al eje óptico del cristal. Estos investigadores dedujeron que el haz alteraba el índice de refracción extraordinario del medio y llamaron a este efecto *daño óptico* debido a que limitaba la utilidad de estos materiales para la generación de segundo armónico destruyendo las condiciones de ajuste de fase óptica (*phase matching*).

Además de los ferroeléctricos mencionados, el efecto fotorrefractivo fue observado posteriormente en otros cristales: semiconductores como el KTN<sup>[71]</sup>, CdS<sup>[72]</sup>, SBN<sup>[73]</sup>, otros ferroeléctricos como  $\text{BaTiO}_3$ <sup>[74]</sup>, tipo sillenitas como BSO ( $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ ) y BGO ( $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ )<sup>[75]</sup> y en la última década fue también encontrado en cristales orgánicos<sup>[76]</sup>, en polímeros<sup>[77]</sup> y en pozos cuánticos en semiconductores<sup>[78]</sup>.

El efecto fotorrefractivo es un efecto óptico *no lineal* basado en el efecto electroóptico lineal o efecto Pockels y por lo tanto asociado a una susceptibilidad de tercer orden. Es bien sabido que cuando la contribución de los términos de orden superior puede ser despreciada, la relación entre la polarización inducida y el campo eléctrico es lineal, tal que las propiedades ópticas del medio se encuentran completamente caracterizadas por la susceptibilidad de primer orden  $\chi^{(1)}$  siendo el índice de refracción

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)}. \quad (\text{II.1})$$

Sin embargo, el campo eléctrico del haz incidente puede ser comparable a los campos internos que mantienen ligados a electrones y átomos en el medio óptico, así, cuando se emplean haces de luz generados por láser de alta potencia, aparecen nuevos efectos debido a la contribución no despreciable de los términos no lineales en el vector polarización

$$P_i = \epsilon_0 \chi_{ij}^{(1)} E_j + \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \epsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l. \quad (\text{II.2})$$

Por ejemplo,  $\chi^{(2)}$  se asocia la generación de segundo armónico y rectificación óptica y, ligados a  $\chi^{(3)}$  están la generación de tercer armónico y cambio de índice de refracción del material con la intensidad del campo eléctrico aplicado (efecto electroóptico). A diferencia de los otros efectos no lineales que producen alteraciones en el índice de refracción, en el efecto fotorrefractivo se introduce una dependencia espacial en el definición de  $\chi^{(3)}$ .

La generación del efecto fotorrefractivo puede explicarse como sigue: en el cristal existen centros de impurezas y/o defectos que producen niveles electrónicos situados dentro del gap de energías prohibidas. Cuando el cristal es iluminado por un haz de luz espacialmente inhomogéneo y con cierta longitud de onda capaz de ionizar las impurezas donoras y/o aceptoras, se genera una densidad de carga libre, ya sean electrones en la banda de conducción, ó bien huecos en la banda de valencia (ó ambos), proporcional a la densidad local de la intensidad de la radiación. Estos portadores de carga libres pueden migrar a través del cristal por algún mecanismo de transporte, difusión debido a un gradiente de concentración de las cargas libres y/o arrastre en presencia de un campo eléctrico, para finalmente ser reatrapados por impurezas que actúan como trampas y eventualmente, re-activados. Dada la distribución no uniforme de intensidad luminosa, generada por ejemplo por la interferencia de dos haces, resultará una distribución no uniforme de cargas libres. En efecto, en la región del espacio donde la intensidad de luz es más débil, la concentración de portadores de carga libre será baja al permanecer estos mayoritariamente ligados a las



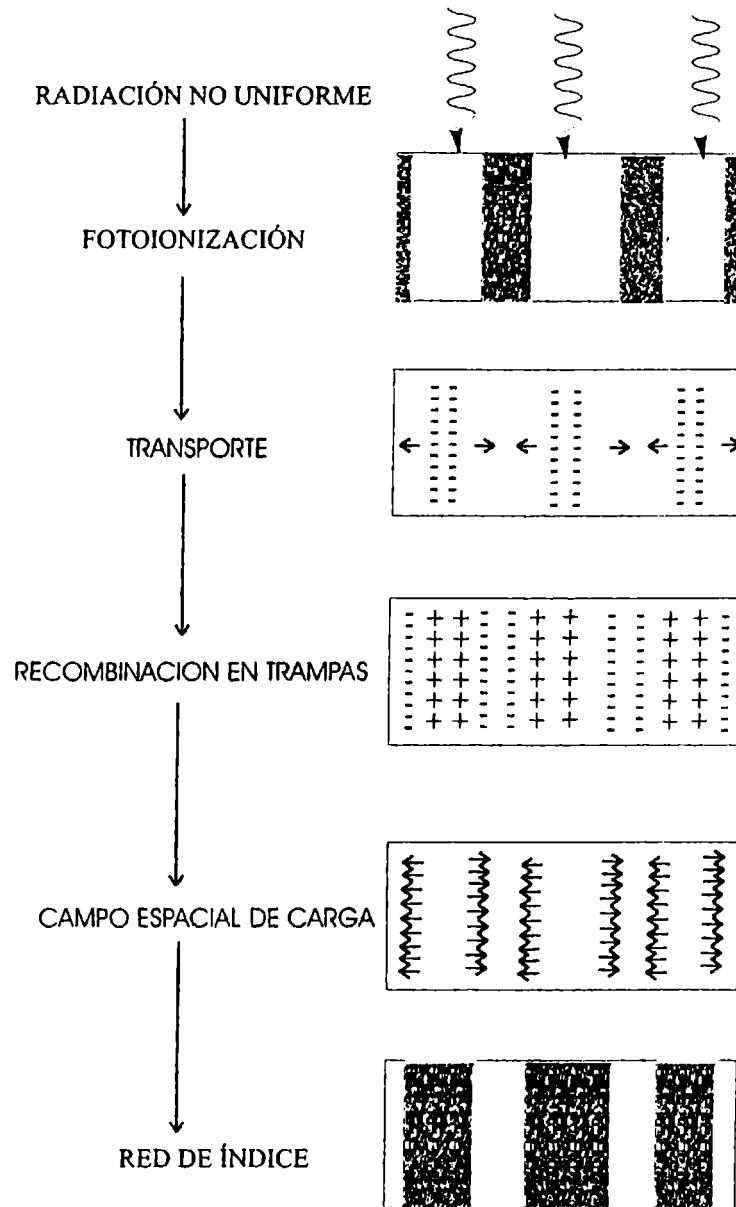


Figura II.1. Procesos que involucra el efecto fotorrefractivo cuando iluminamos con un patrón de franjas claras y oscuras. El patrón de luz espacialmente inhomogéneo ioniza impurezas produciendo una distribución no uniforme de los portadores de carga libres que migran por el cristal y se recombinan en trampas en regiones espaciales diferentes. Resulta así una distribución inhomogénea de la carga total que da origen al campo espacial de carga  $E_{SC}$ , el cual genera la variación del índice de refracción  $\Delta n$  vía el efecto electroóptico lineal.

impurezas. Así, según se va redistribuyendo la carga en el interior del cristal de una manera no uniforme, se genera un campo eléctrico local que se opone al desplazamiento de cargas libres. Finalmente, el material alcanza un estado estacionario que se caracteriza por una redistribución inhomogénea de la carga total. En estas condiciones, el campo eléctrico originado o *campo espacial de carga* puede llegar a ser tan intenso ( $\sim 0.01 - 10$  KV/cm) que altera el índice de refracción vía el efecto electroóptico lineal (Pockels)

$$\Delta (1/n^2)_{ij} = r_{ijk} E_k^{sc} \quad (II.3)$$

donde  $n$  es el índice de refracción implicado,  $r_{ijk}$  el coeficiente electroóptico y  $E_k^{sc}$  representa el campo espacial de carga local que se ha originado en el material.

En la Figura II.1 se presenta esquemáticamente los diferentes procesos involucrados. De esta forma, la información que transporta la luz en forma de diferencias de intensidad queda registrada en el material como variaciones espaciales de su índice de refracción.

## II.2 Caracterización experimental del efecto fotorrefractivo

Diversas técnicas se han implementado para caracterizar y estudiar el efecto fotorrefractivo. Las principales son la técnica del compensador y la holográfica. En lo que sigue se describe brevemente cada una de ellas.

### II.2.1 Técnica del compensador

Esta técnica consiste en la medida del cambio producido en los índices de refracción por el efecto fotorrefractivo a través de la birrefringencia inducida por la luz al atravesar el cristal. Por lo tanto se trata de una medida del cambio de fase entre dos componentes del campo eléctrico de la luz que se propaga en el cristal no lineal. Como en toda técnica en la que se trate de medir diferencias de fase, se empieza haciendo incidir un haz de luz con una polarización bien determinada, por lo general luz polarizada linealmente, y se estudia la polarización de la luz emergente.

El montaje de la técnica del compensador utiliza dos haces de luz. Un haz de prueba polarizado linealmente a  $45^\circ$  del eje óptico muy baja intensidad y longitud de onda poco eficiente para el efecto fotorrefractivo, y un segundo haz de excitación o grabado más

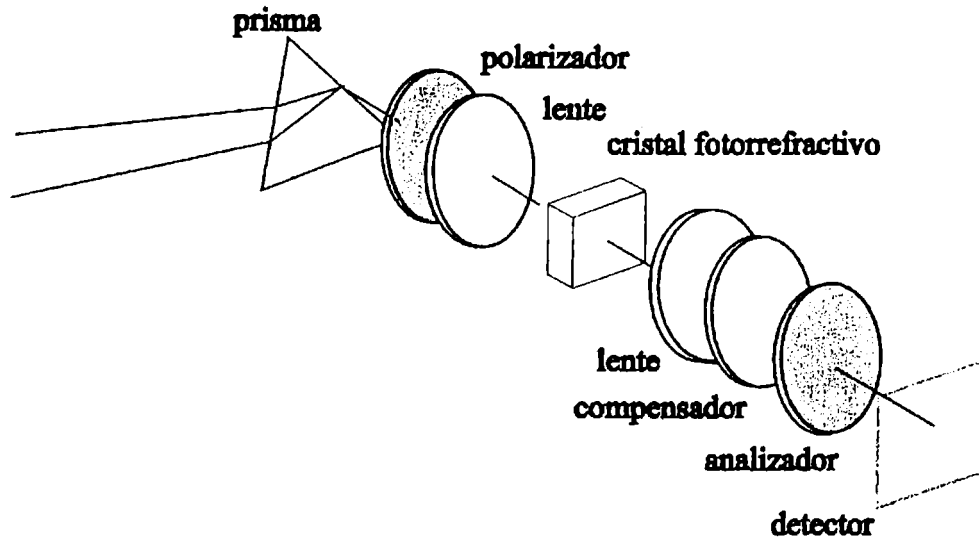


Figura II.2. Esquema experimental de la técnica del compensador.

intenso y de longitud de onda eficiente llamado haz. Tras el primer polarizador se encuentra el medio activo. El plano de polarización del haz de prueba debe formar un ángulo de  $45^\circ$  con el eje ferroeléctrico del material si el mismo es polar o con el campo eléctrico externo aplicado al medio si no lo es. Seguidamente se encuentra el compensador de Babinet-Soleil. Inicialmente, el compensador está calibrado para contrarrestar la posible birrefringencia natural del medio. Detrás suyo se coloca un analizador que es un polarizador con su eje orientado perpendicularmente respecto del primero y por último se sitúa el detector.

Al comienzo, cuando todavía no se ha iluminado con el haz de grabado, la intensidad de luz del haz de prueba que llega al detector debe ser nula ya que el compensador ha sido ajustado para que la polarización quede definida por el primer polarizador y por tanto perpendicular al segundo polarizador. Una vez que se ilumina con el haz de excitación, comienzan a variar los índices de refracción, lo que origina una diferencia de fase entre las dos componentes de la luz que se propagan por el cristal. Bajo esta nueva situación, el compensador no restablece la polarización inicial, y la luz emerge con polarización elíptica, e incide así sobre el detector.

A partir de este momento hay dos formas alternativas de proseguir: por un lado, deducir a partir de la intensidad en el fotodetector el cambio de índices a partir de la

expresión que determina la transmitancia del conjunto<sup>[79]</sup>

$$T = T_0 \left( \frac{\pi \Delta (n_e - n_o) d}{\lambda} \right), \quad (\text{II.4})$$

ó medir el cambio de fase directamente con el compensador. El cambio de fase es directamente proporcional a la variación de índices de refracción, lo que indica que esta forma es mucho más sensible. Sin embargo, este método manual no es adecuado cuando el tiempo de respuesta de los materiales es muy rápido como en el caso de las sillenitas (BSO, BGO, etc.).

### II.2.2 Técnica holográfica

La técnica holográfica consiste en iluminar el material fotorrefractivo con una figura de interferencia producida por dos ondas coherentes entre si. En la Figura II.3 se

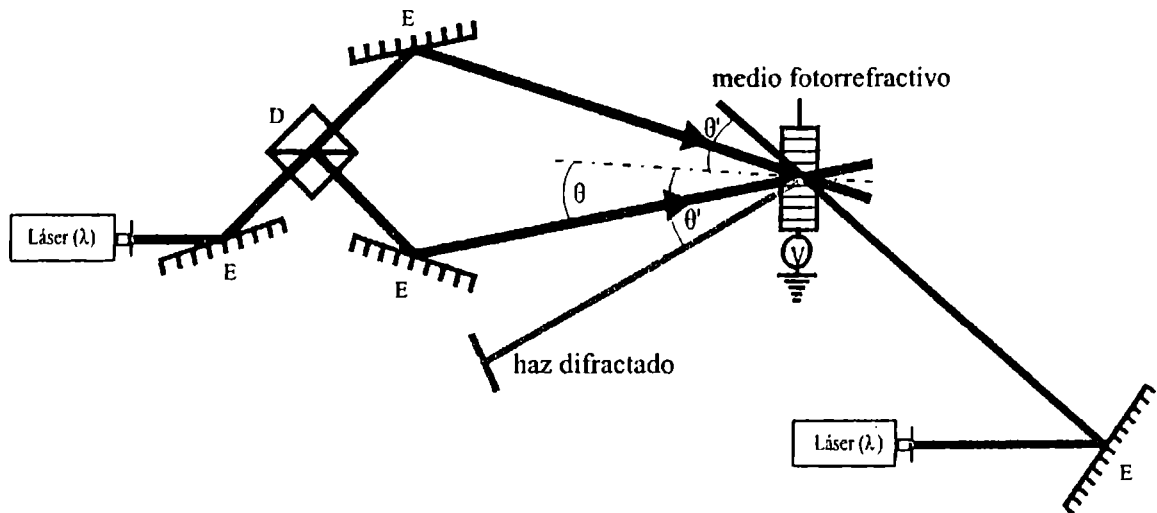


Figura II.3. Esquema del dispositivo experimental de la técnica holográfica.

muestra un esquema experimental de la técnica holográfica. Para este estudio se suele utilizar la situación experimental más favorable, el grabado del holograma más sencillo posible: la interferencia de dos haces de luz localmente planos y coherentes. En la Figura II.3., las líneas de color oscuro simbolizan los haces de grabado y la línea de color claro, el

haz de lectura. En este caso se registra una red holográfica sinusoidal

$$I(x, z) = I_0 \exp(-\alpha z / \cos \theta) [1 + m \cos(Kx)], \quad (\text{II.5})$$

donde  $\alpha$  es la absorción óptica para esa longitud de onda y  $K$  es el módulo del vector de red definido como

$$K = 2\pi/\Lambda. \quad (\text{II.6})$$

En esta expresión  $\Lambda$  es el espaciado entre franjas ó espaciado de la red y está definida por la siguiente expresión

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2n \sin \theta}, \quad (\text{II.7})$$

donde  $\lambda$  es la longitud de onda de los haces de grabado,  $\theta$  es el semiángulo que forman entre si los haces de grabado en el interior del cristal y  $n$  es el índice de refracción del material para esa longitud de onda. Si se desprecia la variación de la absorción y el acoplamiento de haces en la dirección de propagación  $z$ , situación usual en cristales de espesor despreciable dado que el producto  $\alpha d \ll 1$ , la expresión II.5 se reduce a

$$I(x) = I_0 [1 + m \cos(Kx)]. \quad (\text{II.8})$$

Dependiendo de las intensidades relativas de los haces, la iluminación es un fondo continuo más una modulación, como se puede apreciar en la Figura II.4.

La suma de las intensidades incidentes es la intensidad total del haz de grabado

$$I_0 = I_1 + I_2, \quad (\text{II.9})$$

y la intensidad de la modulación se define en general como

$$m = 2 \frac{\sqrt{I_1 I_2}}{I_0} \cos(p\theta), \quad (\text{II.10})$$

donde  $p = 1$  corresponde a una polarización de luz incidente contenida en el plano de incidencia y  $p = 0$  para luz polarizada perpendicular al plano de incidencia. Sin embargo, el valor de la modulación en el interior del cristal es menor debido a las reflexiones internas que sufren los haces. Estas reflexiones decrecen el contraste en un factor de que depende de la intensidad de los haces, del ángulo de incidencia y de la reflectividad del cristal

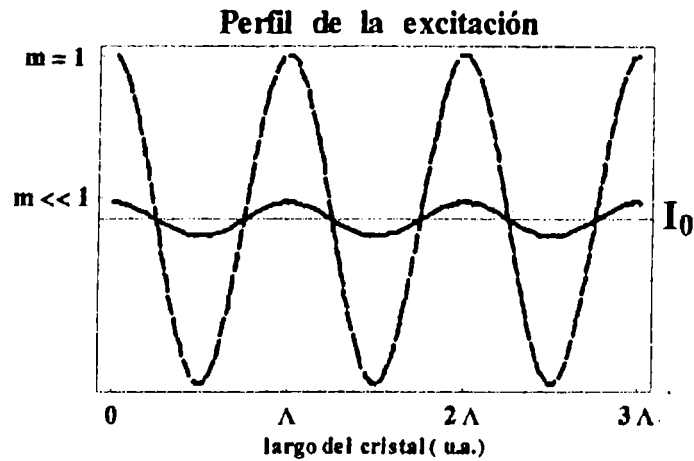


Figura II.4. Patrón de iluminación de período  $\Lambda$  debido a la interferencia de dos haces localmente planos.

para la longitud de onda dada. Los valores de  $m$  han de ser corregidos según la siguiente expresión<sup>[80]</sup>

$$m = m_0 \left[ 1 - \frac{1}{2\alpha d} \ln \left( \frac{1+r}{1+r \exp(-2\alpha d)} \right) \right]. \quad (\text{II.11})$$

Cuando generamos el patrón de iluminación sinusoidal no homogéneo en el interior del cristal, provocamos una redistribución de carga espacial, que vía el efecto Pockels modula el índice de refracción, de acuerdo a la siguiente relación

$$n(x) = n_0 + \Delta n \cos(Kx + \varphi). \quad (\text{II.12})$$

Esta red de índice representa el holograma más simple que podemos almacenar: una red sinusoidal de índice de refracción. El haz de lectura al atravesar el cristal, se difracta en esta red de índice y de esta forma obtenemos la reconstrucción del holograma almacenado. El observable fundamental del efecto fotorrefractivo es la *eficiencia de difracción* definida como

$$\eta = \frac{I_d}{I_0}, \quad (\text{II.13})$$

donde  $I_d$  es la intensidad del haz difractado. Definido de esta manera, se evitan las influencias de la absorción y las reflexiones del haz de lectura con las caras del cristal sobre la eficiencia de difracción.

### II.2.3 Posibles configuraciones de la técnica holográfica

Los hologramas pueden ser planos o de volumen. En el primer caso, el espesor del medio es pequeño de forma que se puede ignorar la interacción del haz difractado con la red. En el segundo caso, esta interacción no es despreciable y esto determina que la difracción sólo se observe cuando incidimos bajo una dirección muy precisa dada por la condición de Bragg, que limita la dirección del haz de prueba para la cual se puede observar un haz difractado y queda determinada por la longitud de onda del haz de prueba  $\lambda_p$ , por el ángulo que forma el haz que incide con la normal a la superficie de la muestra  $\theta_i$ , y por el espaciado de la red  $\Lambda$  según

$$2\Lambda \sin \theta_i = \lambda_p. \quad (\text{II.14})$$

El hecho de que el espesor de los hologramas sea finito, implica que la condición de Bragg no sea tan restrictiva como se presenta en la expresión II.14 y por lo tanto, la eficiencia de difracción no es nula para ángulos de incidencia próximos al definido por la condición de Bragg.

La técnica holográfica considera dos configuraciones posibles para describir tanto la condición de Bragg, como la eficiencia de difracción de un haz incidente: la geometría de transmisión y la de reflexión.

La primera considera que los dos haces que generan el patrón de interferencia inciden ambos por la misma cara de la muestra, mientras que en el segundo caso cada haz incide por una de las caras opuestas entre sí. Las expresiones para la eficiencia de difracción en cada una de las configuraciones geométricas ha sido obtenidas por Kogelnik<sup>[7]</sup>.

En la geometría de transmisión, una vez que la red ha sido grabada, el haz difractado aparece por la cara opuesta como se aprecia en la Figura II.5.  $I_1$  e  $I_2$  representan las intensidades de los haces de grabado,  $I_p$ , el haz de prueba en ángulo de Bragg  $\theta_i$ ;  $I_d$ , la intensidad del haz difractado e  $I_t$ , la intensidad del haz transmitido.

A partir de la resolución de las ecuaciones que describen la propagación de ondas electromagnéticas en un medio para una red de índices sinusoidal cuando el haz de lectura incide con el ángulo de Bragg, se obtiene una eficiencia de difracción para un material de espesor  $d$  dada por

$$\eta = \sin^2 \left( \frac{\pi d \Delta n}{\lambda_p \cos \theta_i} \right), \quad (\text{II.15})$$

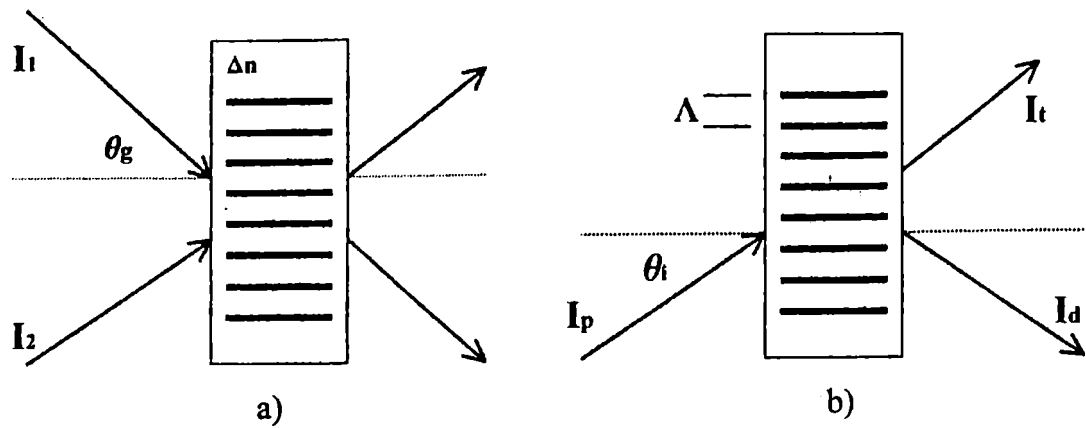


Figura II.5. Disposición de los haces de grabado (a) y de lectura (b) respecto de la muestra, en la geometría de transmisión.

donde  $\Delta n$  es el cambio en el índice de refracción.

En la geometría de reflexión, una vez que la red se ha grabado, el haz de lectura se difracta en la dirección de la reflexión, como indica la Figura II.6.

La geometría de reflexión da lugar a expresiones más complejas, tanto para determinar la condición de Bragg, como para la eficiencia de difracción. La eficiencia de difracción de una red sinusoidal sin considerar absorción y cuando el haz de lectura incide bajo el ángulo de Bragg, viene dado por

$$\eta = \tanh^2 \left( \frac{\pi d \Delta n}{\lambda_p \cos \theta_i} \right). \quad (\text{II.16})$$

### II.3 Características del efecto fotorrefractivo

El efecto fotorrefractivo se diferencia de otros procesos no lineales como el efecto Kerr, que también producen alteraciones en el valor medio del índice de refracción, en varios aspectos:

- (1) La eficiencia de difracción se observó, en general, independiente de la intensidad media de la luz de excitación en estado estacionario pero si depende de su distribución espacial. Se han observado una variación de índice por el efecto fotorrefractivo empleando intensidades mucho menores que las necesarias para modificar el índice en los materiales tipo Kerr.
- (2) Al ser el efecto fotorrefractivo un efecto macroscópico que requiere de la absorción de fotones, ionización de impurezas y posterior transporte de las cargas libres, es un efecto lento



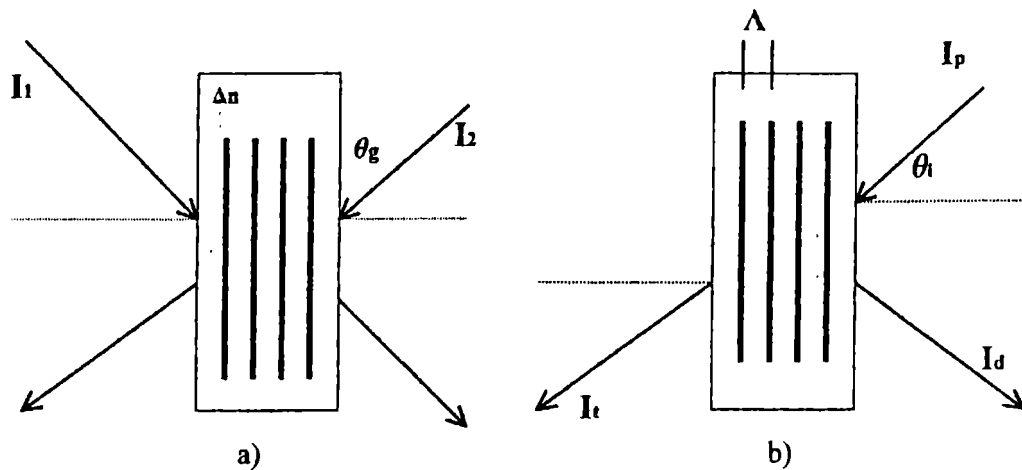


Figura II.6. Disposición de los haces de grabado (a) y de lectura (b) respecto de la muestra, en la geometría de reflexión.

en comparación con el efecto Kerr. En cualquier caso, el tiempo de respuesta dependerá de los parámetros específicos del material y de las condiciones experimentales elegidas que permitan maximizar el incremento de índice por fotón absorbido.

(3) El efecto fotorrefractivo es un efecto *no local* con el campo óptico de excitación, es decir, los lugares que sufren un mayor incremento del índice no se corresponden necesariamente, con los de máxima intensidad óptica. El desfase entre la red de excitación y la red de índice permite un acoplamiento de los haces en su interacción con el medio no lineal, en el sentido que sus energías se transfieren de un haz a otro no recíprocamente. El acoplamiento no recíproco entre haces no es posible cuando las no homogeneidades de índice tienen su origen en el efecto Kerr. La magnitud que determina la transferencia de energía máxima posible por unidad de longitud en la dirección de propagación de los haces se denomina ganancia,  $\Gamma$ . Kogelnik, de los laboratorios Bell<sup>[7]</sup>, demostró que el valor de  $\Gamma$  es máximo cuando la red de índice y el patrón de interferencia están desfasados  $\pi/2$ .

(4) Al depender el efecto fotorrefractivo de la distribución de la carga, las inhomogeneidades persisten, desde algunos microsegundos, para las sillenitas como el BSO, hasta meses para los ferroeléctricos como el  $\text{LiNbO}_3$ , cuando el material deja de ser irradiado. En la Tabla 2.1. se hace referencia a las diferencias más significativas entre los materiales fotorrefractivos y los no lineales convencionales.

	Material fotorrefractivo	Material no lineal ordinario
<i>Campos causantes</i>	Campo interno ( $E_{sc}$ )	Campo externo
<i>Intensidad necesaria</i>	$\sim mW/cm^2$	$\sim KW/cm^2$
<i>Tiempo respuesta típico</i>	$\sim 10^{-9} - 10^3$ s	$\sim 10^{-14}$ s
<i>Localización del efecto</i>	No local	Local

Tabla 2.1. Diferencias entre materiales fotorrefractivos y puramente no lineales.

### II.3.1 Parámetros intrínsecos más relevantes

En principio deben presentar efecto fotorrefractivo todos los materiales electroópticos que posean defectos ó centros de impurezas fotoionizables. Sin embargo la aplicación a la que se destinen, determinará el parámetro físico más relevante. Por ejemplo, cuando se pretende emplearlos en interconexiones ópticas reconfigurables o memorias asociativas, se buscan cristales con una elevada eficiencia de difracción, y que sean capaces de experimentar un gran incremento de su índice de refracción; por el contrario, en amplificación coherente, lo deseable son materiales con un gran coeficiente de ganancia. En cualquier caso, en aplicaciones en tiempo real, se requieren materiales con una elevada velocidad de respuesta. El elevado coeficiente electroóptico de los ferroeléctricos como el  $LiNbO_3$  o el  $BaTiO_3$ , asegura un gran incremento del índice de refracción ( $\sim 10^{-3} - 10^{-4}$ ), incluso cuando la amplitud del campo espacial de carga no sea muy grande. En otros materiales, en cambio, como las sillenitas (BSO, BGO, BTO), o los semiconductores (GaAs, InP, CdTe) sus coeficientes electroópticos son mucho menores y por lo tanto lo será también su eficiencia de difracción. El interés por estos últimos proviene de su gran velocidad de respuesta, en parte debida a su baja constante dieléctrica. Mientras que en los ferroeléctricos dichos tiempos oscilan entre la décima de segundo y el segundo para intensidades del orden de vatio por centímetro cuadrado, en las sillenitas o semiconductores no superan al milisegundo para niveles medios de la intensidad del orden de diez milivatios por centímetro cuadrado. Otros parámetros muy útiles para clasificar materiales fotorrefractivos son: el producto  $n^3r$ , con  $r$  coeficiente electroóptico que determina el máximo cambio que se puede producir en el índice de refracción y la sensibilidad fotorrefractiva  $S$ , definida como la densidad de energía que se necesita para alcanzar una eficiencia de difracción de un 1% para un dado espesor del cristal. Otra forma de clasificar los materiales fotorrefractivos, es atendiendo la región del espectro en la que son fotosensibles. Los semiconductores de la familia III-V como el

GaAs y los de la familia II-V como el CdTe lo son, por lo general en la parte del espectro óptico correspondiente al infrarrojo cercano, en tanto que la mayoría de los óxidos y los compuestos orgánicos son sensibles en la región visible del espectro. La región depende del tipo de defecto que tenga el cristal en su red cristalina. En la Tabla 2.2. se ha recogido el valor de los parámetros más relevantes para algunos de los cristales fotorrefractivos más habituales.

Material	$\tau_r$ (s)	$\tau_b$ (s)	n	r (pm/V)	$\lambda$ ( $\mu m$ )	$\epsilon/\epsilon_0$	$S^{-1}$ (mJ/cm <sup>2</sup> )
LiNbO <sub>3</sub>	1	10 <sup>6</sup>	$n_e = 2.2$	$r_{33} = 31$	0.6	$\epsilon_3 = 32$	1000
GaAs	10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-4</sup>	$n_e = 3.4$	$r_{12} = 1.43$	1.1	$\epsilon_3 = 12.3$	30
BSO	10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-2</sup>	$n = 2.54$	$r_{41} = 5$	0.6	$\epsilon = 56$	3
BatiO <sub>3</sub>	1	10 <sup>3</sup>	$n_e = 2.4$	$r_{33} = 64$	0.5	$\epsilon_1 = 3600$	60

Tabla 2.2. Valor de parámetros relevantes.  $\tau_r$ : tiempo de respuesta y  $\tau_b$ : tiempo de borrado.

### II.3.2 Aplicaciones del efecto fotorrefractivo

La importancia del efecto fotorrefractivo reside en el gran número de aplicaciones en óptica y optoelectrónica<sup>[6],[81]</sup>. Algunos de los dispositivos ya están completamente desarrollados pero muchos otros están en estudio en los laboratorios. Esto es debido a la complejidad del efecto, que lleva aparejado un desconocimiento teórico todavía importante, sobre todo en la respuesta no lineal de estos medio. A continuación describiremos varias de estas aplicaciones.

Los materiales fotorrefractivos como el LiTaO<sub>3</sub> y el LiNbO<sub>3</sub> fueron considerados como medios muy útiles para almacenar información ya que en los mismos se pueden grabar un gran número de imágenes de alta resolución en un volumen compacto y con la posibilidad de acceso en paralelo muy rápido. Estas memorias han utilizado como base la gran selectividad en ángulo y en longitud de onda que presentan los hologramas de volumen<sup>[82]</sup>. Las memorias fotorrefractivas poseen una elevada densidad de información almacenable por unidad de volumen ( $\sim 10^9$  bits/cm<sup>3</sup>)<sup>[83]</sup> y pueden presentar, mediante técnica especiales, un fijado del holograma durante meses en condiciones de oscuridad en materiales como el LiNbO<sub>3</sub><sup>[84]</sup>. Entre los principales problemas que presentan este tipo de memorias se encuentra el borrado parcial de la información que se produce en las sucesivas lecturas, y el solapamiento de la información entre hologramas, que limita la máxima capacidad de almacenamiento. También estos materiales se utilizan para almacenar información en

tiempo real, en cristales donde el tiempo de respuesta es suficientemente rápido como el BSO<sup>[85]</sup>. Entre las aplicaciones que se basan en el registro a tiempo real se encuentra la interferometría holográfica. Esta se utiliza para comparar dos frentes de onda diferentes, uno de los cuales proviene de una reconstrucción holográfica. Otra interesante aplicación demostrada es la amplificación de una señal óptica que transporta información, mediante la interferencia de ella con un segundo haz mucho más intenso y coherente con el primero. Esto es posible debido a la interacción de ambos haces dentro del medio fotorrefractivo. Esta amplificación se debe al intercambio de energía entre ambos haces<sup>[86]</sup>. Utilizando este método se ha realizado la amplificación óptica tanto de imágenes como de señales temporales. Esta transferencia de energía se basa en la no localidad del efecto fotorrefractivo, ya que se presenta un desfase entre la red de excitación interferométrica con la red de índice generada en el cristal. Otra aplicación importante es la conmutación espacial por medio de redes holográficas. Este tipo de dispositivos presentan gran importancia en sistemas de comunicación basados en fibra óptica, en los que es necesario conmutar desde una fibra óptica a otra dentro de una matriz y viceversa. Estos conmutadores se basan en el principio de que las redes almacenadas pueden deflectar el haz que incide en condición de Bragg. Con un campo externo se puede alterar la red de índice, tal que se puede conseguir que un holograma que previamente no estuviera en condición de Bragg, alcance esta condición, y que la onda se difracte a través de él. Por otro lado, el efecto fotorrefractivo es uno de los mecanismos posibles para crear un espejo conjugador de fase. A diferencia de los espejos normales, este invierte la componente temporal de fase de la onda. Esto quiere decir que si un frente de onda incide sobre un espejo, su reflejado tendrá la misma forma pero moviéndose en sentido totalmente opuesto, lo que se puede conseguir mediante la mezcla de cuatro ondas en un medio fotorrefractivo<sup>[87]</sup>. Se han desarrollado muchas aplicaciones basadas en la conjugación de fase: corrección de la dispersión de pulsos transmitidos por fibra óptica<sup>[88]</sup>, tratamiento óptico de imágenes, convolución y correlación<sup>[89]</sup>, realce de bordes<sup>[90]</sup>, suma y sustracción<sup>[90]</sup> e inversión de imágenes<sup>[91]</sup>. Por último mencionaremos que los medios fotorrefractivos son vistos potencialmente y con grandes expectativas como interconexiones en un ordenador óptico, que se compone básicamente de una serie de unidades elementales de procesos y de memoria. Desde comienzos de los años 80 se ha dedicado un gran esfuerzo en la investigación y desarrollo de interconexiones holográficas dinámicas y reconfigurables<sup>[92]</sup> y también conviene mencionar la posible utilización de este tipo de materiales como interconexiones holográficas en redes neuronales<sup>[93]</sup>.

## Capítulo III

# Modelos teóricos

### III.1 Antecedentes históricos

Se incluirá en esta sección una muy breve reseña histórica de los trabajos pioneros en la investigación del efecto fotorrefractivo desde la época de su descubrimiento hasta la formulación de la teoría de conducción por bandas. Para una descripción más completa, se remite al lector al trabajo de revisión de Hall y col.<sup>[94]</sup>.

Ashkin y col.<sup>[1]</sup>, descubridores accidentales del efecto fotorrefractivo en los laboratorios Bell en 1966, asociaron acertadamente dicho efecto con un cambio reversible del índice de refracción. Dos años después, Chen<sup>[95]</sup> mostró con sus experimentos que estos materiales podían almacenar una gran cantidad de datos a través de un registro holográfico y propuso un primer modelo teórico de migración de cargas para explicar la formación de hologramas de volumen en cristales ferroeléctricos. A su vez, Thaxter<sup>[73]</sup> puso en evidencia la influencia de la aplicación de un campo eléctrico en el registro de un holograma, aportando pruebas en relación con el modelo de *arrastre*<sup>1</sup> para el transporte de los portadores de carga.

Ya en 1971, Amodei<sup>[96]</sup> presentó un modelo general para el transporte de carga en materiales aislantes, demostrando que la migración de carga por difusión desempeña un rol muy importante en el registro de una red holográfica cuya frecuencia espacial es suficientemente alta. Además, obtuvo expresiones para las distribuciones de campo eléctrico local generadas a través de los mecanismos de arrastre y difusión en el caso de hologramas formados por ondas planas. En los años siguientes se puso de relieve el estudio de la

---

<sup>1</sup>del inglés *drift*.

estructura electrónica de los materiales fotorrefractivos y el origen de los portadores de carga, destacándose la importancia de tener en cuenta la naturaleza de los dopantes ó impurezas del material y su concentración, en los procesos de transporte de carga en el BSO<sup>[97]–[98]</sup>.

En la segunda mitad de la década del 70 se intensificó el estudio de las características de los hologramas de volumen en medio fotorrefractivos y sus aplicaciones con los importantes aportes de von der Linde y col.<sup>[99]</sup>, y el grupo de Petrov<sup>[100]</sup>. En particular, Herriau y col.<sup>[101]</sup> desarrollaron aplicaciones en el campo de la interferometría holográfica a tiempo real, utilizando cristales BSO y BGO. Por la misma época, Alphonse y colaboradores, de los laboratorios RCA, en un trabajo pionero<sup>[102]</sup>, predijeron la posible formación de redes armónicas como consecuencia de la interacción no lineal de la radiación con el medio fotorrefractivo poniendo en evidencia, por primera vez, que un perfil sinusoidal del patrón de excitación puede generar un perfil no sinusoidal del índice de refracción.

Sin embargo, no fue hasta fines de esta década donde se dió el avance más notable desde un punto de vista teórico. En efecto, dos modelos diferentes han sido desarrollados con el objetivo de, por un lado, explicar los procesos físicos involucrados en el efecto fotorrefractivo y por otro, predecir la evolución del campo electrostático local, llamado campo espacial de carga responsable de generar dicho efecto. A pesar de ser conceptualmente diferentes, estos modelos nos dan una descripción equivalente del problema. Feinberg y col.<sup>[109]</sup> elaboraron el *modelo de saltos*<sup>2</sup>. Según este modelo, los portadores de carga se desplazan a través del cristal saltando de trampa en trampa, con una razón de salto que depende de la distancia. Sin embargo, este modelo no tuvo mucha aceptación por parte de los diferentes grupos de investigación abocados al análisis del efecto fotorrefractivo, y rápidamente dejó de ser utilizado.

En cambio, el modelo que tuvo amplia difusión en la comunidad científica y sigue vigente hoy en día, es el *modelo de transporte por bandas*. Dicho modelo basado en la fotogeneración de carga libre, ya sea electrones ó huecos a partir de niveles profundos dentro del gap, transporte por difusión y/ó arrastre a través de la banda de conducción y/ó valencia y recombinación en trampas profundas en regiones espaciales diferentes, fue sugerido por primera vez en 1976 por Kukhtarev<sup>[3]</sup>, pero fue en 1979, donde el grupo de Kiev desarrolló completamente dicho modelo fenomenológico, respaldado por numerosos

---

<sup>2</sup>del inglés *hopping model*.

resultados experimentales, en un trabajo considerado hoy día como clásico<sup>[4]</sup>. Todos los modelos desarrollados posteriormente, que incluyen procesos dinámicos adicionales, están basados en el modelo de Kukhtarev. Las secciones posteriores describirán completamente el modelo de Kukhtarev y sus más importantes extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de transporte bipolar de la carga.

### III.2 El cristal fotorrefractivo como sistema mecanocuántico

El modelo de Kukhtarev y sus extensiones están basados en la teoría cuántica del estado sólido. El caso más general postula que el cristal es un conjunto de *iones* y *electrones de valencia*. Por iones se entienden los núcleos atómicos junto con todos los electrones de las capas ocupadas. La interacción de los electrones de las capas ocupadas con el propio núcleo es tan fuerte que la aproximación de otros átomos y forma del cristal no influyen sensiblemente en esta interacción. No obstante, al aproximarse los iones hasta distancias del orden de sus dimensiones propias, los electrones de valencia del átomo en cuestión entran en interacción con los núcleos vecinos y con los electrones de valencia de sus capas. Esta interacción asegura la manifestación del enlace químico entre los iones, que en el caso de los cristales se denominan *fuerzas de cohesión*. Por el principio de indistinguibilidad de las partículas constitutivas, los electrones de valencia no pueden considerarse localizados en un átomo dado, y en determinados casos pueden trasladarse por todo el cristal. La presencia de electrones de valencia no es un indicio obligatorio del sólido. Por ejemplo, están ausentes en los cristales del grupo cero. En estos cristales, los átomos que forman la red están enlazados mediante fuerzas de van der Waals. En el caso de los cristales iónicos, la atracción es de carácter electrostático, mientras que la repulsión se debe a la compleja interacción entre los radicales atómicos que se originan a pequeñas distancias. En los cristales covalentes, no sólo hay iones en los nudos de la red sino también, átomos neutros. Por eso, frecuentemente, en lugar de hablar iones se habla de núcleos que se hallan en los nudos de la red cristalina. Sin embargo, en la inmensa mayoría de los fenómenos que tienen lugar en los sólidos, los electrones desempeñan el papel más esencial, como en el caso del efecto fotorrefractivo. La interacción entre iones (ó átomos en el caso de cristales covalentes) asegura la creación de la estructura cristalina. La ordenación regular de los iones en el espacio a distancias entre sí determinadas, corresponde al mínimo de energía del sistema. En el caso de los cristales covalentes, tiene lugar entre los átomos una interacción de atracción cuando las

distancias son grandes y de fuerte repulsión cuando las distancias son pequeñas. En los metales, los electrones de valencia contribuyen en gran manera a las fuerzas de cohesión, debilitando considerablemente la repulsión entre los iones. A consecuencia de la interacción, los átomos se ubican a distancias que corresponden al mínimo de energía. La disposición regular de los átomos que determinan el cristal en los nudos de la red cristalina representa a una red ideal. Sin embargo, la disposición no es perfectamente regular pues existen en la red irregularidades de las más diversas características que se denominan defectos como así también la presencia de átomos extraños a esta disposición que se denominan impurezas, las que a su vez pueden ser intrínsecas ó introducidas artificialmente en cuyo caso el material se dice *dopado*. Los defectos e impurezas en los cristales desempeñan un importantísimo papel y determinan muchas propiedades físicas de los sólidos. En particular, la presencia de las mismas es relevante en la generación del efecto fotorrefractivo, como se verá más adelante.

Como se mencionó, los electrones de valencia determinan las más importantes características de los cristales, es por ello que se describirá brevemente las características de su configuración energética. Es bien sabido que el espectro energético de los electrones de valencia tiene carácter de bandas permitidas y prohibidas de energía que se alternan sucesivamente. Los electrones de valencia pueden encontrarse en el cristal de dos maneras: enlazando a dos iones por lo que quedan confinados a una región restringida del espacio entre los mismos. Siguiendo la nomenclatura utilizada por Levich y colaboradores<sup>[103]</sup>, a estos electrones de valencia los denominaremos *electrones fuertemente ligados*. Por otro lado, puede que el electrón de valencia no participe del enlace entre dos iones y esté ligado al cristal en conjunto. A los mismos los denominaremos *electrones cuasi-libres*. Es cierto que las imágenes cualitativas del electrón cuasi-libre y del electrón fuertemente ligado coinciden en la estructura energética de bandas, pero existe una diferencia esencial. En el primer caso se producen anchas bandas permitidas de energía y estrechas bandas prohibidas y en el segundo, por el contrario, estrechas bandas de energías permitidas y anchas bandas de energías prohibidas. En los cristales reales tienen lugar tanto los casos extremos de los electrones fuertemente ligados y de los cuasi-libres, como toda la gama de casos intermedios. Subrayemos que la causa que condiciona la formación de bandas de energías permitidas es la interacción del electrón *localizado* en el átomo dado, con el campo de los otros átomos de la red. Esta interacción anula la degeneración existente en un sistema de  $N$  átomos y un electrón. Como el electrón puede ser localizado en cualquiera de los átomos, el orden de la degeneración es muy elevado y el nivel degenerado de energía, en virtud de la interacción in-



dicada, se fracciona formando numerosos subniveles. En esta aproximación, en que el vector de onda que caracteriza a la función de Bloch del electrón, puede considerarse que recorre una serie continua de valores, el conjunto de los subniveles puede considerarse como una banda continua de valores permitidos de la energía. Aunque la densidad de electrones libres es de importancia decisiva en el comportamiento del sistema de electrones en el cristal, sería erróneo considerar que toda la diferencia entre los metales, aisladores y semiconductores se reduce a la variación de esta característica y que es de carácter cuantitativo. En realidad tiene un sentido más profundo. Esto se infiere, por ejemplo de la diferencia cualitativa en el mecanismo de la conductibilidad eléctrica ó de las propiedades magnéticas de los metales, semiconductores y aisladores. La profunda diferencia en sus propiedades físicas está relacionada con el distinto carácter del espectro energético de los electrones. Se ha visto que el espectro electrónico en el cristal tiene carácter de bandas permitidas y prohibidas que se alternan sucesivamente. Recordemos que en cada banda de energías permitidas hay un número limitado de estados. En efecto, en la banda hay  $2N$  estados, ya que hay dos electrones que ocupan cada estado. Si todos los estados de la banda de energía permitidas están ocupadas de dos en dos por electrones, estos no podrán cambiar de estado bajo la acción de un campo exterior. Este sólido se comportará como aislador. Si, por el contrario, en la banda permitida solamente una parte de los estados están ocupados por electrones, entre los estados se podrán efectuar transiciones y el cuerpo se comportará como un conductor. La banda formada por los electrones fuertemente ligados se encuentra completamente llena y se denomina *banda de valencia*. Los restantes electrones de valencia, libres de desplazarse por todo el cristal, se agrupan en la *banda de conducción* que surge de los estados energéticos inferiores del electrón de valencia. La real diferencia entre los conductores y dieléctricos proviene, no por el número total de electrones, sino por el carácter de distribución de los electrones en las bandas de conducción y de valencia. La distribución de la población entre bandas depende de la diferencia energética entre las mismas, tal que  $\Delta E_{\text{aisl}} \gg \Delta E_{\text{cond}}$ .

La absorción de energía del campo electromagnético por parte de la red produce un estado electrónico excitado que consiste en que un electrón de la banda de valencia pase a la banda de conducción, con la consistente producción, ó de un par ligado electrón-hueco, cuasipartícula que se denomina *excitón*, que puede desplazarse por todo el cristal y que transporta energía y cantidad de movimiento pero no carga eléctrica, ó por otro lado, un electrón, libre de desplazarse por la banda de conducción junto con un hueco (ausencia de un electrón en la banda de valencia), libre de desplazarse por la banda de valencia. Ambos,

se consideran como partículas independientes que además de transportar energía y cantidad de movimiento, transportan carga eléctrica. La presencia de defectos y/o impurezas en el cristal introduce niveles energéticos dentro del gap de energías prohibidas. De esta manera, a causa de la absorción de radiación electromagnética, un electrón puede excitarse desde un nivel de impurezas a la banda de conducción lo que le permite desplazarse libremente por todo el cristal y el material se convierte en un conductor donde los portadores de carga tiene carga negativa (electrones). Dicho cristal se denomina *tipo n*. Por otro lado, electrones de la banda de valencia pueden ser excitados a un nivel producido por algún defecto ó impureza, dejando dicha banda con ausencia de electrones. La situación es equivalente a tener huecos positivos en tal banda que pueden desplazarse libremente por todo el cristal. Dicho cristal se denomina *tipo p*. Estos son casos extremos, y también puede darse la situación intermedia en que ambos portadores existen simultáneamente y el portador mayoritario determina el tipo de conducción del cristal. Dentro de los cristales con defectos y/o impurezas los niveles energéticos de los mismos en el interior del gap se separan en dos clases: *niveles profundos*, generalmente separados a energías mayores que un electrón-volt ya sea ó de la banda de conducción ó de la banda de valencia, con muy baja probabilidad de excitación térmica a temperatura ambiente y los niveles superficiales, que son energéticamente próximos a la banda de conducción ó de valencia (fracción del electrón-volt) y donde la excitación térmica juega un papel preponderante. En el estudio de los medios fotorrefractivos postularemos la existencia de ambos niveles energéticos en los diferentes modelos dinámicos aquí postulados.

### III.3 Modelo de Kukhtarev

Para cristales electroópticos fotoconductores, el modelo de Kukhtarev considera la fotoionización de electrones ó huecos a partir de defectos y/o impurezas, el transporte de la carga *libre* por las bandas de conducción y/o valencia desde las zonas más brillantes a las menos iluminadas, donde tendrá lugar su interacción con las imperfecciones y fonones de la red, y la recombinación en defectos y/o impurezas que actúan como trampas. Matemáticamente, el modelo de Kukhtarev esta descrito por un conjunto de ecuaciones diferenciales acopladas y no lineales, llamadas *ecuaciones del material*. Las mismas combinan: ecuaciones de balance de poblaciones para los centros de impurezas fotorrefractivos y para los portadores de carga libre fotoionizados, ecuación de continuidad ó conservación de la carga, ecuación de distribución de campo electrostático interno debido a una inho-

mogeneidad en la distribución de carga (ley de Gauss), y ecuación de transporte de carga dada por la densidad de corriente que incluye el transporte de portadores de carga libre por difusión y el transporte por arrastre debido al campo eléctrico. El modelo de Kukhtarev es el que mejor se acomoda a los estudios de dinámica de los portadores en los cristales aislantes y semiconductores. Además explica satisfactoriamente los más diversos resultados experimentales, hoy en día ya clásicos, como la independencia de la eficiencia de difracción de la intensidad media de excitación en régimen continuo, el corrimiento de fase en  $\pi/2$  de la red de índice con respecto al patrón de excitación<sup>[3]–[4]</sup>, la caracterización de las llamadas corrientes holográficas<sup>[104]</sup> y otros. También, este modelo es utilizado como base teórica para analizar diferentes fenómenos que se producen en materiales fotorrefractivos como la generación de redes sub-armónicas<sup>[105]</sup>, la formación de solitones<sup>[106]</sup> y ondas espaciales de carga<sup>3</sup> <sup>[107]</sup>, además de haber sido extensamente utilizado para analizar el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas estacionarias, como ya se mencionó en el capítulo I.

También, el modelo de Kukhtarev se utilizó como base teórica en el desarrollo de modelos que postulan procesos dinámicos adicionales a la fotogeneración y atrapamiento de la única especie de portadores libres en centros profundos. Las extensiones del modelo de Kukhtarev más utilizadas son el *modelo de trampas superficiales* y el *modelo de transporte electrón-hueco*. Ambos serán descritos en las siguientes secciones. Es importante recalcar que los mismos sólo son extensiones del modelo de Kukhtarev ya que si bien postulan la existencia de procesos dinámicos adicionales, también postulan los procesos dinámicos involucrados en el modelo de Kukhtarev. De allí, la importancia de analizar en primer término este último modelo.

El objeto principal del análisis teórico es determinar el campo espacial de carga  $E_{SC}$  en el cristal a partir de las ecuaciones del material, problema equivalente a resolver la ecuación de Boltzmann en mecánica estadística, ó la ecuación de Schödinger en mecánica cuántica. El campo espacial de carga esta directamente relacionado con la eficiencia de difracción que es el observable fundamental del efecto fotorrefractivo<sup>[6]</sup> a través de la teoría de acoplamiento de haces desarrollada por Kogelnik<sup>[7]</sup> y el efecto electroóptico lineal. Por lo tanto, resolviendo el conjunto de ecuaciones de Kukhtarev se puede predecir la evolución de los observables fotorrefractivos.

A continuación daremos el formalismo matemático para el modelo de transporte

---

<sup>3</sup>del inglés *space-charge waves*

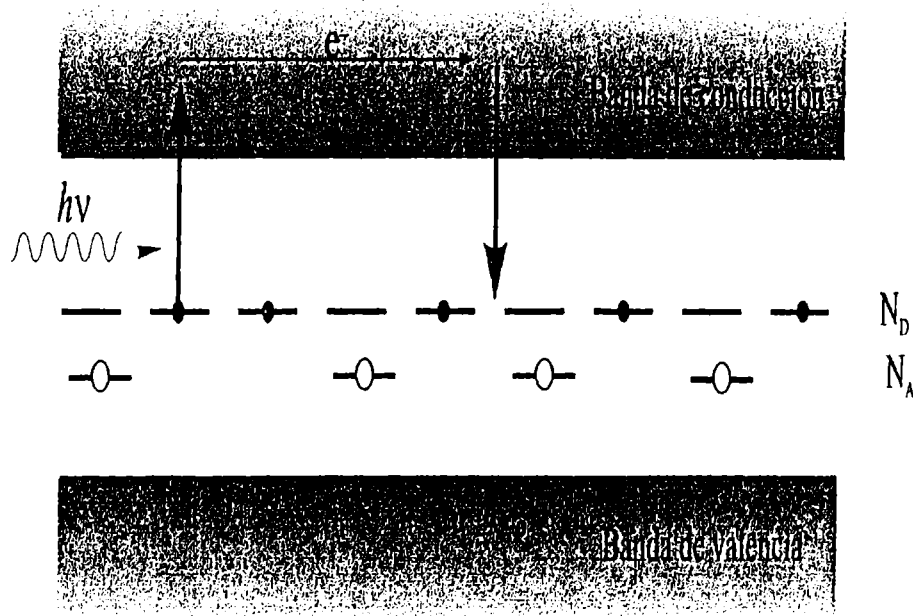


Figura III.1. Representación esquemática del diagrama de energías de un material fotorrefractivo en el marco del modelo de Kukhtarev. Las flechas representan los procesos dinámicos que tiene lugar cuando el mismo se excita con un patrón de radiación inhomogéneo. El diagrama representa un cristal tipo n.

por bandas que describe la respuesta de un material fotorrefractivo sometido a radiación electromagnética no uniforme. El modelo, esquematizado en la Fig III.1, asume que en el efecto fotorrefractivo interviene un único portador de carga libre. El tratamiento aquí desarrollado se corresponde con electrones excitados a la banda de conducción. Los electrones libres son originados a partir de defectos ó impurezas de densidad total  $N_D$ , que producen niveles de energía profundos dentro del gap ( $\geq 1$  eV). Se asume que todos los defectos o impurezas son equivalentes y producen el mismo nivel energético, tal que pueden agruparse en un nivel efectivo como está indicado en la Figura III.1. A su vez, este nivel efectivo también actúa como trampa de estos portadores. En equilibrio termodinámico, cierta fracción de impurezas profundas  $N_{Deq}^+$  está ionizada y además, existe una concentración de otra especie de impurezas, de densidad  $N_A^- = N_{Deq}^+$  que se encuentran totalmente ionizadas, y que aseguran la neutralidad de la carga total en el material. Estas impurezas compensadoras, al

no poder ser ionizadas ni óptica ni térmicamente, no participan en el proceso fotorrefractivo. Para describir las energías de la matriz y de las impurezas y/o defectos dentro del gap electrónico se utiliza el modelo mecanocuántico de bandas, descrito cualitativamente en la sección anterior. La fotoexcitación ó liberación de portadores de carga a partir de las impurezas ó defectos se produce al iluminar el cristal con fotones de energía igual a la diferencia de energía entre la banda de conducción ó valencia y el nivel efectivo originado por las impurezas ó defectos *fotorrefractivas*. En ausencia de campo espacial de carga, cada unidad de volumen contendrá  $N_D^+ = N_A^-$  donores ionizados, y  $N_D - N_A^-$  donores susceptibles de ser ionizados. De esta forma si se representa la concentración de donores ionizados, térmica u ópticamente en cualquier instante de tiempo por  $N_D^+$ , y por  $n$  a la concentración de electrones excitados a la banda de conducción ó huecos a la banda de valencia<sup>4</sup>, la densidad de carga espacial  $\rho$  para cada posición  $\mathbf{r}$  del cristal y en cada instante de tiempo será

$$\rho(\mathbf{r}, t) = e(n + N_A^- - N_D^+), \quad (\text{III.1})$$

donde  $e$  es la carga del electrón. Además, el principio de neutralidad de carga exige que el promedio espacial de  $\rho$  sea nulo ( $\bar{\rho} = 0$ ), y por tanto que los promedios espaciales de las magnitudes  $N_D^+$ , y  $n$  satisfagan

$$\overline{N_D^+} + \bar{n} = N_A^- \quad (\text{III.2})$$

para todo tiempo  $t$ . En el modelo de Kukhtarev, las densidades  $N_D^+$ , y  $n$  se determinan por ecuaciones de balance poblacional. Para la densidad de impurezas fotorrefractivas se tiene

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = (s_D I + \beta_D)(N_D - N_D^+) - \gamma_D n N_D^+. \quad (\text{III.3})$$

Esta última ecuación representa la variación en el tiempo de impurezas fuentes ( $N_D - N_D^+$ ) y trampas  $N_D^+$  de portadores de carga, la cual se determina por el número de impurezas que se ionizan a partir de la interacción con la luz con ritmo de ionización  $s_D I$ , donde  $s_D$  es la sección eficaz de ionización e  $I$  es la intensidad de la radiación láser de excitación, menos aquellos que se recombinan con los portadores por colisión directa, caracterizada por el coeficiente de recombinación  $\gamma_D$ . La ecuación III.3 también indica que la cantidad de donores ionizados puede incrementarse no sólo por fotoionización, sino también por

<sup>4</sup>La notación utilizada para indicar las densidades de las distintas impurezas y portadores de carga libres obedece a una tradición histórica. Adviértase que  $n$  indica la densidad de portadores libres. En los capítulos precedentes, designamos con  $n$ , también por una razón histórica, al índice de refracción del medio. Esta similitud no debería originar confusiones.

ionización térmica de los donores no ionizados, con velocidad  $\beta_D$ , aunque por tratarse de centros profundos la relación  $s_D I \gg \beta_D$  se satisface usualmente, tal que podemos despreciar la excitación térmica en el modelo de Kukhtarev. La evolución temporal de la concentración local de portadores de carga libres la representa la ecuación de continuidad del medio fotorrefractivo,

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial N_D^+}{\partial t} - \frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}), \quad (\text{III.4})$$

y viene gobernada por dos términos: el primero describe la variación de impurezas ionizadas y el segundo, el número de portadores de carga libre transportados en la banda de conducción ó de valencia, es decir,  $n$  puede modificarse ya sea por ionización de los donores, ó bien por el flujo de corriente cuya densidad es  $\mathbf{J}(\mathbf{r})$ . A veces puede ser útil expresar la sección eficaz y la tasa de recombinación en función de otros parámetros del cristal, como son, el coeficiente de absorción  $\alpha$  y la vida media de los electrones (huecos) en la banda de conducción (valencia)  $\tau$

$$\begin{aligned} s_D (N_D - N_D^+) &= \alpha / \hbar \omega, \\ \gamma_D N_D^+ &= 1 / \tau, \end{aligned} \quad (\text{III.5})$$

donde  $\hbar \omega$  es la energía de un cuanto de luz de frecuencia  $\omega$  irradiado sobre el cristal. Si además se tiene en cuenta la eficiencia cuántica de la fotoexcitación  $\Phi$ , habría que reemplazar  $\alpha$  por el producto  $\alpha \Phi$ .

El transporte de carga libre está dado por la densidad de corriente

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = e \mu n \mathbf{E} - \mu k_B T \nabla n, \quad (\text{III.6})$$

donde  $\mu$  es la movilidad,  $k_B$  es la constante de Boltzmann y  $T$  la temperatura. Como se observa, la densidad de corriente contiene dos términos: el primero representa el arrastre de portadores de carga libres por la acción del campo eléctrico y el segundo el flujo por difusión de los electrones libres, debido a la existencia de un gradiente de concentración local de los mismos, generado por iluminación no uniforme.

Por otra parte, en la ecuación III.6,  $\mathbf{E}$  representa el campo eléctrico en el medio fotorrefractivo, que incluye tanto al campo espacial de carga,  $\mathbf{E}_{SC}$ , como a cualquier campo externo  $\mathbf{E}_0$ , continuo ó de baja frecuencia al que está sometido el cristal

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{SC} + \mathbf{E}_0. \quad (\text{III.7})$$

obviamente, el campo eléctrico interno dependerá de la concentración local de la carga total, y por tanto, ha de estar ligado a la densidad local  $\rho$  a través de la ley de Gauss,

$$\nabla \cdot \mathbf{E}_{SC} = \frac{e}{\epsilon} (n + N_A^- - N_D^+), \quad (\text{III.8})$$

donde  $\epsilon$  es la constante dieléctrica estática del medio fotorrefractivo. En cristales anisótropos,  $\epsilon$  depende de la dirección del campo relativa a la orientación del cristal.

El conjunto de ecuaciones III.3-III.4, III.6 y III.8 son llamadas ecuaciones del material ó ecuaciones de Kukhtarev<sup>5</sup>. A partir de las mismas es posible encontrar la evolución del campo espacial de carga fotorrefractivo  $\mathbf{E}_{SC}$ . Este, inducirá un cambio local en el índice de refracción  $\Delta n$  vía el efecto electroóptico lineal a través de la relación general

$$\Delta n_{ij} = \frac{1}{2} n_0^3 r_{ijk} (E_{SC})_k, \quad (\text{III.9})$$

que tiene en cuenta la variación de índice según las diferentes direcciones espaciales y donde  $r_{ijk}$  es el tensor electroóptico característico del medio fotorrefractivo.

### III.4 Modelo de trampas superficiales

Una exhaustiva revisión bibliográfica pone en evidencia la existencia de numerosos resultados experimentales en cristales fotorrefractivos que no han podido ser satisfactoriamente explicados en el marco del modelo de Kukhtarev. Fenómenos tales como la dependencia sublineal de la fotoconductividad con la intensidad media de excitación<sup>[37]</sup>, dependencia del ritmo del decaimiento en la oscuridad de la intensidad de la red fundamental<sup>[38]</sup>, múltiples formaciones y decaimientos exponenciales de la eficiencia de difracción<sup>[39]-[41],[43],[44]</sup>, múltiples decaimientos exponenciales de la fotocorriente<sup>[40],[43],[46]</sup>, dependencia del acoplamiento electroóptico con el vector de onda y la intensidad media de excitación<sup>[47]</sup>, y amplificación de la amplitud de la red fundamental por un campo eléctrico alternado de alta frecuencia<sup>[48]</sup>, únicamente pudieron ser interpretados postulando la presencia en el material fotorrefractivo, de impurezas que originan niveles energéticos superficiales, y por lo tanto térmicamente excitables a temperatura ambiente, además de las impurezas fotorrefractivas profundas que postulaba el modelo clásico de Kukhtarev. De esta manera, los portadores de carga, al ser

<sup>5</sup>tales ecuaciones son también válidas para fotoconductores *tipo p*, siempre que se reemplace donores por aceptores,  $N_D \rightarrow N_A$ , trampas compensadoras negativas por positivas,  $N_A^- \rightarrow N_D^+$ , y electrones por huecos,  $e, \mu < 0 \rightarrow e, \mu > 0$ .

excitados desde los niveles profundos a su respectiva banda, pueden decaer a estos niveles superficiales. Por ello, los portadores de carga libres pueden ser atrapados en estas trampas superficiales y luego ser térmicamente reexcitados a la banda respectiva. Luego de sucesivas reexcitaciones y reatrapamientos en los niveles superficiales, los portadores de carga finalmente decaen a los niveles profundos donde la probabilidad de reexcitación térmica es extremadamente baja, tal que queda atrapada en forma semipermanente en el sitio espacial donde se recombinó. Este nuevo modelo llamado *modelo de trampas superficiales* tuvo una rápida aceptación cuando, a principios de los noventa, logró explicar con éxito que las trampas superficiales eran las causantes del incremento sublineal de la fotoconductividad en función de la intensidad media de excitación en materiales fotorrefractivos<sup>[37]</sup>. En la actualidad, es bien conocida la presencia de trampas superficiales en ciertas variantes del BaTiO<sub>3</sub> BSO y muchos otros. Desafortunadamente, no se informa de trabajos que analicen el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas en el marco de este modelo, ni siquiera por métodos aproximados de resolución.

La Figura III.2 representa, esquemáticamente, el diagrama energético electrónico en el marco del modelo de trampas superficiales, en un cristal *tipo n*. El modelo de trampas superficiales, al ser extensión del modelo de Kukhtarev, necesariamente postula que el material fotorrefractivo tiene una concentración de impurezas fotoexcitables que generan niveles profundos dentro del gap de energías prohibidas, de densidad total  $N_D$ , tal que  $N_D - N_D^+$  impurezas originan portadores de carga libres, que en este tratamiento se corresponde con electrones que son excitados a la banda de conducción, donde su densidad será simbolizada por  $n$ . En equilibrio termodinámico, cierta fracción de impurezas profundas  $N_{D_{eq}}^+$  esta ionizada y existe, al igual que en el modelo de Kukhtarev, una concentración de impurezas ionizadas no partícipes del efecto fotorrefractivo de densidad  $N_A^- = N_{D_{eq}}^+$ , que aseguran la neutralidad de la carga total en el material. Pero además, el modelo de trampas superficiales supone la presencia de ciertos defectos ó impurezas que generan niveles de energía superficiales del orden de las décimas de electrón-Volt de separación de la respectiva banda de conducción ó de valencia. La densidad total de tales trampas superficiales la simbolizamos con  $N_S$  y son capaces de atrapar y reexcitar portadores de carga libres que fueron anteriormente foto, ó térmicamente excitados. En el caso de materiales *tipo n*, las impurezas superficiales no ionizadas, de densidad  $N_S - N_S^-$ , puede atrapar electrones libres por lo que actúan como trampas y las ionizadas, de densidad  $N_S^-$ , tienen la



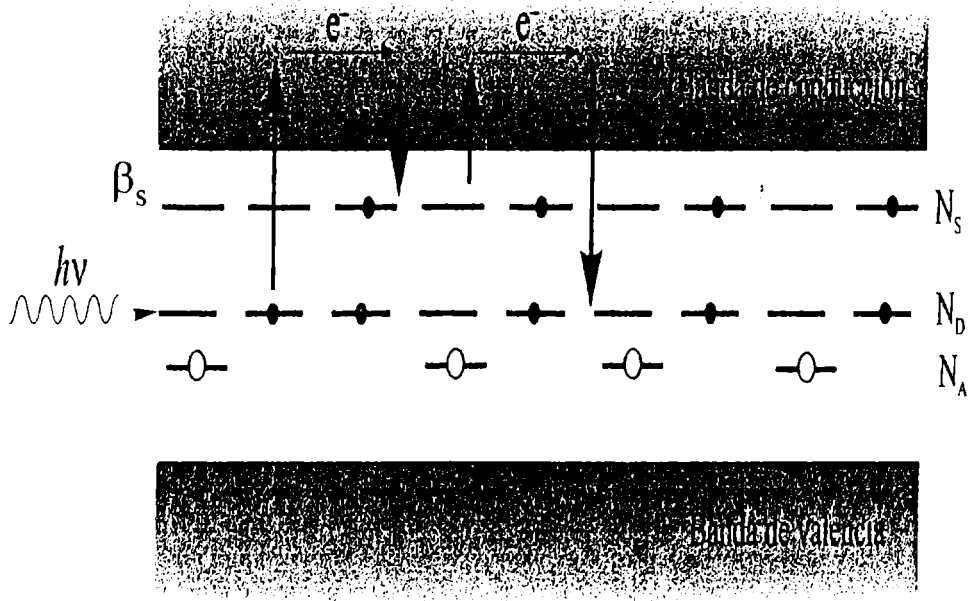


Figura III.2. Representación esquemática de los niveles de energía y procesos dinámicos que tienen lugar en un material fotorrefractivo en el marco del modelo de trampas superficiales, en un cristal tipo n.

capacidad de ceder un electrón al cristal cumpliendo la función de fuente de portadores de carga. A causa de la alta probabilidad de termoexcitación, las impurezas superficiales están ocupadas por portadores de carga sólo en una pequeña fracción ( $N_{Seq}^- \ll N_S$ ) en equilibrio termodinámico. De esta forma, con la inclusión de la nueva impureza fotorrefractiva  $N_S$ , la densidad de carga espacial  $\rho$  para cada posición  $\mathbf{r}$  del cristal y en cada instante de tiempo será

$$\rho(\mathbf{r}, t) = e(n + N_A^- + N_S^- - N_D^+). \quad (III.10)$$

Aquí también, el principio de neutralidad de carga exige que el promedio espacial de  $\rho$  sea nulo ( $\bar{\rho} = 0$ ), y por tanto que los promedios espaciales de las magnitudes  $N_D^+$ ,  $N_S^-$  y  $n$  satisfagan

$$\overline{N_D^+} + \overline{N_S^-} + \bar{n} = N_A^- \quad (III.11)$$

para todo tiempo  $t$ . A las ecuaciones del material de este modelo se agrega necesariamente una ecuación adicional que representa el balance poblacional de las trampas superficiales.

También, en este caso, en régimen de excitación continuo y estacionario de nuevo es válido despreciar el ritmo de excitación térmica de las impurezas profundas  $\beta_D$  frente a su ritmo de excitación óptica  $s_D I_0$ . Además, también es válido despreciar el ritmo de excitación óptica  $s_T I_0$  de las trampas superficiales frente su ritmo de termoexcitación  $\beta_S$ . La evolución temporal de los centros profundos es descrita por la misma ecuación que para el modelo de Kukhtarev (Ec. III.3)

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = s_D I (N_D - N_D^+) - \gamma_D n N_D^+, \quad (\text{III.12})$$

y la ecuación de balance poblacional para las impurezas superficiales resulta

$$\frac{\partial N_S^-}{\partial t} = \gamma_S n (N_S - N_S^-) - \beta_S N_S^-, \quad (\text{III.13})$$

es decir, la densidad de impurezas superficiales ionizadas se ve incrementada, por colisión directa con coeficiente de recombinación  $\gamma_S$ , en la recombinación de los  $n$  portadores con las trampas, y por otro lado se ve disminuida por la excitación térmica de las mismas con tasa característica  $\beta_S$ . La evolución temporal de la concentración local de portadores libres  $n$  representa nuevamente, la ecuación de continuidad de medio fotorrefractivo,

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial N_D^+}{\partial t} - \frac{\partial N_S^-}{\partial t} - \frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{J}(\mathbf{r}), \quad (\text{III.14})$$

y viene gobernada por tres términos: el primero describe la variación de impurezas ionizadas profundas  $N_D^+$ , el segundo describe la variación de impurezas ionizadas superficiales  $N_S^-$  y el tercero, el número de portadores de carga libre transportados por la banda de conducción ó de valencia.

La densidad de corriente  $\mathbf{J}(\mathbf{r})$  nuevamente posee los dos términos característicos descritos en la sección precedente: el primero representa el arrastre de portadores de carga libres por la acción del campo eléctrico y el segundo el flujo de carga por difusión, debido a la existencia de un gradiente de concentración local de los portadores de carga por iluminación no uniforme

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = e\mu n \mathbf{E} - \mu k_B T \nabla n. \quad (\text{III.15})$$

En esta ecuación,  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{SC} + \mathbf{E}_0$ , nuevamente representa el campo eléctrico en el medio fotorrefractivo, que incluye tanto al campo espacial de carga,  $\mathbf{E}_{SC}$ , como a cualquier campo externo  $\mathbf{E}_0$ , continuo ó de baja frecuencia al que está sometido el cristal.

Luego, el campo eléctrico interno dependerá de la concentración local de la carga total, y ha de estar ligado a la densidad de carga neta en la región local a través de la ley de Gauss

$$\nabla \cdot \mathbf{E}_{SC} = \frac{e}{\epsilon} (n + N_A^- + N_S^- - N_D^+). \quad (\text{III.16})$$

El conjunto de ecuaciones III.12.-III.16. son las ecuaciones del material para el modelo de trampas superficiales, a partir de las cuales es posible encontrar la evolución del campo espacial de carga fotorrefractivo.

### III.5 Modelo con un mecanismo de transporte electrón-hueco

En la sección anterior se desarrolló el *modelo de trampas superficiales*, extensión del modelo de Kukhtarev, con el que se interpretó numerosos resultados experimentales en cristales fotorrefractivos. Sin embargo, en muchos materiales fotorrefractivos, medidas del coeficiente de ganancia  $\Gamma$  en el acoplamiento de dos haces mostraron que  $\Gamma$  cambia de signo con el cambio del espaciado de la red<sup>[54],[56]</sup>. Al ser  $\Gamma \propto E_{SC}$  cuando no hay campo externo aplicado, el cambio de signo en el campo espacial de carga necesariamente debió ser atribuida a un proceso de competición *electrón-hueco* y relacionado con el signo del portador de carga dominante<sup>[62]</sup>. Por lo tanto, estas medidas no pueden ser explicadas por un mecanismo de transporte unipolar de la carga, independientemente del número de impurezas superficiales y/o profundas que participen en la generación de carga libre. También se predijo que la competición de las redes electrónica y de huecos puede debilitar la intensidad de la red fotorrefractiva<sup>[63]</sup>. En efecto, la compensación de carga producida por el portador de adicional con carga de signo opuesto puede apantallar el campo espacial de carga. Inclusive, a causa de la competición electrón-hueco, un cristal *tipo p*, puede convertirse en un material *tipo n*. Dentro del marco bipolar, se desarrollaron diferentes modelos, siendo todos extensiones del modelo de Kukhtarev. Uno de los modelos postula la presencia de impurezas fotorrefractivas que generan niveles profundos, que se pueden asignar a un nivel efectivo, a partir de la cual se fotogeneran ambos tipos de portadores de carga, electrones y huecos. Dicho nivel efectivo también actúa como trampa de ambos portadores. Sin embargo, este modelo dejó de ser utilizado ya que el modelo que mejor interpreta los resultados experimentales postula dos niveles de energía efectivos : uno más próximo a la banda de conducción, originado por impurezas donoras que se asumen equivalentes. Dicho nivel

es responsable de la fotogeneración y reatrapamiento de los electrones libres, mientras que el otro nivel efectivo, originado por impurezas aceptoras, yace más próximo a la banda de valencia y es responsable de la fotogeneración y atrapamiento de los huecos que pueden desplazarse libremente por la banda de valencia<sup>[63]</sup>. Este último modelo, al que se ha llamado *modelo de transporte bipolar de carga*, será descrito en esta tesis. Se informa de la existencia de una gran cantidad de trabajos teóricos y experimentales que utilizan modelos de conducción bipolar en la investigación de los cristales fotorrefractivos<sup>[51]–[53],[68],[59]–[60],[69]</sup>, pero, desafortunadamente, restringidos al régimen lineal. Por lo tanto, el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas, originadas en el régimen no lineal, es todavía muy poco conocido en el marco del transporte electrón-hueco de la carga. El solitario trabajo de Boutsikaris y col.<sup>[70]</sup>, basado en el análisis comparativo de la red fundamental y segundo armónico, por métodos aproximados de resolución, así lo indica.

Para analizar el comportamiento de dichas redes, comenzaremos postulando los axiomas más importantes del modelo de transporte bipolar de carga y su formulación matemática. Nuevamente ambos mecanismos, difusión y arrastre, son tenidos en cuenta para el transporte cada tipo de portadores de carga libres:  $\mathbf{J}_e(\mathbf{r})$  que simboliza la densidad de corriente electrónica en la banda de conducción y  $\mathbf{J}_h(\mathbf{r})$  que simboliza la densidad de corriente por huecos en la banda de valencia. La densidad de corriente total  $\mathbf{J}(\mathbf{r})$  resulta de la suma de las densidades de corriente de ambos portadores,

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = \mathbf{J}_e(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_h(\mathbf{r}) \quad (\text{III.17})$$

y cada uno de ellos agrupa los términos de arrastre en campo eléctrico y de difusión, tal que

$$\mathbf{J}_e(\mathbf{r}) = e\mu_e n_e \mathbf{E} - \mu_e k_B T \nabla n_e, \quad (\text{III.18})$$

$$\mathbf{J}_h(\mathbf{r}) = e\mu_h n_h \mathbf{E} - \mu_h k_B T \nabla n_h, \quad (\text{III.19})$$

donde en estas últimas ecuaciones, nuevamente  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{SC} + \mathbf{E}_0$ , representa el campo eléctrico en el medio fotorrefractivo, que incluye tanto al campo espacial de carga,  $\mathbf{E}_{SC}$ , como a cualquier campo externo  $\mathbf{E}_0$ , continuo ó de baja frecuencia al que está sometido el cristal.

El modelo de transporte bipolar de carga, esquematizado en la figura III.3, postula que el material fotorrefractivo contiene dos niveles energéticos efectivos dentro del gap de

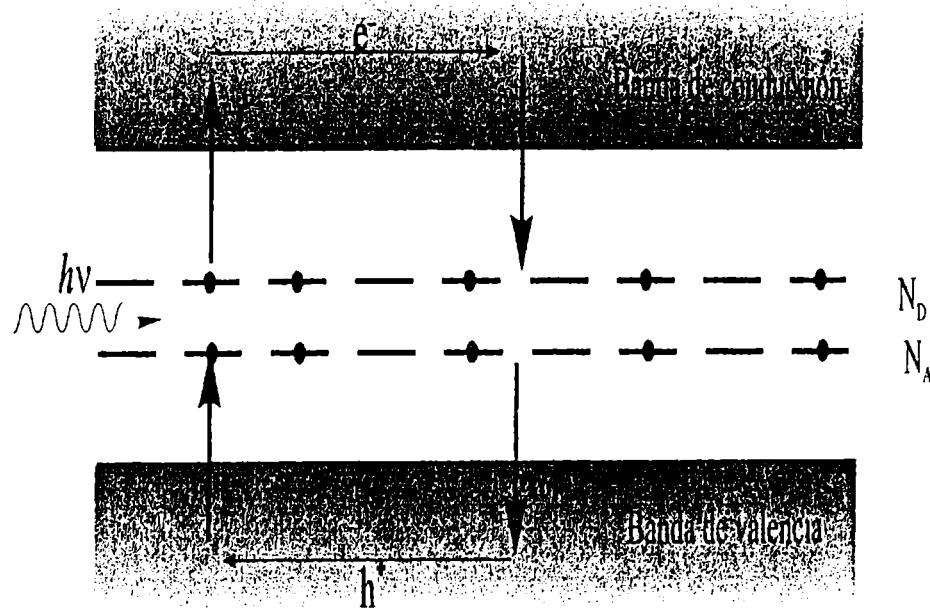


Figura III.3. Representación esquemática de los niveles de energía y procesos dinámicos que tienen lugar en un material fotorrefractivo en el marco del modelo de conducción electrón-hueco con dos especies de impurezas fotoactivas.

energías prohibidas no interactuantes entre sí que se originan por especies de impurezas diferentes: por un lado especies donoras equivalentes de densidad total  $N_D$  cuyos niveles de energía más próximos a la banda de conducción fotogeneran y recombinan electrones, y por el otro, especies aceptoras equivalentes de densidad total  $N_A$  cuyos niveles de energía más próximos a la banda de valencia fotogeneran y recombinan huecos. Electrones de densidad  $n_e$  son generados a partir de impurezas no ionizadas ( $N_D - N_D^+$ ) a la banda de conducción con ritmo de fotoexcitación  $s_D I$  donde  $s_D$  es la sección eficaz de fotoexcitación de la especie donora. Los electrones pueden ser luego atrapados, por colisión directa con coeficiente de recombinación  $\gamma_D$ , por donores ionizados que actúan como trampas, de densidad  $N_D^+$ . Simultáneamente huecos de densidad  $n_h$ , son fotoexcitados a partir de aceptores llenos de densidad ( $N_A - N_A^-$ ) a la banda de valencia con ritmo de fotoexcitación  $s_A I$ , con  $s_A$  siendo la sección eficaz de fotoexcitación de la especie aceptora, y se recombinan, por colisión directa con coeficiente de recombinación  $\gamma_A$ , en aceptores ionizados de densidad  $N_A^-$  que actúan

como trampas<sup>6</sup>. En equilibrio, cierta fracción de donores y cierta fracción de aceptores están ionizados y existe una cierta concentración de impurezas no activas desde el punto de vista fotorrefractivo, de densidad total  $N_{eq} = N_{Deq}^+ + N_{Aeq}^-$  que no participan de los procesos fotorrefractivos pero aseguran la neutralidad de carga en el cristal. De esta forma, si se representa la concentración de donores ionizados ópticamente por  $N_D^+$  en cualquier instante de tiempo, a la concentración de aceptores ionizados por  $N_A^-$  y a la concentración de electrones excitados a la banda de conducción y huecos a la banda de valencia por  $n_e$ ,  $n_h$  respectivamente, entonces la densidad de carga espacial  $\rho$  para cada posición  $r$  del cristal y en cada instante de tiempo será

$$\rho(r, t) = e(n_e - n_h + N_A^- - N_D^+ + N_{eq}). \quad (\text{III.20})$$

Además, el principio de neutralidad de carga exige que el promedio espacial de  $\rho$  sea nulo ( $\bar{\rho} = 0$ ), y por tanto que los promedios espaciales de las magnitudes  $N_D^+$ ,  $N_A^-$ ,  $n_e$  y  $n_h$  satisfagan

$$\overline{N_D^+} + \overline{n_h} - \overline{N_A^-} - \overline{n_e} = N_{eq} \quad (\text{III.21})$$

para todo tiempo  $t$ .

La evolución de los donores  $N_D^+$ , y aceptores  $N_A^-$  ionizados viene dado por las respectivas ecuaciones de balance poblacional

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = s_D I (N_D - N_D^+) - \gamma_D n_e N_D^+, \quad (\text{III.22})$$

$$\frac{\partial N_A^-}{\partial t} = s_A I (N_A - N_A^-) - \gamma_A n_h N_A^-, \quad (\text{III.23})$$

que representa la variación en el tiempo de impurezas donoras ( $N_D - N_D^+$ ) y aceptoras ( $N_A - N_A^-$ ) fuentes, e impurezas donoras  $N_D^+$  y aceptoras  $N_A^-$  trampas de portadores de carga. En la ecuación III.22-III.23 no se considera la excitación térmica de estos centros donores y aceptores ya que los mismos son centros profundos donde se satisface siempre la condición  $s_D I \gg \beta_D$  y  $s_A I \gg \beta_A$  donde el símbolo  $\beta_i$  representa el ritmo de excitación térmica de las impurezas donoras y aceptoras.

---

<sup>6</sup>Adviértase que a la densidad de impurezas aceptoras ionizadas se la designa por  $N_A^-$ . Dicho símbolo, en los modelos de transporte unipolar, simboliza a la densidad de impurezas compensadoras. Con este abuso de notación se respeta la tradición histórica, y no debería originar confusiones.

Por otro lado, los modelos de transporte bipolar están caracterizados por dos ecuaciones de continuidad: una para cada uno de los portadores de carga tal que la evolución temporal de la concentración local de electrones libres  $n_e$  viene dada por

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{\partial N_D^+}{\partial t} - \frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{J}_e(\mathbf{r}), \quad (\text{III.24})$$

y viene gobernada por dos términos, el primero describe la variación de impurezas donoras ionizadas profundas  $N_D^+$ , y el segundo describe el número de electrones transportados por la banda de conducción. Mientras que la evolución temporal de la concentración local de huecos libres  $n_h$  viene dada por

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = \frac{\partial N_A^-}{\partial t} - \frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{J}_h(\mathbf{r}), \quad (\text{III.25})$$

y también gobernada por la variación de impurezasceptoras ionizadas profundas  $N_D^+$ , y por el número de huecos transportados por la banda de valencia.

En las ecuaciones III.19-III.20,  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{SC} + \mathbf{E}_0$ , representa nuevamente el campo eléctrico en el medio fotorrefractivo, que incluye tanto al campo espacial de carga,  $\mathbf{E}_{SC}$ , como a cualquier campo externo  $\mathbf{E}_0$ , continuo ó de baja frecuencia al que está sometido el cristal y el campo eléctrico interno dependerá de la concentración local de la carga total, y por tanto, ha de estar ligado a la densidad de carga neta en la región local  $\rho$  a través de la ley de Gauss, que está dada por

$$\nabla \cdot \mathbf{E}_{SC} = \frac{e}{\epsilon} (n_e - n_h + N_A^- - N_D^+ + N_{eq}), \quad (\text{III.26})$$

donde  $\epsilon$  es la constante dieléctrica estática del medio fotorrefractivo.

El conjunto de ecuaciones III.19- III.20, III.22-III.26 representan las ecuaciones del material para el modelo de conducción electrón-hueco de la carga originadas a partir de centros donores y aceptores profundos no interactuantes. A partir de las ecuaciones del material es posible encontrar la evolución del campo espacial de carga fotorrefractivo y su dependencia con los principales parámetros de excitación.

## Capítulo IV

# Obtención de las redes fotorrefractivas armónicas

### IV.1 Introducción

El efecto fotorrefractivo tiene la particularidad tal que un patrón sinusoidal de luz puede generar un perfil no sinusoidal en la red de índice de refracción como consecuencia de la no linealidad del efecto. Dicho perfil de índice no sinusoidal, puede ser tratado como superposición de diferentes redes armónicas formadas en el interior del cristal. Las redes fotorrefractivas armónicas son redes de difracción independientes, tal que cada una es capaz de difractar un haz cuyo ángulo de incidencia se corresponde con el ángulo que satisface la condición de Bragg para su frecuencia espacial. Como se mencionó en el Capítulo anterior, esta particularidad fue predicha teóricamente a mediados de la década del setenta en el trabajo pionero de Alphonse y col.<sup>[102]</sup>. Sin embargo, no fue hasta la siguiente década, que se verificó experimentalmente por diversos grupos de investigación<sup>[15],[18]–[19],[21]</sup>, la existencia de las redes armónicas, observándose difracción debida a las cuatro primeras redes armónicas. En la década del noventa, se estudio con mayor profundidad desde un punto de vista experimental la dependencia de dichas redes armónicas con los parámetros fotorrefractivos externos<sup>[16]–[17],[20]</sup> y quedó bien establecido que las mismas únicamente se generan en regímenes de excitación con una modulación profunda en el patrón de interferencia  $m \sim 1$ . También es sabido el grupo de Kiev<sup>[3],[4]</sup> desarrolló el modelo fenomenológico posteriormente llamado como modelo de Kukhtarev. El



contundente éxito del modelo de Kuhtarev en predecir ciertos resultados experimentales, como la independencia de la amplitud de la red con la intensidad de excitación, y el corrimiento en  $\pi/2$  de la red de excitación respecto de la red de índice<sup>[6]</sup>, produjo que una gran cantidad de investigadores se abocaran a la tarea de estudiar la respuesta de los materiales fotorrefractivos mediante las hipótesis postuladas por Kukhtarev. En el régimen lineal, experimentalmente concebido trabajando con pequeñas modulaciones de la intensidad, únicamente se genera la red fotorrefractiva fundamental<sup>[8]–[13]</sup>. Por el contrario, el régimen de modulación profunda, produce que las redes armónicas se generen. Este es el llamado régimen no lineal<sup>[21]–[32]</sup>. Para este último caso, el interés radica en investigar el comportamiento de tales redes en términos de los principales parámetros y en qué condiciones las redes armónicas deben ser tenidas en cuenta en los procesos fotorrefractivos. Desafortunadamente, la complejidad del conjunto de ecuaciones no lineales y acopladas que describen el modelo condujo a que únicamente se obtuvieran soluciones aproximadas utilizando métodos perturbativos<sup>[21]–[25]</sup> y/o numéricos<sup>[26]–[33]</sup>. El hecho de no disponer de soluciones analíticas exactas, que predigan rigurosamente el comportamiento del campo espacial de carga en el rango completo de valores de los parámetros externos más significativos, produjo la aparición de numerosos resultados contradictorios. Como se recordará, tanto una dependencia superlineal<sup>[16],[28]–[31],[34]</sup>, como así también sublineal<sup>[26]–[27],[36]</sup>, fue reportada para la dependencia de la amplitud de la ref fundamental con la profundidad de modulación. Las limitaciones de los métodos aproximados de resolución utilizados en el pasado, nos ha motivado a realizar un cálculo exacto, con el fin de obtener en forma analítica las componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga en el marco del modelo de Kukhtarev y sus extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de conducción bipolar con dos clases de impurezas fotorrefractivas. A partir de tales soluciones es posible establecer e identificar la fuerte influencia de las redes armónicas en el efecto fotorrefractivo.

## IV.2 Desarrollo de Fourier del campo espacial de carga

En experimentos típicos, el espaciado de la red  $A$  producido por el patrón de interferencia se distribuye en un amplio rango, entre  $0.1\mu m$  y  $10\mu m$ , y es mucho menor que las dimensiones de la sección transversal del cristal ( $\geq 10mm$ ). Esto hace que las condiciones de borde pueden no ser tenidas en cuenta y el campo espacial de carga generado en el cristal

contundente éxito del modelo de Kukhtarev en predecir ciertos resultados experimentales, como la independencia de la amplitud de la red con la intensidad de excitación, y el corrimiento en  $\pi/2$  de la red de excitación respecto de la red de índice<sup>[6]</sup>, produjo que una gran cantidad de investigadores se abocaran a la tarea de estudiar la respuesta de los materiales fotorrefractivos mediante las hipótesis postuladas por Kukhtarev. En el régimen lineal, experimentalmente concebido trabajando con pequeñas modulaciones de la intensidad, únicamente se genera la red fotorrefractiva fundamental<sup>[8]–[13]</sup>. Por el contrario, el régimen de modulación profunda, produce que las redes armónicas se generen. Este es el llamado régimen no lineal<sup>[21]–[32]</sup>. Para este último caso, el interés radica en investigar el comportamiento de tales redes en términos de los principales parámetros y en qué condiciones las redes armónicas deben ser tenidas en cuenta en los procesos fotorrefractivos. Desafortunadamente, la complejidad del conjunto de ecuaciones no lineales y acopladas que describen el modelo condujo a que únicamente se obtuvieran soluciones aproximadas utilizando métodos perturbativos<sup>[21]–[25]</sup> y/o numéricos<sup>[26]–[33]</sup>. El hecho de no disponer de soluciones analíticas exactas, que predigan rigurosamente el comportamiento del campo espacial de carga en el rango completo de valores de los parámetros externos más significativos, produjo la aparición de numerosos resultados contradictorios. Como se recordará, tanto una dependencia superlineal<sup>[16],[28]–[31],[34]</sup>, como así también sublineal<sup>[26]–[27],[36]</sup>, fue reportada para la dependencia de la amplitud de la ref fundamental con la profundidad de modulación. Las limitaciones de los métodos aproximados de resolución utilizados en el pasado, nos ha motivado a realizar un cálculo exacto, con el fin de obtener en forma analítica las componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga en el marco del modelo de Kukhtarev y sus extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de conducción bipolar con dos clases de impurezas fotorrefractivas. A partir de tales soluciones es posible establecer e identificar la fuerte influencia de las redes armónicas en el efecto fotorrefractivo.

## IV.2 Desarrollo de Fourier del campo espacial de carga

En experimentos típicos, el espaciado de la red  $\Lambda$  producido por el patrón de interferencia se distribuye en un amplio rango, entre  $0.1\mu m$  y  $10\mu m$ , y es mucho menor que las dimensiones de la sección transversal del cristal ( $\geq 10mm$ ). Esto hace que las condiciones de borde pueden no ser tenidas en cuenta y el campo espacial de carga generado en el cristal

$E_{SC}$  puede ser tratado como periódico, con longitud del periodo igual a  $\Lambda$  [28],[29]. Nuestro objetivo en esta sección es obtener el campo fotorrefractivo  $E_{SC}$  ó equivalentemente las expresiones correspondientes para las amplitudes y fases de las redes de índice armónicas que se generan en el cristal, con respecto al patrón de excitación  $I$ . En efecto, la periodicidad del campo espacial de carga sugiere un desarrollo de Fourier de la forma

$$E_{SC}(x) = \sum_{\nu=1}^{\infty} E_{\nu} \cos(\nu Kx + \varphi_{\nu}). \quad (IV.1)$$

Desde el punto de vista matemático, este desarrollo de Fourier del campo fotorrefractivo es bien manipulable y conocido, pero además tiene un sentido físico más profundo:  $E_{\nu}$  y  $\varphi_{\nu}$  representan la amplitud y fase de la  $\nu$ -ésima red de índice armónica que se genera en el cristal. Por lo tanto, el objetivo primario de encontrar  $E_{SC}$  se transforma en el problema equivalente de obtener las  $\nu$ -ésimas amplitudes y fases a partir de las ecuaciones del material, en el marco de cada uno de los modelos descriptos en el Capítulo III. Por otro lado, es matemáticamente más simple trabajar en el plano complejo, donde  $E_{SC}$  puede ser representado por

$$\frac{1}{2} \sum_{\nu=1}^{\infty} \mathcal{E}_{\nu} \exp(i\nu Kx) + cc, \quad (IV.2)$$

donde los coeficientes complejos de Fourier  $\mathcal{E}_{\nu} = |\mathcal{E}_{\nu}| \exp(i\delta_{\nu})$  deben cumplir la condición  $\mathcal{E}_{-\nu} = \mathcal{E}_{\nu}^*$  puesto que las amplitudes del campo fotorrefractivo deben ser reales. A partir de tales coeficientes podemos obtener las amplitudes  $E_{\nu}$  y fases  $\varphi_{\nu}$  que corresponden a las redes fotorrefractivas armónicas, ya que

$$E_{\nu} = |\mathcal{E}_{\nu}|/2, \quad (IV.3)$$

$$\varphi_{\nu} = \delta_{\nu}. \quad (IV.4)$$

Numerosos trabajos teóricos se abocaron a la tarea de encontrar los coeficientes  $\mathcal{E}_{\nu}$  para predecir el comportamiento de las redes armónicas [15],[19],[21]-[22],[24]-[26],[29]-[31],[35],[36],[70]. Un rasgo distintivo común en ellos es que utilizan métodos aproximados de resolución, de carácter perturbativo ó numérico, tal que los coeficientes de Fourier sólo pueden ser encontrados en forma aproximada, y donde la cota del error cometido a causa de truncar la serie no está claramente definida. En efecto, en dichos trabajos no se establece rigurosamente la precisión del método empleado, lo que no permite asegurar la convergencia de la suma al valor de  $E_{sc}$ , en determinadas regiones de respuesta no lineal, en situaciones en la

que muchos armónicos contribuyen al campo espacial de carga. Ello condujo a resultados contradictorios y poco claros. Más aún, hemos verificado numéricamente que la precisión cambia drásticamente con el orden de la aproximación que utiliza el método de resolución. Esto nos indujo a obtener, en forma analítica, los coeficientes complejos de Fourier que contienen la información completa sobre las amplitudes y fases de las componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga en régimen estacionario. Para ello, se ha procedido básicamente de la siguiente manera: en las ecuaciones del material de cada uno de los modelos en cuestión, se eliminan la densidad de corriente  $J$ , y las densidades de poblaciones de los centros fotorrefractivos involucrados:  $N_D^+$  para el modelo de Kukhtarev,  $N_D^+$ ,  $N_S^-$  para el modelo de trampas superficiales y  $N_D^+$ ,  $N_A^-$  para el modelo de transporte electrón-hueco. Además el régimen estacionario elimina necesariamente la dependencia temporal  $\partial/\partial t \equiv 0$ . Todo esto reduce el sistema original a ecuaciones que relacionan los portadores de carga y el campo espacial de carga. Este método fue también empleado en trabajos previos<sup>[26],[29]–[31]</sup>. Luego se procede a reemplazar la densidad de portadores libres y el campo espacial de carga por sus respectivas series Fourier y el problema se limita a encontrar las amplitudes y fases reales contenidas en los coeficientes complejos. Entonces, un conjunto de infinitas ecuaciones algebraicas en los factores  $\exp(i\nu Kx)$  son generadas e igualando coeficientes del mismo orden en  $\exp(i\nu Kx)$  será posible obtener expresiones para los coeficientes  $E_\nu$  y  $n_\nu$ . Pero la única manera, en la práctica, de resolver las infinitas ecuaciones, es encontrando relaciones de recurrencia para los coeficientes de diferente orden  $\nu$ , lo cual se ha logrado después de una rigurosa y pesada manipulación algebraica. Las expresiones analíticas para dichos coeficientes y para cada uno de los modelos en cuestión se detallan en las secciones siguientes.

## IV.3 Amplitudes de las redes fotorrefractivas armónicas

### IV.3.1 En el marco del modelo de Kukhtarev

Las amplitudes y fases de las redes fotorrefractivas armónicas se obtienen a partir de un patrón de intensidad consistente en franjas estacionarias como consecuencia de la interferencia de dos haces coherentes, que inciden en la dirección  $z$ , tal que sus vectores de onda conforman un triángulo isósceles con el vector de red  $\mathbf{K}$  en la dirección  $x$ , perpendicular a la dirección de excitación  $z$ , y de módulo  $K = 2\pi/\Lambda$ . El espaciado  $\Lambda$  de la red puede ser

determinado a partir de  $\Lambda = \lambda/2 \sin(\theta/2)$  donde  $\lambda$  es la longitud de onda de los haces que interfieren y  $\theta$  es el ángulo entre sus vectores de onda. La condición para el caso estacionario  $\nabla \times \mathbf{E} = 0$  determina que  $\mathbf{K} \times \mathbf{E}_{SC} = 0$ , lo que significa que el campo espacial de carga es paralelo a vector de red de la excitación. La distribución espacial de la intensidad resulta

$$I = I_0 \exp(-\alpha z) [1 + m \cos(Kx)] \quad (\text{IV.5})$$

que en forma compleja podemos escribir

$$I = \frac{1}{2} I_0 [1 + m \exp(iKx)] + cc, \quad (\text{IV.6})$$

donde se asume que  $\exp(-\alpha z) \approx 1$ , lo que se verifica para cristales de espesor pequeño ó debilmente absorbentes, e  $I_0 = I_1 + I_2$  siendo  $I_1$  e  $I_2$  las intensidades de los haces incidentes y  $m = \sqrt{I_1 I_2} / I_0$ , la profundidad ó factor de modulación. Además, no consideramos la variación del campo espacial de carga causada por el acoplamiento de haces en la dirección  $z$ , lo cual también es válido para cristales delgados. Con estas suposiciones, las ecuaciones del material para cada uno de los modelos se reducen a ecuaciones unidimensionales, en la dirección  $x$ . Recientemente se publicó un extenso trabajo donde se obtiene la corrección para los valores del campo espacial de carga en función del espesor del cristal, teniendo en cuenta la variación de la intensidad por absorción y el acoplamiento de haces en la dirección  $z$  [110]. Entonces para el modelo de Kukhtarev, las ecuaciones del material III.3.-III.4.y III.6.-III.8 se reducen a

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = (s_D I + \beta) (N_D - N_D^+) - \gamma_D n N_D^+, \quad (\text{IV.7})$$

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (n + N_A^- - N_D^+), \quad (\text{IV.8})$$

$$J = e \mu n E - k_B \mu T \frac{\partial n}{\partial x}, \quad (\text{IV.9})$$

$$\frac{\partial J}{\partial x} = -e \frac{\partial}{\partial t} (n + N_A^- - N_D^+), \quad (\text{IV.10})$$

Antes de obtener las amplitudes y fases de las redes armónicas, se deriva la ecuación para la densidad media de portadores de carga libres  $n_0$  en función de la intensidad de excitación a partir de las Eqs. IV.7.-IV.10.

$$-\gamma_D n_0^2 - (s I_0 + \gamma_D N_A^-) n_0 + (N_D - N_A^-) s_D I_0 = 0 \quad (\text{IV.11})$$

y su solución está dada por

$$n_0 = \frac{-(s_D I_0 + \gamma_D N_A^-) \pm \sqrt{(s_D I_0 + \gamma_D N_A^-)^2 + 4\gamma_D s_D I_0 (N_D - N_A^-)}}{2\gamma_D}. \quad (\text{IV.12})$$

Es importante el conocimiento de la densidad media de portadores libres  $n_0$  ya que las amplitudes y fases de las respectivas redes armónicas  $\mathcal{E}_\nu$  quedarán en términos de la misma, y además  $n_0$  se puede determinar en forma experimental a partir de medidas de la fotoconductividad. La expresión IV.12. había sido obtenido anteriormente<sup>[8],[11]</sup>. Para encontrar las soluciones exactas de las amplitudes y fases armónicas estacionarias  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ , el sistema original se reduce a uno más simple de dos ecuaciones en  $E_{SC}$  y  $n$ , eliminando  $J$ , y  $N_D^+$

$$\frac{d(nE_{SC}^{st})}{dx} = \frac{k_B T}{e} \frac{d^2 n}{dx^2}, \quad (\text{IV.13})$$

$$s_D I_0 N_D (1 + m \exp(iKx)) = \frac{\left( \frac{\epsilon \epsilon_0}{e} \frac{dE^{st}}{dx} - n - N_A^- \right) \times}{[n\gamma_D + s_D I_0 (1 + m \exp(iKx))]} \quad (\text{IV.14})$$

Entonces, reemplazando la serie IV.2 en el sistema IV.13.-IV.14., y después de un procedimiento tedioso de cálculo, se generan ecuaciones algebraicas en los distintos factores  $\exp(i\nu Kx)$  para  $\nu = 1, \dots, \infty$ . Igualando coeficientes del mismo orden en  $\exp(i\nu Kx)$ , es posible obtener expresiones de recurrencia para los coeficientes armónicos complejos  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ , en términos de los parámetros internos y externos, de la amplitud de la  $\nu$ -ésima red de portadores  $n_\nu$ , y de los órdenes inferiores de las amplitudes armónicas del campo,  $\mathcal{E}_j$ , y portadores libres,  $n_j$ , para  $j = \nu - 1, \dots, 1$ . Los coeficientes de Fourier que determinan las amplitudes y fases de los portadores de carga libre y del campo espacial de carga se escriben en términos de parámetros característicos del efecto fotorrefractivo<sup>[6]</sup>. Los parámetros característicos son: el campo de difusión,

$$E_D = \frac{K k_B T}{e}, \quad (\text{IV.15})$$

definido como el campo máximo que puede alcanzar el campo espacial de carga en régimen de difusión puro. El campo de saturación,

$$E_q = \frac{e N_A^-}{K \epsilon \epsilon_0}, \quad (\text{IV.16})$$

definido como el campo máximo que puede alcanzar el campo espacial de carga para una dada concentración de trampas  $N_A^-$  en el material, y por último, el llamado campo de Maxwell

$$E_M = \frac{\gamma_D N_A^-}{\mu K}. \quad (\text{IV.17})$$

Los tediosos cálculos arriba mencionados nos permitieron obtener la siguiente fórmula de recurrencia para las redes de portadores de orden  $\nu$ ,

$$n_\nu^{st} = -\frac{i}{(\nu E_D + iE_0)} \sum_{j=1}^{\nu-1} n_j^{st} \mathcal{E}_{\nu-j}^{st}, \quad \nu \geq 1. \quad (\text{IV.18})$$

En términos de los campos complejos característicos  $\mathcal{E}_\nu$ , las expresiones para los primeros cuatro armónicos resultaron

$$\mathcal{E}_1^{st} = imE_q \frac{(1-r)(E_D + iE_0)}{(1-r)E_q + E_D + iE_0}, \quad (\text{IV.19})$$

$$\mathcal{E}_2^{st} = \frac{i(1-r)(\mathcal{E}_1^{st})^2 (E_q + 2E_D + iE_0)(E_D + iE_0)^{-1} - mr\mathcal{E}_1^{st}(2E_D + iE_0)}{(1-r)E_q + 4E_D + 2iE_0} \quad (\text{IV.20})$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_3^{st} = & [(1-r)E_q + 9E_D + 3iE_0]^{-1} \times \left\{ -2mrE_2^{st}(3E_D + iE_0) + i(1-r) \right. \\ & \times \left[ \frac{(E_q + 6E_D + i2E_0)\mathcal{E}_1^{st}\mathcal{E}_2^{st}}{E_D + iE_0} + \frac{(E_q + 3E_D + iE_0)\mathcal{E}_1^{st}}{2E_D + iE_0} \times \right. \\ & \left. \left. \times \left( \mathcal{E}_2^{st} - \frac{i(\mathcal{E}_1^{st})^2}{E_D + iE_0} \right) \right] \right\}, \quad (\text{IV.21}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_4^{st} = & [(1-r)E_q + 16E_D + 4iE_0]^{-1} \times \left\{ -3mr\mathcal{E}_3^{st}(4E_D + iE_0) + i(1-r) \right. \\ & \times \left[ \frac{(E_q + 12E_D + i3E_0)\mathcal{E}_1^{st}\mathcal{E}_3^{st}}{E_D + iE_0} + \frac{(E_q + 8E_D + i2E_0)\mathcal{E}_2^{st}}{2E_D + iE_0} \times \right. \\ & \times \left( \mathcal{E}_2^{st} - \frac{i(\mathcal{E}_1^{st})^2}{E_D + iE_0} \right) + \frac{(E_q + 4E_D + iE_0)\mathcal{E}_1^{st}}{3E_D + iE_0} \times \\ & \left. \left. \left( \mathcal{E}_3^{st} - \frac{i\mathcal{E}_1^{st}\mathcal{E}_2^{st}}{E_D + iE_0} - \frac{i\mathcal{E}_1^{st}\mathcal{E}_2^{st}}{2E_D + iE_0} - \frac{(\mathcal{E}_1^{st})^3}{(E_D + iE_0)(2E_D + iE_0)} \right) \right] \right\}, \quad (\text{IV.22}) \end{aligned}$$

con  $r = N_A^-/N_D$  y  $\gamma_0 = e\mu/\epsilon\epsilon_0$ . La expresión para  $\mathcal{E}_1^{st}$  coincide con la obtenida en trabajos previos<sup>[6]</sup>. Para el orden  $\nu \geq 2$  se obtiene la expresión general

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_\nu^{st} = & [(1-r)E_q + \nu^2 E_D + i\nu E_0]^{-1} \times \left\{ imr(\nu-1)L_\nu \mathcal{E}_{\nu-1}^{st} - (1-r) \times \right. \\ & \left. \sum_{\ell=1}^{\nu-1} \left[ (E_q + (\nu E_D + iE_0)(\nu - \ell)) \frac{\mathcal{E}_{\nu-\ell}^{st}}{L_\ell} \sum^{(\ell)} \frac{\mathcal{E}_{h_1}^{st} \mathcal{E}_{h_2}^{st} \dots \mathcal{E}_{h_\ell}^{st}}{L_{\ell-h_1} L_{\ell-h_1-h_2} \dots L_0} \right] \right\}, \quad (\text{IV.23}) \end{aligned}$$

donde en la suma  $\sum^{(\ell)}$ , cada conjunto de números naturales  $h_1, \dots, h_\ell$  debe ser ordenado sobre todas las posibles variaciones con repetición tal que  $1 \leq h_j \leq \ell$  y  $\sum_j h_j = \ell$  con  $L_\ell = i(\ell E_D + iE_0)$ ,  $L_0 = 1$ . Esto pone de manifiesto la dependencia explícita de las amplitudes  $E_\nu$  y fases  $\varphi_{E_\nu}$  de las redes fotorrefractivas contenidas en el coeficiente de Fourier  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ .

### IV.3.2 En el marco del modelo de trampas superficiales

Con las suposiciones de unidimensionalidad de las ecuaciones del material vistas en la subsección precedente, las ecuaciones del material III.12.-III.16. para el modelo de trampas superficiales, en la dirección  $x$  se reducen a

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = s_D I (N_D - N_D^+) - \gamma_D n N_D^+, \quad (\text{IV.24})$$

$$\frac{\partial N_S^-}{\partial t} = \gamma_S n (N_S - N_S^-) - \beta_S N_S^-, \quad (\text{IV.25})$$

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (n + N_A^- + N_S^- - N_D^+), \quad (\text{IV.26})$$

$$J = e \mu n E - k_B \mu T \frac{\partial n}{\partial x}, \quad (\text{IV.27})$$

$$\frac{\partial J}{\partial x} = -e \frac{\partial}{\partial t} (n + N_A + N_S^- - N_D^+), \quad (\text{IV.28})$$

Procediendo análogamente, se deriva primero la ecuación para la densidad media de portadores de carga libres, y por lo tanto de la fotoconductividad, en función de la intensidad de excitación a partir de las Eqs. IV.24.-IV.27

$$\begin{aligned} & \gamma_D \gamma_S n_0^3 + [s_D I_0 \gamma_S + \gamma_D \beta_S + \gamma_D \gamma_S (N_S + N_A^-)] n_0^2 + \\ & + [\beta_S (s_D I_0 + \gamma_D N_A^-) + s_D I_0 \gamma_S (N_S + N_A^- - N_D)] n_0 + \\ & \beta_S s_D I_0 (N_A^- - N_D) = 0 \end{aligned} \quad (\text{IV.29})$$

Esta ecuación había sido obtenida anteriormente en la ref.[49] y su solución está dada por

$$n_0 = \frac{1}{3\gamma_S} \left[ 2R^{1/2} \cos(\theta/3) - s_D I_0 \gamma_S / \gamma_D + \beta_S + \gamma_S (N_S + N_A^-) \right] \quad (\text{IV.30})$$

con

$$\begin{aligned} R = & (I_0 s_D \gamma_S / \gamma_D)^2 + \beta_S (\beta_S - s_D I_0 \gamma_S / \gamma_D + \gamma_S (2N_S - N_A^-)) + \\ & + s_D I_0 \gamma_S^2 / \gamma_D (3N_D - N_A^- - N_S) + \gamma_S^2 (N_S + N_A^-)^2, \end{aligned} \quad (\text{IV.31})$$



y

$$\begin{aligned} \cos \theta = & \frac{1}{2R^{3/2}} \left\{ -2(s_D I_0 \gamma_S / \gamma_D)^3 + (s_D I_0 \gamma_S / \gamma_D)^2 3\gamma_S (N_S + N_A^- - 3N_D) \right. \\ & + (s_D I_0 \gamma_S / \gamma_D) [3\gamma_S^2 (N_S + N_A^-) (N_S + N_A^- - 3N_D) + \\ & + 3\beta_S (\beta_S + s_D I_0 + 2\gamma_S (3N_D - 2N_A^- + N_S))] + \\ & + \beta_S^2 [3\gamma_S (N_A^- - 2N_S) - 2\beta_S] + \gamma_S^2 (N_S + N_A^-) \times \\ & \left. \times [3\beta_S (N_A^- - 2N_S) - 2\gamma_S (N_A^- + N_S)^2] \right\}. \end{aligned} \quad (IV.32)$$

Adviértase que la Ec. IV.29. es de tercer orden y permite tres soluciones diferentes. Sin embargo, se verificó que la expresión IV.30. representa a la densidad media de portadores de carga libres, ya que la misma es real, definida positiva y la única que satisface la condición  $n_0 \rightarrow 0$  cuando  $I_0 \rightarrow 0$ . Además, se reduce a la bien conocida expresión para  $n_0$  en el modelo de Kukhtarev Ec. IV.12 cuando la densidad total de impurezas superficiales es despreciable<sup>[8]</sup>.

Otra vez, las soluciones exactas de las amplitudes y fases armónicas estacionarias están contenidas en el coeficiente de Fourier  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ , y el sistema original IV.24-IV.28. se reduce a uno más simple de dos ecuaciones en  $E_{SC}$  y  $n$ , eliminando  $J$ , y  $N_D^+$ ,  $N_S^-$

$$\frac{d(nE^{st})}{dx} = \frac{k_B T}{e} \frac{d^2 n}{dx^2}, \quad (IV.33)$$

$$\begin{aligned} \gamma_S N_S n [n\gamma_D + s_D I_0 (1 + m \exp(iKx))] = & [\beta_S (1 + m \exp(iKx)) + \gamma_S n] \times \\ \left\{ \left( \frac{\epsilon \epsilon_0}{e} \frac{dE_{SC}^{st}}{dx} - n - N_A^- \right) [n\gamma_D + s_D I_0 (1 + m \exp(iKx))] + \right. & \\ \left. s_D I_0 N_D (1 + m \exp(iKx)) \right\}. & \end{aligned} \quad (IV.34)$$

Entonces, al igual que para el modelo de Kukhtarev, se reemplaza la serie IV.2 en el sistema IV.33.-IV.34. y después del procedimiento ya descrito en la sección anterior es posible obtener expresiones de recurrencia para los coeficientes armónicos complejos  $\mathcal{E}_\nu^{st}$  en términos de  $\mathcal{E}_j$ ,  $n_j$  para  $j = \nu - 1, \dots, 1$  y de  $E_D$ ,  $E_q$ ,  $E_M$  y  $E_0$ . Las expresiones para la  $\nu$ -ésima red de portadores de carga dentro del modelo de trampas superficiales,  $n_\nu^{st}$ , es

$$n_\nu^{st} = -\frac{i}{(\nu E_D + iE_0)} \sum_{j=0}^{\nu-1} n_j^{st} \mathcal{E}_{\nu-j}^{st}, \quad \nu \geq 1. \quad (IV.35)$$

Las expresiones para los primeros dos armónicos y el término general de orden  $\nu$  ( $\nu \geq 3$ )

pueden ser escritas como

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_1^{st} &= \frac{im(E_D + iE_0)}{M_1} \times \\
 &\times \{s_D I_0 [(2\beta_S + \gamma_S n_0)(N_D - N_A^- - n_0) - n_0 \gamma_S N_S] + n_0 \gamma_D \beta_S (N_A^- + n_0)\} \quad \text{IV.36} \\
 \mathcal{E}_2^{st} &= \frac{i(2E_D + iE_0)}{M_2} \times \left\{ \left( i \frac{K\epsilon\epsilon_0}{e} E_1^{st} - n_1^{st} \right) \times \right. \\
 &\times [(\beta_S + \gamma_S n_0)(ms_D I_0 + n_1^{st} \gamma_D) + (m\beta_S + \gamma_S n_1^{st})(s_D I_0 + n_0 \gamma_D)] - \\
 &- (m\beta_S + \gamma_S n_1^{st})(N_A^- + n_0)(ms_D I_0 + n_1^{st} \gamma_D) - n_1^{st} \gamma_S N_S (ms_D I_0 + n_1^{st} \gamma_D) + \\
 &\left. + ms_D I_0 N_D (m\beta_S + \gamma_S n_1^{st}) \right\} - \frac{n_1^{st} E_1^{st}}{M_2} D \quad \text{(IV.37)}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_\nu^{st} &= \frac{i(\nu E_D + iE_0)}{M_\nu} \left\{ \sum_{j=1}^{\nu-1} \left( ij \frac{K\epsilon\epsilon_0}{e} E_j^{st} - n_j^{st} \right) (a_0 b_{\nu-j} + a_1 b_{\nu-j-1}) \right. \\
 &- (N_A^- + n_0) \sum_{j=1}^{\nu-1} a_j b_{\nu-j} + \sum_{h=2}^{\nu-1} a_h \sum_{j=1}^{\nu-h} \left( ij \frac{K\epsilon\epsilon_0}{e} E_j^{st} - n_j^{st} \right) b_{\nu-j-h} - \\
 &\left. - \gamma_S N_S \sum_{j=1}^{\nu-1} n_j b_{\nu-j} + ms_D I_0 a_{\nu-1} N_D \right\} - \frac{D}{M_\nu} \sum_{j=1}^{\nu-1} n_j^{st} E_{\nu-j}^{st} \quad \text{(IV.38)}
 \end{aligned}$$

con

$$\begin{aligned}
 D &= \gamma_S n_0 [\gamma_D (2N_A^- + 2N_S + 3n_0) + 2s_D I_0] + \\
 &+ s_D I_0 [\gamma_S (N_A^- + N_S - N_D) + \beta_S] + \gamma_D \beta_S (N_A^- + 2n_0) \quad \text{(IV.39)}
 \end{aligned}$$

$$M_\nu = n_0 D + \nu(\nu E_D + iE_0) \frac{K\epsilon\epsilon_0}{e N_A} (s_D I_0 + n_0 \gamma_D) (\beta_S + \gamma_S n_0) N_A^- \quad \text{(IV.40)}$$

y los coeficientes  $a_i$  y  $b_i$  definidos por  $a_0 = \beta_S + \gamma_S n_0$ ,  $b_0 = s_D I_0 + n_0 \gamma_D$ ,  $a_1 = m\beta + n_1^{st} \gamma_S$ ,  $b_1 = ms_D I_0 + n_1^{st} \gamma_D$ ,  $a_h = \gamma_S n_h$  y  $b_h = \gamma_D n_h^{st}$ , para  $h \geq 2$ .

Esto pone de manifiesto la dependencia explícita de las amplitudes  $E_\nu$  y fases  $\varphi_{E_\nu}$  de las redes fotorrefractivas contenidas en el coeficiente de Fourier  $\mathcal{E}_\nu^{st}$  para el modelo de trampas superficiales.

### IV.3.3 En el marco de modelos con transporte bipolar de carga

Para el modelo de transporte electrón-hueco con dos especies de impurezas fotoactivas profundas, las condiciones de unidimensionalidad en la dirección  $x$  reducen las

ecuaciones del material III.17.-III.19 y III.22.-III.26. a las expresiones

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = s_e I (N_D - N_D^+) - \gamma_e n_e N_D^+ \quad (\text{IV.41})$$

$$\frac{\partial N_A^-}{\partial t} = s_h I (N_A - N_A^-) - \gamma_h n_h N_A^- \quad (\text{IV.42})$$

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (n_e - n_h + N_A^- - N_D^+ + N_{eq}) \quad (\text{IV.43})$$

$$\frac{1}{e} \frac{\partial J_e}{\partial x} = -\frac{\partial}{\partial t} (n_e - N_D^+) \quad (\text{IV.44})$$

$$\frac{1}{e} \frac{\partial J_h}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial t} (N_A^- - n_h) \quad (\text{IV.45})$$

$$J_e = e \mu_e n_e E - k_B \mu_e T \frac{\partial n_e}{\partial x} \quad (\text{IV.46})$$

$$J_h = e \mu_h n_h E + k_B \mu_h T \frac{\partial n_h}{\partial x} \quad (\text{IV.47})$$

donde  $N_{eq} = N_{Aeq}^- - N_{Deq}^+$  es la diferencia entre las densidades de aceptores y huecos ionizados en condiciones de equilibrio termodinámico.

Así como en los otros dos modelos, antes de obtener las amplitudes y fases  $\mathcal{E}_\nu$ , obtenemos las ecuaciones para las densidades de ambos portadores de carga, electrones y huecos a partir de las ecuaciones del material-en el marco de este modelo (fotoconductividad electrónica y de huecos). Nótese la simetría de las ecuaciones en correspondencia con la simetría del modelo observado en la Fig. III.3.

$$\gamma_e n_{e0}^2 + (\gamma_e A_1 + s_e I_0) n_{e0} + s_e I_0 (A_1 - N_D) = 0 \quad (\text{IV.48})$$

$$\gamma_h n_{h0}^2 + (\gamma_h A_2 + s_h I_0) n_{h0} + s_h I_0 (A_2 - N_A) = 0 \quad (\text{IV.49})$$

con  $A_1$ , and  $A_2$  dadas por

$$N_{Deq}^+ - n_{e0} = A_1, \quad (\text{IV.50})$$

$$N_{Aeq}^- - n_{h0} = A_2, \quad (\text{IV.51})$$

y soluciones dadas por

$$n_{e0} = \left\{ -(\gamma_e A_1 + s_e I_0) \pm \left[ (\gamma_e A_1 - s_e I_0)^2 + 4\gamma_e s_e I_0 N_D \right]^{1/2} \right\} / (2\gamma_e) \quad (\text{IV.52})$$

$$n_{h0} = \left\{ -(\gamma_h A_2 + s_h I_0) \pm \left[ (\gamma_h A_2 - s_h I_0)^2 + 4\gamma_h s_h I_0 N_A \right]^{1/2} \right\} / (2\gamma_h) \quad (\text{IV.53})$$

donde cada una de las densidades es similar a las obtenidas por Valley<sup>[63]</sup>. También se verificó que ambas expresiones se reducen a las obtenidas para el modelo de Kukhtarev<sup>[8]</sup>

cuando la especie aceptora, responsable de la generación y atrapamiento de huecos en la banda de valencia es insignificante frente a la concentración de la especie donora responsable de la generación y recombinación de electrones en la banda de conducción (cristal *tipo n*) ó viceversa (cristal *tipo p*).

Para encontrar las soluciones exactas de las amplitudes y fases armónicas estacionarias contenidas en el coeficiente de Fourier  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ , el sistema original IV.41.-IV.47. se reduce eliminando  $J_e$ ,  $J_h$ ,  $N_D^+$  y  $N_A^-$ , a uno más simple de dos ecuaciones en  $E_{SC}$  y  $n$

$$\frac{d(n_e^{st} E_{SC}^{st})}{dx} = \frac{k_B T}{e} \frac{d^2 n_e^{st}}{dx^2}, \quad (IV.54)$$

$$\frac{d(n_h^{st} E_{SC}^{st})}{dx} = -\frac{k_B T}{e} \frac{d^2 n_h^{st}}{dx^2}, \quad (IV.55)$$

$$\begin{aligned} & [\gamma_e n_e + s_e I_0 (1 + m \exp(iKx))] \times \\ & \times [\gamma_h n_h + s_h I_0 (1 + m \exp(iKx))] \left( n_e^{st} - n_h^{st} + N_{eq} - \frac{\epsilon \epsilon_0}{e} \frac{dE_{SC}^{st}}{dx} \right) \\ = & s_e I_0 N_D (1 + m \exp(iKx)) [\gamma_h n_h + s_h I_0 (1 + m \exp(iKx))] - \\ & - s_h I_0 N_A (1 + m \exp(iKx)) [\gamma_e n_e + s_e I_0 (1 + m \exp(iKx))] \end{aligned} \quad (IV.56)$$

Análogo al procedimiento para el modelo de Kukhtarev y trampas superficiales, se reemplaza la serie IV.2 en el sistema IV.54.-IV.55. y después de un procedimiento tedioso de cálculo, es posible obtener expresiones de recurrencia para los coeficientes armónicos complejos  $\mathcal{E}_\nu^{st}$ . Primero escribimos las expresiones para la  $\nu$ -ésimas redes de electrones  $(n_e^{st})_\nu$  y huecos  $(n_h)_\nu$  dentro del modelo de conducción bipolar

$$\dot{n}_{e_\nu}^{st} = -\frac{i}{(\nu E_D + iE_0)} \sum_{j=0}^{\nu-1} n_j^{st} \mathcal{E}_{\nu-j}^{st}, \quad (IV.57)$$

$$n_{h_\nu}^{st} = \frac{i}{(\nu E_D - iE_0)} \sum_{j=0}^{\nu-1} n_j^{st} \mathcal{E}_{\nu-j}^{st}, \quad \nu \geq 1. \quad (IV.58)$$

Por otro lado, y en términos de los campos característicos, las expresiones para los primeros dos armónicos y el término general de orden  $\nu$  ( $\nu \geq 3$ ) pueden ser escritas como

$$\mathcal{E}_1^{st} = \frac{im(E_D + iE_0)}{M_1} [(1 - r_2) E_{Q_D} - (1 - r_1) E_{Q_A}] \quad (IV.59)$$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_2^{st} = & \frac{(2E_D + iE_0)}{M_2} \times \\
 & \{i m^2 [(1 - r_2) r_1 E_{Q_D} - (1 - r_1) r_2 E_{Q_A}] - \\
 & - m \mathcal{E}_1^{st} [(1 - r_1) / (E_D - iE_0) + r_1 / (E_D + iE_0)] (1 - r_2) E_{Q_D} \\
 & + [(1 - r_2) / (E_D + iE_0) + r_2 / (E_D - iE_0)] (1 - r_1) E_{Q_A} + \\
 & + i(E_{Q_A} - E_{Q_D}) (1 - r_1) (1 - r_2) (E_1^{st})^2 / (E_D^2 + E_0^2) - \mathcal{E}_1^{st} m (r_1 + r_2) + \\
 & + i (\mathcal{E}_1^{st})^2 [(1 - r_2) / (E_D + iE_0) - (1 - r_1) / (E_D - iE_0)] + \\
 & + i (E_1^{st})^2 [(1 - r_2) E_{Q_D} / (E_D + iE_0) - (1 - r_1) E_{Q_A} / (E_D - iE_0)] \quad (IV.60)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_\nu^{st} = & \frac{i(\nu E_D + iE_0)}{M_\nu} \{m E_{Q_D} (1 - r_2) [(1 - r_1) R_{\nu-1}^* - r_1 R_{\nu-1}] - \\
 & - m E_{Q_A} (1 - r_1) [(1 - r_2) R_{\nu-1} - r_2 R_{\nu-1}^*] + \\
 & + (E_{Q_A} - E_{Q_D}) (1 - r_1) (1 - r_2) \sum_{j=1}^{\nu-1} R_j R_{\nu-j}^* + \\
 & + i \sum_{j=1}^{\nu-1} j \mathcal{E}_j \left[ (1 - r_1) R_{\nu-j}^* + (1 - r_2) R_{\nu-j} - (1 - r_1) (1 - r_2) \sum_{h=2}^{\nu-j-2} R_h R_{\nu-j-h}^* \right] + \\
 & + i \sum_{j=1}^{\nu-1} j E_j^{st} [(1 - r_1) (m r_2 + (1 - r_2) R_1) R_{\nu-j-1}^* + \\
 & + (1 - r_2) (m r_1 + (1 - r_1) R_1^*) R_{\nu-j-1}] + \\
 & + i (\nu - 2) E_{\nu-2} (m r_2 + (1 - r_2) R_1) (m r_1 + (1 - r_1) R_1^*) + \\
 & + i (\nu - 1) E_{\nu-1} m (r_1 + r_2) - \sum_{j=1}^{\nu-1} E_j \times \\
 & \times [(1 - r_1) E_{Q_A} R_{\nu-j}^* (\nu E_D + iE_0) / (\nu E_D - iE_0) + (1 - r_2) E_{Q_D} R_{\nu-j}] \quad (IV.61)
 \end{aligned}$$

con

$$M_\nu = \nu (\nu E_D + iE_0) + (1 - r_2) E_{Q_D} + (1 - r_1) E_{Q_A} (\nu E_D + iE_0) / (\nu E_D - iE_0) \quad (IV.62)$$

y los coeficientes  $a_0 = \beta_S + \gamma_S n_0$ ,  $b_0 = s_D I_0 + n_0 \gamma_D$ ,  $a_1 = m \beta + n_1^{st} \gamma_S$ ,  $b_1 = m s_D I_0 + n_1^{st} \gamma_D$ ,  $a_h = \gamma_S n_h$  y  $b_h = \gamma_D n_h^{st}$ , para  $h \geq 2$ . Los coeficientes  $R_h$  están definidos por recurrencia como  $R_0 = 1$ ,  $R_1 = -i E_1 / (E_D + iE_0)$ ,  $R_2 = -i / (2E_D + iE_0) (E_2 + R_1 E_1)$ , ...,  $R_h = -i / (h E_D + iE_0) \sum_{j=1}^{h-1} R_j E_{h-j}$ . Luego con  $r_1 = N_{Aeq}^- / N_A$  y  $r_2 = N_{Deq}^- / N_D$ . Los campos de

saturación son ahora definidos para electrones y huecos, respectivamente, por

$$E_{Q_D} = \frac{eN_{Deq}^+}{K\epsilon\epsilon_0} \quad (\text{IV.63})$$

$$E_{Q_A} = \frac{eN_{Aeq}^-}{K\epsilon\epsilon_0} \quad (\text{IV.64})$$

y definidos por el máximo campo espacial de carga que puede producirse para dadas concentraciones de trampas donoras  $N_{Deq}^+$ , y aceptoras  $N_{Aeq}^-$  respectivamente. Esto pone de manifiesto la dependencia explícita de las amplitudes  $E_\nu$  y fases  $\varphi_{E_\nu}$  de las redes fotorrefractivas contenidas en el coeficiente de Fourier  $\mathcal{E}_\nu^{st}$  para el modelo de conducción bipolar con dos especies de impurezas fotorrefractivas profundas.

## Capítulo V

# Comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas

### V.1 Introducción

En este Capítulo se describirá el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas en función de los principales parámetros experimentales y en términos de los parámetros intrínsecos que corresponden a cada uno de los modelos descritos en esta Tesis. Las simulaciones serán hechas a partir de las expresiones obtenidas en el capítulo precedente para los campos complejos  $\mathcal{E}_\nu$ , que dan las amplitudes y fases de las redes fotorrefractivas armónicas por medio de las expresiones IV.3.-IV.4. En particular, se analizará la dependencia simultánea de las amplitudes de las redes fotorrefractivas armónicas  $E_\nu$  que sintetizan el campo espacial de carga  $E_{SC}$  en función del factor de modulación  $m$ , espaciado de la red  $\Lambda$ , intensidad de excitación  $I_0$  y campo externo aplicado  $E_0$ , en régimen estacionario y en el marco del clásico modelo de Kukhtarev y sus extensiones dinámicas. Por otro lado, y a partir de la convergencia de la suma de Fourier al valor de  $E_{SC}$ , se obtendrá la distribución espacial del campo fotorrefractivo en el volumen del cristal y se podrá conocer la cantidad de componentes armónicas que contribuyen para valores dados de los parámetros internos y externos. A partir del análisis global, será posible identificar los diferentes rangos de respuesta lineal y no lineal de los medios fotorrefractivos en el marco de los diferentes modelos dinámicos aquí estudiados. Los resultados se aplican en forma general debido a que las soluciones fueron obtenidas en forma exacta, sin restricciones. Los parámetros de

excitación fueron simulados en un rango experimental amplio,  $10^{-3} \leq I_0 \leq 10 \text{ W/cm}^2$ ,  $0 < m \leq 1$ ,  $0.1 \leq \Lambda \leq 10 \mu\text{m}$ ,  $0 \leq E_0 \leq 10 \text{ KV/cm}$ .

## V.2 En el marco del modelo de Kukhtarev

### V.2.1 Dependencia con la intensidad, factor de modulación, espaciado de red y campo aplicado

Comenzaremos con el modelo de Kukhtarev. En las simulaciones hemos utilizado valores de los parámetros intrínsecos correspondientes al BSO. Esta elección obedece a la existencia de un extenso número de trabajos teórico-experimentales que describen el efecto fotorrefractivo en cristales silenitas tipo BSO, dopados y no dopados, en el marco de los modelos aquí estudiados: el de Kukhtarev [8]-[10],[12],[27]-[28],[29]-[32], el de trampas superficiales [40]-[41],[43], [46],[48]-[49] y el de conducción bipolar electrón-hueco [50]-[51],[69]. La Tabla 5.1. presenta los valores de los parámetros característicos utilizados para el BSO[31].

<i>Parámetros del cristal</i>	
Impurezas fotorrefractivas, $N_D$	$10^{19} \text{ cm}^{-3}$
Impurezas compensadoras, $N_A$	$10^{16} \text{ cm}^{-3}$
Constante de fotogeneración, $s$ (514 nm)	$2 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{J}$
Movilidad del portador de carga, $\mu$	$2.4 \times 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{V s}$
Constante dieléctrica estática, $\epsilon$	$56 \epsilon_0$
Coefficiente de recombinación, $\gamma$	$1.6 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$

Tabla 5.1. Valores de los parámetros utilizados en las simulaciones.

Se verificó numéricamente que las amplitudes de las diferentes redes armónicas no dependen de la intensidad media de excitación en el rango de intensidades correspondiente al régimen continuo ( $0.001 - 10 \text{ W/cm}^2$ ), para un conjunto arbitrario de valores los principales parámetros externos. Este resultado era conocido para la red fundamental<sup>[6]</sup> pero se desconocía la dependencia para las amplitudes del segundo, tercer y cuarto armónico. Por otro lado, se realizó un análisis simultáneo en términos del factor de modulación  $m$  y el espaciado de la red  $\Lambda$  con el objetivo de conocer, por un lado la dependencia con ambos parámetros y por otro, su rango de valores donde las redes armónicas son despreciables ó significativas. Esto implica identificar las zonas de respuesta lineal y no lineal del material fotorrefractivo.



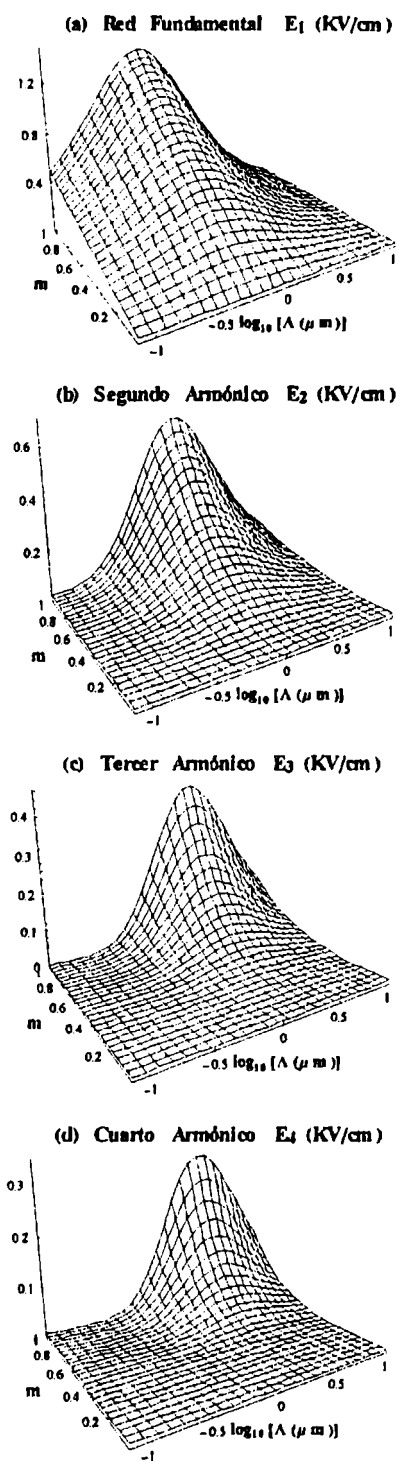


Figura V.1. Superficies que representan las amplitudes de la red fundamental y los tres primeros armónicos en función de  $\Lambda$  y  $m$ .

En el análisis en términos del espaciado de la red, se verificó la presencia de máximos en las superficies que representan las amplitudes de las diferentes redes armónicas en función de  $\Lambda$ . Para la red fundamental, este máximo fue observado experimentalmente para diferentes cristales como el BSO y el BaTiO<sub>3</sub> y muchos otros<sup>[6]</sup>.

La existencia de los máximos está claramente ilustrada en la Figura V.1. para la red fundamental y los armónicos segundo, tercero y cuarto. El valor del espaciado de la red correspondiente a tales máximos es frecuentemente llamado longitud de apantallamiento de Debye,  $\Lambda_D$ . A partir de la Figura V.1., es evidente que las posiciones de los máximos en las redes de orden superior, segundo, tercer y cuarto armónico, están corridas hacia mayores espaciados respecto del armónico de orden inferior. Entonces, la red fundamental es la que se encuentra corrida hacia mayores espaciados, que para el BSO corresponde a  $\Lambda_D \approx 1\mu m$ . Los máximos para las redes armónicas segundas, tercera y cuarta fue predicha en trabajos teóricos anteriores<sup>[4],[21],[24],[27]</sup>. En particular, es destacable el realizado por Serrano y col.<sup>[29]</sup>, pero sus cálculos están basados en métodos aproximados de resolución.

A partir de dichas figuras se observa que, a partir de  $\Lambda_D$ , y en la dirección de  $\Lambda$  creciente, la pendiente de la superficie  $E_\nu$  es menos pronunciada que hacia espaciados más bajos. Esto indica una menor disminución de las respectivas amplitudes armónicas en la dirección de  $\Lambda$  creciente. Se observa que el decrecimiento es menor para los armónicos de mayor orden. Es decir que, por ejemplo, la amplitud del segundo armónico tiene un mayor decrecimiento que la amplitud del tercer armónico, en el mismo intervalo de  $\Lambda$ , en dirección creciente del mismo. El motivo del gran interés en analizar las redes armónicas en régimen no lineal, para valores significativos de  $m$  se debió a la posibilidad de incrementar la variación en el índice de refracción. Los trabajos donde se obtienen la dependencia de las amplitudes de las redes armónicas en términos del factor de modulación tienen un rasgo común: dicha dependencia cambia con el orden de la aproximación que utiliza el método de resolución. Esta cuestión pudo ser evitada en este trabajo al obtener las relaciones de recurrencia para los coeficientes de Fourier V.1, lo que implica el conocimiento de las amplitudes y fases de todos los armónicos que sintetizan el campo espacial de carga. Las expresiones IV.19-IV.22 indican la dependencia exacta de las amplitudes de las redes armónicas en términos del factor de modulación. Si se denota por  $f_\nu(m)$  a la función que describe la dependencia con  $m$  para el armónico de orden  $\nu$ , a partir de las ecuaciones mencionadas y mediante el principio de inducción completa, se prueba fácilmente que el modelo de Kukhtarev predice

la dependencia de  $E_\nu$  con  $m$  por la relación

$$f_\nu(m) = m^\nu. \quad (\text{V.1})$$

Esto indica que la amplitud de la red fundamental  $E_1$  depende linealmente con  $m$ , independientemente del valor de la modulación. El interés teórico por justificar la no-linealidad en la dependencia de  $E_1$  con  $m$ , está basado en la observada dependencia no lineal para muchos materiales<sup>[16],[20]</sup>. Pero en las figuras de tales trabajos no se colocan las cotas de los errores cometidos en los pocos puntos experimentales que se separan de la función lineal. Esto pone en duda si realmente dicho comportamiento es superlineal. Si tales resultados experimentales fuesen correctos, debemos decir que desafortunadamente, el modelo de Kukhtarev no interpretaría satisfactoriamente los resultados experimentales para la red fundamental en un pequeño rango de elevados valores del factor de modulación. En los mencionados trabajos experimentales también se observa una dependencia superlineal del segundo y tercer armónico para valores altos del factor de modulación. De ser dicho resultado correcto, la dependencia dada por V.1 está en acuerdo con las observaciones. En las Figuras V.1. *a*, *b*, *c* y *d* está representada la dependencia lineal, cuadrática, cúbica y cuártica de las redes fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico respectivamente. Es claro que en la región de los máximos, las amplitudes de las redes de orden superior se tornan significativas con respecto a la red fundamental para elevados valores de  $m$ , tal que para  $m = 1$  por ejemplo, las diferentes relaciones entre los armónicos son:  $\sim 1/2$  para el segundo,  $\sim 1/3$  para el tercer y  $\sim 1/5$  para el cuarto armónico.

Con el objetivo de profundizar el análisis en términos de  $\Lambda$  y  $m$ , e identificar sus intervalos de valores donde las redes superiores contribuyen ó no significativamente a los cambios en el índice de refracción, se muestra en la Figura V.2., la amplitud de los tres primeros armónicos, segundo, tercero y cuarto, relativos a la amplitud del fundamental en la región experimental  $(\Lambda, m)$  usual. De esta manera es fácil identificar las regiones de respuesta lineal y no lineal del medio fotorrefractivo, asociadas con la aparición de tales redes. Se visualiza que para  $m \ll 1$ , e independientemente del valor del espaciado de la red, las redes armónicas de orden superior son despreciables respecto de la red fundamental y la respuesta del medio es por lo tanto lineal. Es por ello que al esquema experimental con bajas modulaciones de la intensidad de los haces que interfieren se la designa generalmente como el régimen lineal,

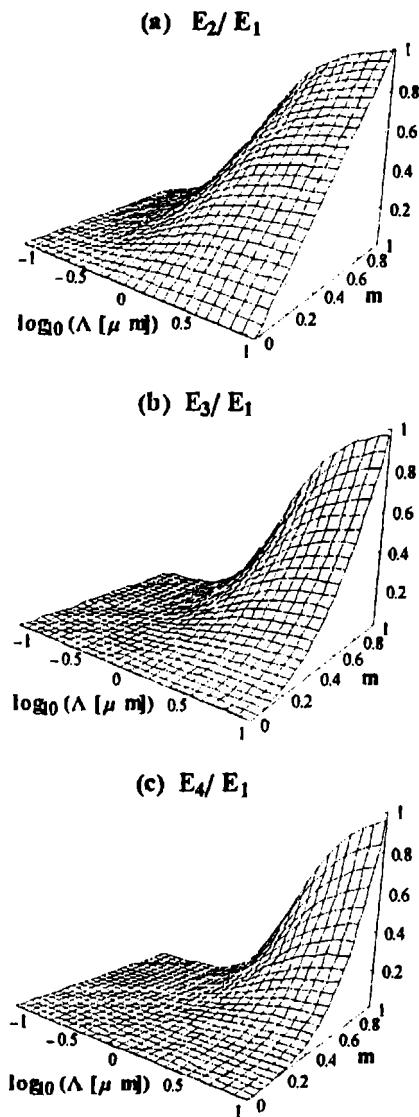


Figura V.2. Superficies que representan la razón de las amplitudes de las redes armónicas de orden superior con respecto a la red fundamental en función de  $\Lambda$  y  $m$ .

tal que el campo espacial de carga es consecuencia sólo de la contribución del término fundamental<sup>[6]</sup>. También se pueden identificar nítidamente tres regiones de diferente comportamiento en términos de diferentes rangos de valores del espaciado de la red. En efecto, en la región  $\Lambda \ll \Lambda_D^1$ , las amplitudes de las redes de orden superior son despreciables comparadas con la red fundamental independientemente del valor del factor de

<sup>1</sup>con  $\Lambda_D$  nos referimos a la longitud de apantallamiento de la red fundamental

modulación. Esto significa que, aún para altos valores de  $m$ , únicamente la red fundamental es importante. En esta región, el medio no presenta respuesta no lineal, independiente de los valores de  $m$ . En la región  $\Lambda \approx \Lambda_D$ , la importancia relativa de las redes armónicas de orden superior crece rápidamente con el incremento de  $\Lambda$ . Así, la influencia de los armónicos puede cambiar drásticamente con sólo pequeños cambios en el período de la red. Se observa este comportamiento en las Figuras V.2. *a*, *b* y *c*. Entonces, en esta región, la importancia de las diferentes redes armónicas depende fuertemente de  $\Lambda$  y  $m$ . Finalmente, en la región  $\Lambda \gg \Lambda_D$ , la amplitud relativa de las redes de orden superior satura, al incrementarse  $\Lambda$ , a un dado valor del mismo. Es claro, en la Figura V.2., que para  $m \approx 1$ , las amplitudes de los tres armónicos de orden superior alcanzan a la amplitud de la red fundamental. En esta región, la respuesta no lineal del medio es importante aún para valores de la modulación no demasiado grande. A su vez, también es evidente, a partir de la Figura que  $E_c$  se incrementa con  $m$  según la relación V.1 y que los límites de los regímenes lineales y no lineales dependen fuertemente de ambos,  $\Lambda$  y  $m$ , y no sólo de  $m$  como se describe usualmente en la literatura. En la Figura V.3., se ha graficado el número de componentes de la suma de Fourier necesarios para la convergencia del campo espacial de carga<sup>2</sup>, en términos de  $\Lambda$  y  $m$ . Nótese que un pequeño cambio en la dirección diagonal en el espacio  $(\Lambda, m)$  produce la máxima variación en el número de redes que contribuyen

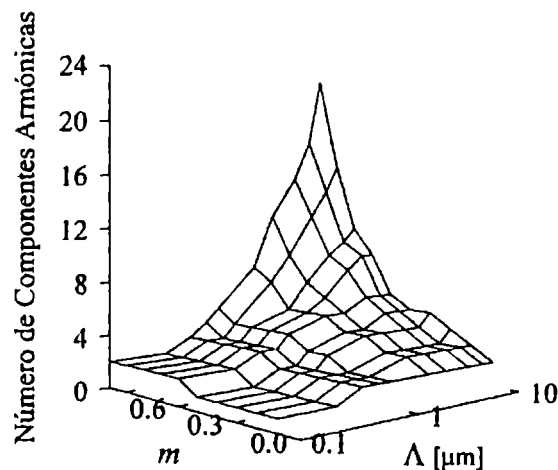


Figura V.3. Número de componentes armónicas necesarios para la convergencia del campo espacial de carga  $E_{SC}$ .

<sup>2</sup>el criterio de truncación de la serie es detallado en la subsección siguiente

al campo espacial de carga fotorrefractivo, lo que confirma que la respuesta no lineal del medio depende fuertemente de ambos parámetros experimentales. En efecto, puede ocurrir, si se selecciona un valor adecuado de  $\Lambda$ , que la respuesta del medio puede llegar a ser lineal para grandes valores de  $m$ , como así también el material puede responder en forma no lineal para pequeños  $m$ . Este hecho por lo general no es tenido en cuenta en el análisis de la respuesta lineal y no lineal de los materiales fotorrefractivos.

Por otro lado, también se analizó la dependencia de las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos en términos de un campo eléctrico externo.

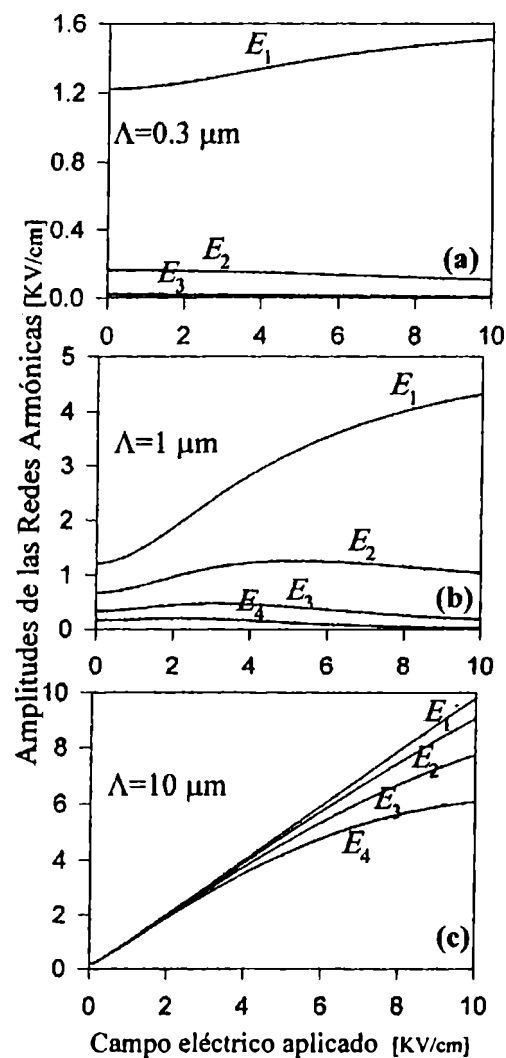


Figura V.4. Amplitudes de la red fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico en función del campo externo aplicado para una profundidad de modulación  $m = 1$ .

La Figura V.4. muestra dicho comportamiento para la amplitud de la red fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico. Cada subfigura correspondiente a las distintas regiones en  $\Lambda$ : lineal, de transición y no lineal. Nótese que en la región  $\Lambda \ll \Lambda_D$  (Fig. V.4. a), el campo aplicado influye débilmente en la variación de la amplitud de la red fundamental. Sólo para altos valores del mismo, la amplitud fundamental se incrementa levemente. En la región de transición,  $\Lambda \sim \Lambda_D$  (Fig. V.4. b), para valores crecientes del campo aplicado, la red fundamental crece sublinealmente y con mayor derivada que las componentes armónicas. En este caso, las contribuciones al campo espacial de carga de estos últimos se tornan muy pequeñas frente a las contribuciones de la amplitud fundamental. En la región,  $\Lambda \gg \Lambda_D$  (Fig. V.4. c) todas las componentes armónicas se incrementan según aumenta el campo aplicado. Además para un campo aplicado intenso, es evidente el comportamiento sublineal de los armónicos, en contraste con la dependencia lineal de la red fundamental. Nótese que la contribución de la red fundamental en relación con sus armónicos, se incrementa cuando se incrementa la intensidad del campo aplicado, tal que la respuesta no lineal del medio es más significativa para pequeños valores del campo aplicado.

## V.2.2 Distribución espacial del campo fotorrefractivo

Puesto que se obtuvieron las amplitudes  $E_\nu$  y fases  $\varphi_\nu$  de las redes fotorrefractivas, es también posible conocer la distribución espacial precisa del campo espacial de carga en el volumen del cristal por medio de la expresión IV.1. El perfil del campo se puede relacionar con la respuesta del medio ya que la pérdida del perfil sinusoidal del campo fotorrefractivo es consecuencia de la contribución de las componentes armónicas<sup>[29]</sup>. Sin embargo, un análisis riguroso del mencionado perfil es posible únicamente mediante el conocimiento exacto de la amplitudes y fases respecto al patrón de excitación, obtenidas a partir del modelo de Kukhtarev y dadas por las expresiones IV.19-IV.23. De otra manera, es muy difícil acotar el error cometido en la truncación de la serie IV.1. Hemos simulado los perfiles del campo fotorrefractivo. El criterio de convergencia de la expansión truncada al valor de  $E_{SC}$  fue elegido como sigue: la serie de Fourier que representa a  $E_{SC}$  se trunca en el  $\nu$ -ésimo término y se considera convergente al campo fotorrefractivo, cuando el valor de la suma truncada en el término  $\nu + 1$  no supera en  $10^{-2}$  al valor de la suma truncada en el término  $\nu$ , para cualquier valor de la coordenada espacial  $x$ .

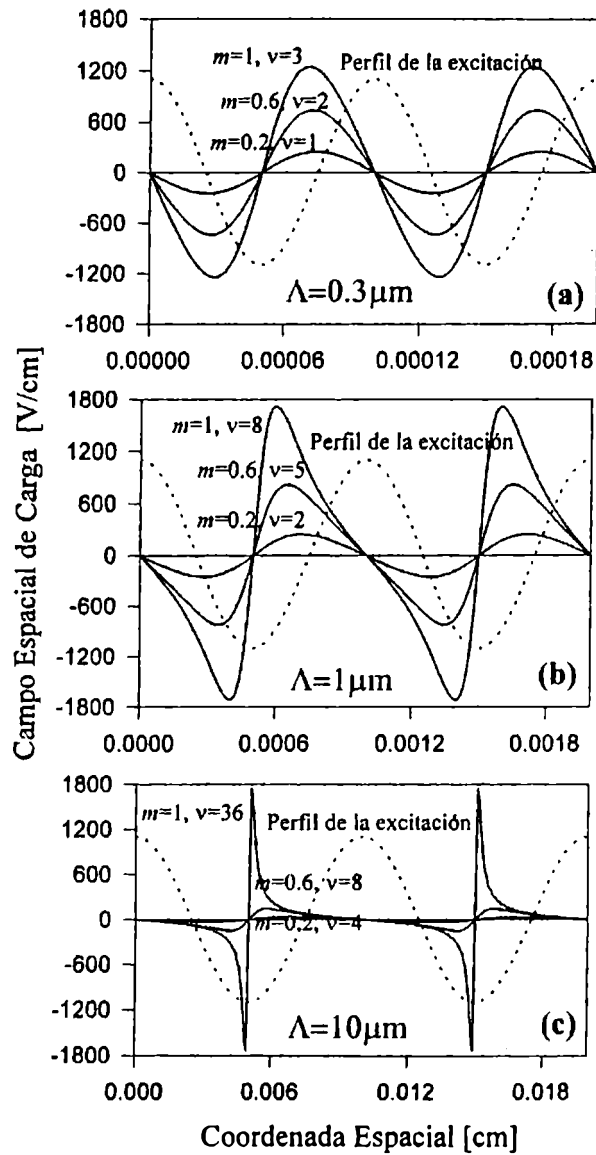


Figura V.5. Perfil del campo espacial de carga  $E_{SC}$  a lo largo de dos períodos de red, sin campo externo aplicado en las tres regiones en  $\Lambda$  de interés y para diferentes profundidades de la modulación.

Para dicho error, se verificó que el perfil de ambas sumas truncadas,  $\sum^{\nu}$  y  $\sum^{\nu+1}$  se corresponde con el perfil del campo espacial de carga  $E_{SC}$ . La Figura V.5. muestra el perfil de  $E_{SC}$  a lo largo de dos períodos de la red para diferentes valores de la intensidad de la modulación en las tres regiones en  $\Lambda$  mencionadas. Los valores de  $\nu$  indican el orden de la suma truncada que satisface nuestro criterio de convergencia. En la región correspondiente



a  $\Lambda \ll \Lambda_D$ , el perfil espacial del campo fotorrefractivo permanece sinusoidal como puede observarse en la Figura V.5. *a*, donde prácticamente sólo la componente fundamental  $\nu = 1$  contribuye a  $E_{SC}$ , aún para  $m = 1$ . Se observó una distribución antisimétrica del campo respecto del punto donde  $E_{SC} = 0$  y un corrimiento de fase en  $\pi/2$  entre la red fotorrefractiva y las franjas de interferencia. Lo primero se corresponde con una migración equiprobable de la carga en ambos sentidos de la dirección  $x$ , es decir un régimen de difusión puro. Lo segundo corresponde a la *no localidad* del efecto fotorrefractivo, hecho evidenciado experimentalmente, que corroboró ampliamente la teoría formulada por Kukhtarev<sup>(6)</sup>. Para  $\Lambda \approx \Lambda_D$ , la forma del perfil comienza a perder su forma sinusoidal lo que indica que las redes de orden superior comienzan a contribuir significativamente. Esto puede verse en la Figura V.5. *b*. El valor de  $\Lambda$  donde el campo fotorrefractivo es máximo no coincide con el valor de  $\Lambda$  donde se producen los mínimos de las franjas de interferencia. Esto indica que la carga no difunde completamente a las región menos iluminada. Tal desfase se corresponde con la aparición de componentes armónicas para el campo fotorrefractivo. Este efecto es más notorio para altos valores de  $m$ . Para  $\Lambda \gg \Lambda_D$ , el número de componentes armónicas que sintetizan el perfil del campo fotorrefractivo es grande y la forma sinusoidal del perfil de  $E_{SC}$  se pierde completamente, según se observa en la Fig. V.5. *c*. La distribución del campo se reduce a picos fuertemente localizados en el espacio. Esto indica una muy alta concentración de carga en una reducida región del espacio. La amplitud del pico (Fig. V.5. *c*), es similar a las amplitudes del campo fotorrefractivo en las otras dos regiones (Figs. V.5. *a* y *b*). Sin embargo, cuando los valores de  $m$  son pequeños ( $m = 0.2$  en la Figura V.5.), la amplitud del campo en la región  $\Lambda \gg \Lambda_D$  (Fig. V.5. *c*) se torna despreciable frente a las regiones  $\Lambda \approx \Lambda_D$ , y  $\Lambda \ll \Lambda_D$  (Figs. V.5. *a* y *b*). Por lo tanto, para formar una gran cantidad de redes, es necesario no sólo trabajar en régimen de alta modulación sino también es necesario obtener grandes espaciados de las franjas interferométricas. También, cambiamos los valores de los parámetros del material en el análisis: para materiales con una concentración similar de fuentes  $N_D$  y trampas  $N_A$ , como ciertos casos del  $\text{LiNbO}_3$  dopado con hierro, la respuesta no lineal del medio se produce para menores valores de  $\Lambda$  en relación a los materiales con  $N_D \gg N_A$ , como el BSO. Por lo tanto, una fuerte influencia de las componentes armónicas de orden superior se puede producir para pequeños valores de  $m$ , si se trabaja con espaciados de red que satisfagan  $\Lambda \gg \Lambda_D$  ó se empleen materiales con una alta concentración de trampas,  $N_D/N_A \sim 1$ .

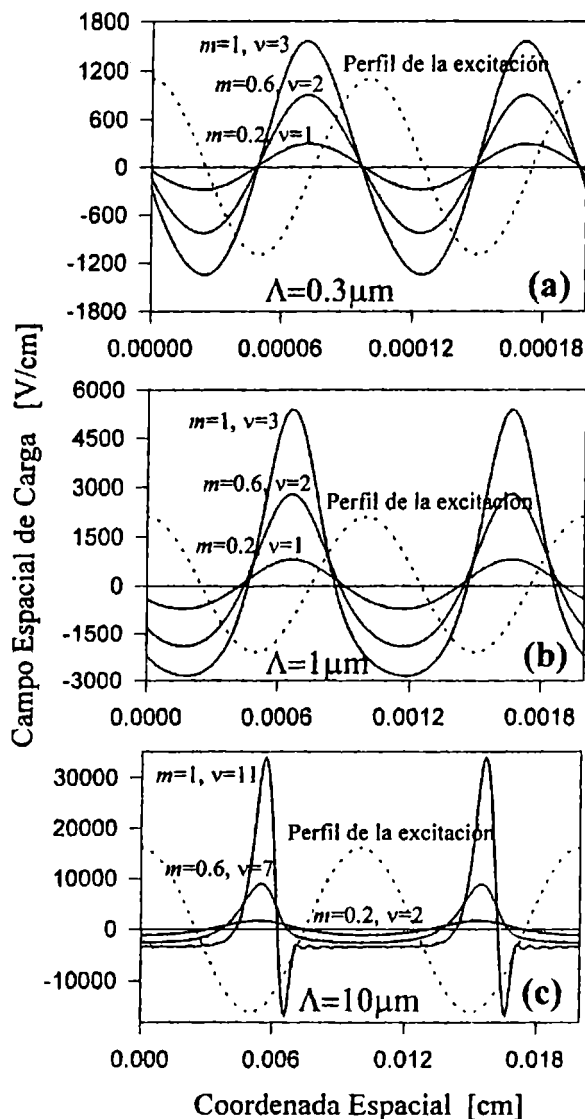


Figura V.6. Perfil del campo espacial de carga  $E_{SC}$  a lo largo de dos períodos de red, con campo externo aplicado de 7 KV/cm en las tres regiones en  $\Lambda$  de interés y para diferentes profundidades de la modulación.

Fue también analizada la distribución espacial del campo fotorrefractivo con campo externo no nulo. Los resultados de las simulaciones<sup>3</sup> se observan en la Figura V.6. Nuevamente, cada gráfica de esta Figura corresponde a las tres regiones en  $\Lambda$ . Es evidente una ruptura de simetría en la distribución espacial del campo fotorrefractivo. La ruptura de

<sup>3</sup>a no ser que se mencione explícitamente lo contrario, los parámetros utilizados en todas las simulaciones corresponden a la Tabla 5.1.

simetría en el perfil de  $E_{SC}$  es consecuencia de que el campo externo define una dirección privilegiada en el transporte de la carga libre por el cristal y el mayor pico se produce en la dirección de mayor flujo de la carga causando, en esa región, una mayor inhomogeneidad de carga y por lo tanto, vía el efecto electroóptico, una mayor intensidad en el campo fotorrefractivo local. Por último, nótese que el número de componentes armónicas necesarias para la convergencia del campo espacial de carga disminuye cuando se aplica un campo eléctrico. Por ejemplo, para  $m = 1$  y  $\Lambda = 10\mu m$ , si  $E_0 = 0$ , entonces  $\nu = 36$  (Fig. V.5. c), pero cuando  $E_0 = 7KV/cm$ , es  $\nu = 11$  (Fig. V.6. c). Es decir, el campo aplicado inhibe la generación de las redes armónicas. Este comportamiento también se verificó para otro conjunto de valores de parámetros del material, como en el caso del  $LiNbO_3$ .

### V.3 En el marco del modelo de trampas superficiales

En la década de los ochenta se comenzaron a obtener diversos resultados experimentales que no podían ser interpretados mediante el modelo de Kukhtarev. Ello indujo a suponer la existencia de procesos adicionales en la generación del efecto fotorrefractivo. Un modelo que adicionaba la existencia de impurezas que generaban niveles energéticos superficiales capaces de acumular carga fotoexcitada desde los niveles profundos<sup>[37],[41],[49]</sup>, logró explicar con éxito los numerosos resultados que permanecían oscuros, como la dependencia sublineal de la fotoconductividad con la intensidad de radiación y otros ya mencionados. El modelo de trampas superficiales es, en la actualidad, muy utilizado en el análisis de una gran cantidad de materiales aisladores y semiconductores.

En esta sección se analizarán los resultados obtenidos para el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas en el marco de tal modelo a partir de las expresiones IV.36.-IV.38.

Se analizará el comportamiento de las componentes del campo fotorrefractivo en términos de la intensidad media de excitación  $I_0$ , el factor de modulación  $m$ , y el espaciado de red  $\Lambda$ , como así también la distribución espacial del campo espacial de carga dentro del cristal, con ó sin campo externo aplicado. Además, como anteriormente se estableció que el comportamiento de las redes armónicas puede cambiar drásticamente con variaciones de la población de trampas superficiales  $N_S$  y con el ritmo de excitación térmica de las mismas  $\beta_S$ , distintos rangos de valores de estos parámetros son tenidos en cuenta en el análisis.

### V.3.1 Dependencia sublineal de los portadores de carga en función de la intensidad de excitación

En las dos últimas décadas quedó ya bien establecido que la redistribución de los electrones libres, inducidos por luz, entre niveles energéticos profundos y superficiales produce el peculiar efecto de que la fotoconductividad crezca sublinealmente al aumentar la intensidad media de la excitación, a partir de cierto valor dentro del rango continuo<sup>[37]</sup>. Adviértase que el comportamiento sublineal también puede producirse a partir del modelo de Kukhtarev, ya que la expresión IV.12. predice una dependencia  $n_0 \propto I_0^{1/2}$ . Sin embargo, tal apartamiento de la función lineal, es consecuencia de la saturación de electrones libres en la banda de conducción ó huecos en la banda de valencia, la cual sólo puede producirse a altas intensidades de excitación,  $I_0 \sim 10^6$ - $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, las que únicamente se consiguen con un esquema de excitación pulsado<sup>[12]</sup>. En régimen continuo, la dependencia de la fotoconductividad con la intensidad media resultó lineal en la mayoría de los casos<sup>[6]</sup>. Sin embargo, en algunos casos, como el ferroeléctrico titanato de bario (BaTiO<sub>3</sub>)<sup>[37],[44],[111]</sup>, la dependencia sublineal de la fotoconductividad se observó para intensidades del continuo ( $10^{-3}$  –  $10$  W/cm<sup>2</sup>). Este hecho indujo a pensar a muchos investigadores que un proceso adicional a la fotogeneración y reatrapamiento de los portadores de carga por centros profundos, estaba ocurriendo durante el efecto fotorrefractivo. Los trabajos de Mahgerefteh y Feinberg<sup>[37]</sup> y Nouchi y col.<sup>[43]</sup> sugieren que las cargas libres, ópticamente excitadas a partir de niveles profundos, pueden quedar acumuladas en las trampas superficiales, lo que produce que el tiempo de recombinación de los portadores de carga en centros donores profundos decrezca notablemente y la fotoconductividad comience a exhibir un incremento sublineal con el aumento la intensidad de la excitación. En simulaciones realizadas en este trabajo, quedó bien establecido que dicha particularidad depende fuertemente de la densidad de impurezas  $N_S$  que generan niveles superficiales, y del ritmo de termoexcitación de tales niveles  $\beta_S$ . La Figura V.7. muestra la densidad de portadores de carga libres  $n_0$ , versus la intensidad de excitación media  $I_0$ , para diferentes valores de  $N_S$  y  $\beta_S$ . Las diferentes curvas corresponden a diferentes valores de estos parámetros que ponen en evidencia los diferentes comportamientos, para parámetros típicos del BSO: la línea llena representa el comportamiento lineal del clásico modelo de Kukhtarev, con fines comparativos, ya que el apartamiento de la función lineal es consecuencia de una mayor influencia de las trampas superficiales en los procesos que tienen lugar.

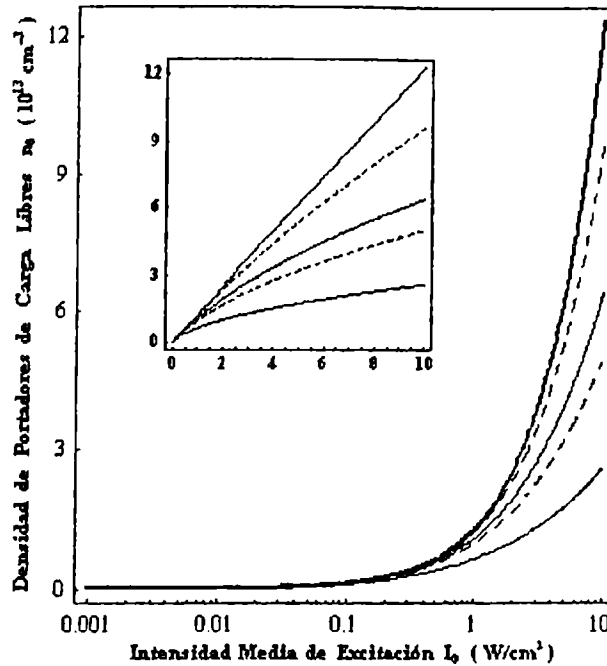


Figura V.7. Dependencia de la densidad de portadores de carga libres en términos de la intensidad media de excitación.

La curva sublineal punteada más cercana a la línea recta representa  $n_0$  para  $\beta_S = 10^4 s^{-1}$  y  $N_S = 5 \times 10^{17} cm^{-3}$ , mientras que la otra curva representa  $n_0$  para  $\beta_S = 10^4 s^{-1}$  y  $N_S = 5 \times 10^{18} cm^{-3}$ . La curva continua entre las curvas punteadas corresponde a valores  $\beta_S = 5 \times 10^4 s^{-1}$  y  $N_S = 5 \times 10^{17} cm^{-3}$  mientras que la restante curva continua, la más sublineal, representa la densidad para  $\beta_S = 5 \times 10^4 s^{-1}$  y  $N_S = 5 \times 10^{18} cm^{-3}$ . Se puede distinguir que el alejamiento de la función lineal comienza a partir de un determinado valor de  $I_0$  y se torna más evidente con el aumento de dicho parámetro. Esto indica que es necesario una apreciable concentración de electrones en la banda de conducción ó de huecos en la banda de valencia, para que se pueda distinguir el proceso de recombinación de la carga libre en las trampas superficiales. Adviértase a partir de la Figura V.7., que la dependencia sublineal es más fuerte a medida que  $\beta_S$  decrece y se incrementa  $N_S$ . Esto se corresponde con que las trampas superficiales actúan como reservorios de la carga fotoexcitada a partir de los centros profundos. Si disminuye el ritmo de la termoexcitación de los centros superficiales, aumenta la cantidad de portadores de carga que permanece

atrapada en dichos centros, debilitando las propiedades fotoconductoras del medio. En efecto, la fotoconductividad crece más lentamente al aumentar  $I_0$  (se hace más sublineal). Se produce un efecto análogo cuando aumenta la densidad de cargas superficiales, aumentando las probabilidades de mayor acumulación de cargas en tales centros. Por el contrario, cuando se incrementa  $\beta_S$  y disminuye  $N_S$ , los portadores de carga tienden al comportamiento lineal dado por el modelo de Kukhtarev. En efecto, un gran ritmo de termoexcitación y/o pequeña población de trampas superficiales produce una baja concentración de carga en las mismas, tal que el efecto producido por las trampas superficiales en el material fotorrefractivo es insignificante, y el medio se comporta acorde al modelo de Kukhtarev.

En lo que sigue, analizaremos el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas que sintetizan el campo espacial de carga teniendo en cuenta estos importantes parámetros concernientes a las trampas superficiales, y especial atención se prestará para valores de los mismos donde su influencia resulta importante en los procesos fotorrefractivos.

### V.3.2 Dependencia con la intensidad, factor de modulación, espaciado de red y campo aplicado

Dentro del régimen lineal,  $m \ll 1$ , existen extensos trabajos teóricos que analizan el comportamiento de la red fotorrefractiva fundamental en el marco del modelo de trampas superficiales. Son los concebidos por el grupo de Mahgerefteh y Tayebati<sup>[41],[49]</sup>, donde se analiza tanto el estado estacionario como transitorio. Sin embargo, no hay evidencia de trabajos que analicen tanto el comportamiento de la red fundamental como sus armónicos dentro de este marco teórico. Por lo tanto, el objetivo de esta sección es el de analizar la dependencia de las redes armónicas relevantes dentro del formalismo del modelo de trampas superficiales, en función de los parámetros fotorrefractivos externos ya mencionados. Las Figuras V.8.-V.11. muestran las amplitudes de las redes fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico en términos de la intensidad media de excitación y el espaciado de la red, para valores altos del espaciado ( $m = 1$ ) y campo externo nulo. Cada Subfigura indica diferentes valores de  $\beta_S$  y  $N_S$ , que fueron elegidos para rangos donde las trampas superficiales producen diferentes comportamientos en las redes armónicas. Las Subfiguras  $a_i$  y  $b_i$  corresponden a  $\beta_S = 10^5 s^{-1}$  y  $10^4 s^{-1}$  respectivamente, con el subíndice  $i$  indicando valores de  $N_S = 5 \times 10^{17} cm^{-3}$  ( $i = 1$ ) y  $5 \times 10^{18} cm^{-3}$  ( $i = 2$ ). El valor de la profundidad de la modulación es  $m = 1$  y  $E_0 = 0$  para todos los casos. Se observan características

peculiares a partir de las Figuras. En primer término, se puede apreciar la existencia de máximos en términos de  $\Lambda$  y la posición de los máximos está corrida hacia valores más grandes del espaciado de la red para los armónicos de orden descendente, igual que en el modelo de Kukhtarev.

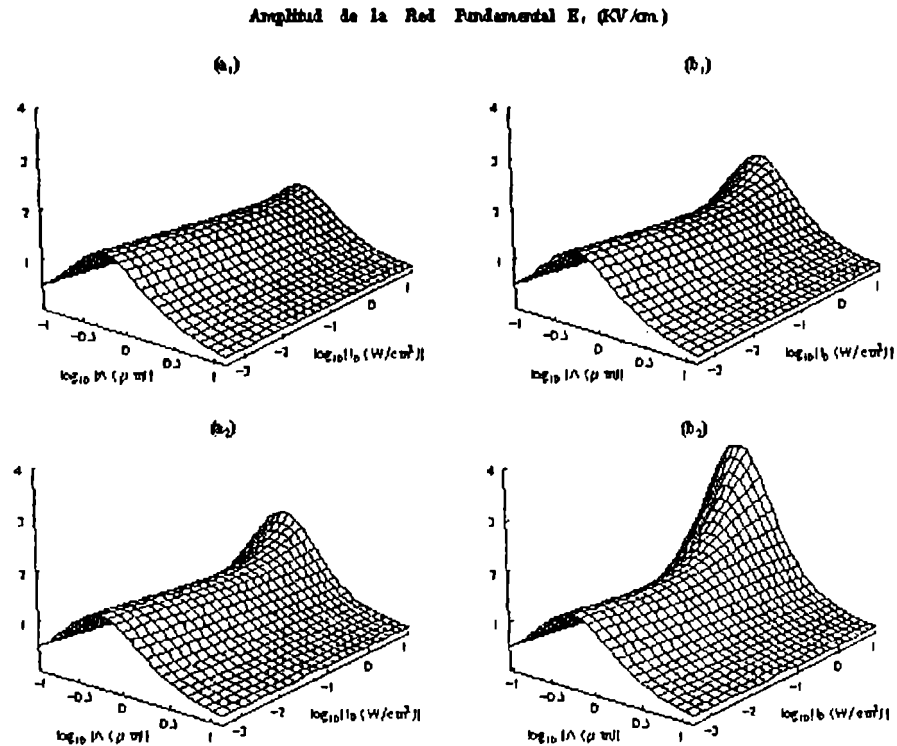


Figura V.8. Superficies que representan la amplitud de la red fundamental en función de la intensidad media de excitación y el espaciado de red dentro del rango experimental comunmente utilizado, para diferentes  $\beta_S$  y  $N_S$ .

Se verificó este comportamiento independientemente de los valores de  $N_S$  y  $\beta_S$ . La existencia de máximos es independiente de la presencia de las trampas superficiales, si bien diferentes valores de  $N_S$  y  $\beta_S$  pueden cambiar su ubicación en  $\Lambda$  como se verá más adelante. El valor de espaciado en el que se producen estos máximos, recordemos, es llamado longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$ . La presencia de estos máximos en el marco del modelo de trampas superficiales, también nos sugiere dividir el rango completo del espaciado en tres regiones: la región de espaciados próximos, menores y mayores que la longitud de

apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  de la red fundamental. En la sección anterior se determinó que modelo de Kukhtarev predecía la independencia de la amplitud de la red fundamental y sus armónicos en términos de la intensidad de excitación.

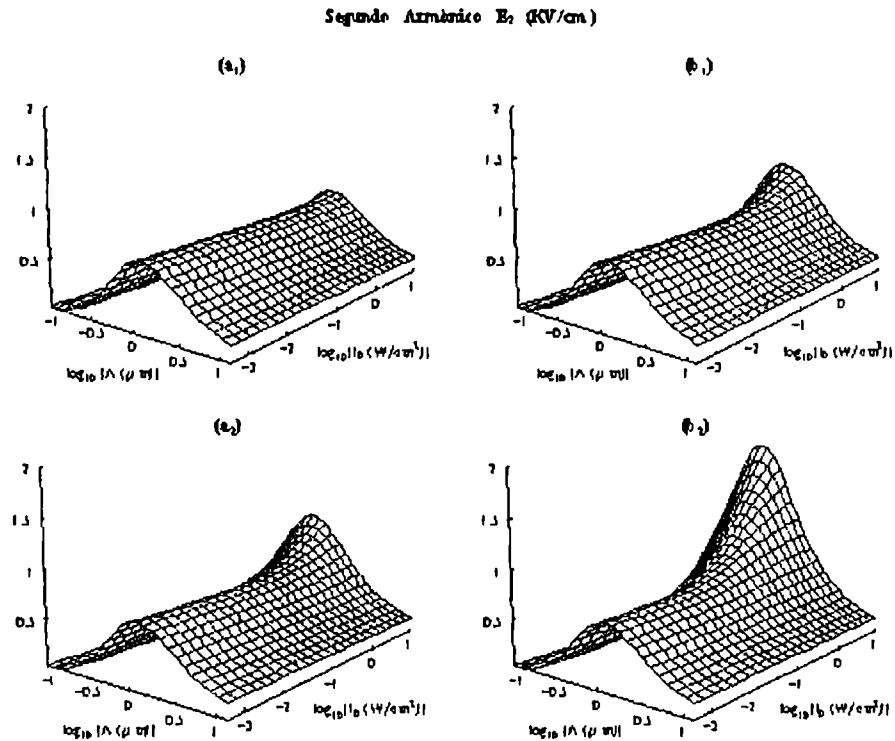


Figura V.9. Superficies que representan a la amplitud de  $E_2$  en función de  $I_0$  y  $\Lambda$ , para los valores de  $\beta_s$ ,  $N_S$  iguales a los de la Fig. V.8.

Sin embargo, en el marco del modelo de trampas superficiales, las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos presentan un comportamiento diferente. En efecto, dichas amplitudes pueden depender de la intensidad media de excitación en el rango de intensidades que corresponden al continuo. Anteriormente, dicha dependencia fue sugerida sólo para la red fundamental en los trabajos de Mahgerefteh y Tayebati<sup>[41],[49]</sup>.

En dichos trabajos un incremento de  $E_1$  con el aumento  $I_0$  fue obtenida, pero a causa de que el análisis se determina para un régimen de pequeña modulación  $m \ll 1$ , nada se menciona de la posible evolución de las amplitudes de las redes armónicas, resultando su comportamiento en el marco de este modelo todavía desconocido hoy en día.



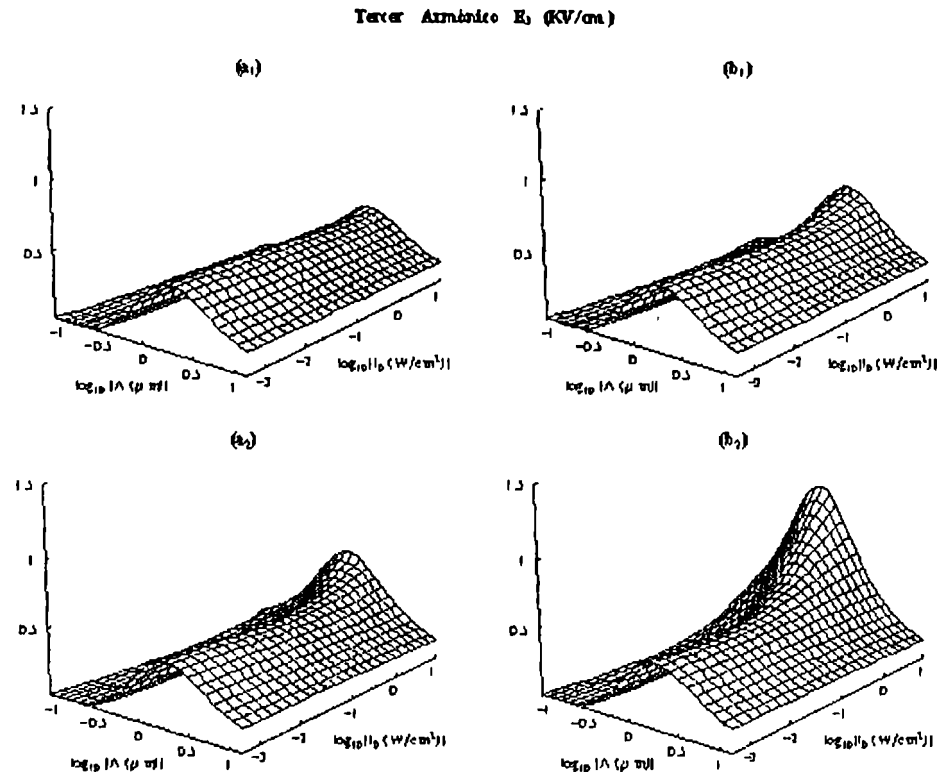


Figura V.10. Superficies que representan la amplitud de  $E_3$  en función de  $I_0$  y  $\Lambda$ , para los valores de  $\beta_s$ ,  $N_S$  iguales a los de la Fig. V.8.

El análisis de las redes armónicas también determinó una dependencia de las amplitudes armónicas con  $I_0$ . En efecto, para baja intensidad de radiación ( $\sim 1W/cm^2$ ), las amplitudes de las redes armónicas son independientes de este parámetro, independientemente de los valores de los parámetros que caracterizan a las trampas superficiales y tienen un comportamiento similar al predicho por el modelo de Kukhtarev, como muestran las Figuras V.8-V.11. Sin embargo, la situación cambia para excitación más intensa ( $> 1W/cm^2$ ). La intensidad de excitación a partir de la cual comienza a observarse un incremento de las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos coincide con los valores de la intensidad a partir de los cuales se produce el comportamiento sublineal en la densidad media de portadores de carga libres (Fig. V.7.), lo que sugiere una fuerte correlación entre ambos fenómenos. Como en el caso de la fotoconductividad sublineal, los valores de la intensidad media a partir de los cuales comienza a observarse un aumento las amplitudes depende de

los valores de los parámetros intrínsecos del material. Por ejemplo, para los ferroeléctricos como el  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , caracterizados por una similar concentración relativa de fuentes y trampas de portadores  $N_D/N_A$  en equilibrio, este peculiar fenómeno comienza a predecirse para intensidades todavía menores.

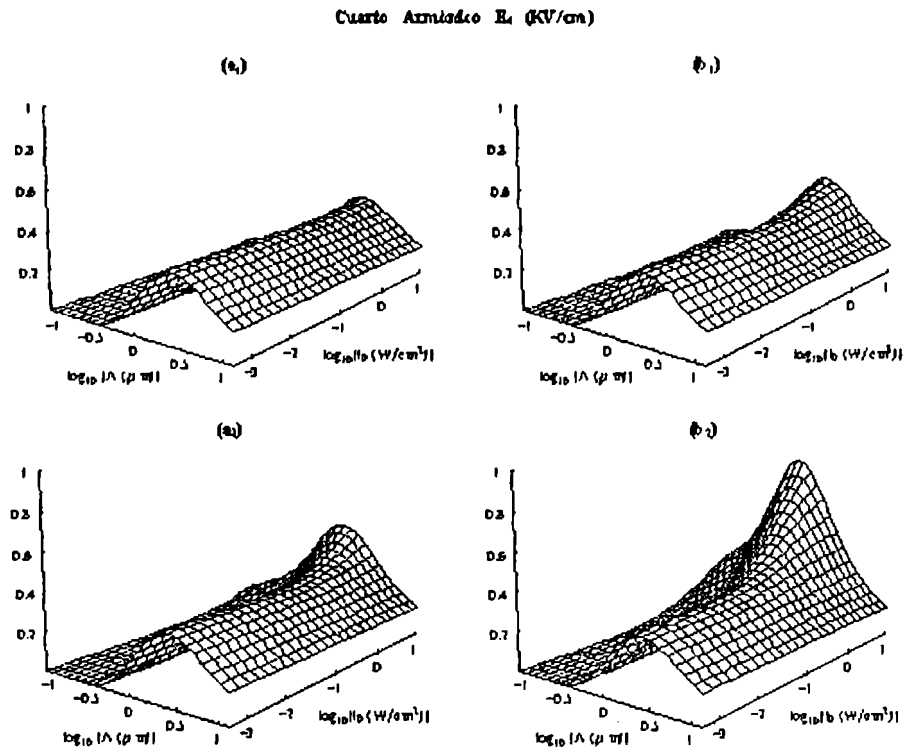


Figura V.11. Superficies que representan la amplitud de  $E_4$  en función de  $I_0$  y  $\Lambda$ , para valores de  $\beta_S$ ,  $N_S$  como en la Fig. V.8.

El análisis en términos de  $I_0$  se realizará para las diferentes regiones del espaciado, y para diferentes rangos de valores de los parámetros superficiales. Las Figuras V.8.-V.11. muestran que en la región  $\Lambda \gg \Lambda_D$ , la red fundamental y sus armónicos no dependen de  $I_0$ , al aumentar la intensidad de la excitación, independientemente de los valores de  $\beta_S$  y  $N_S$ . Es en la región  $\Lambda \approx \Lambda_D$  se produce el mayor aumento de las amplitudes con un incremento de  $I_0$ . Este aumento depende fuertemente del valor de los parámetros  $\beta_S$  y  $N_S$ . Además,  $\Lambda_D$  se desplaza hacia valores más pequeños de  $\Lambda$  cuando se incrementa  $I_0$ , efecto más notable para grandes concentraciones de trampas superficiales y un ritmo pequeño de termoexcitación de las mismas. Esto indica que la longitud de apantallamiento de Debye de

la red fundamental y sus armónicos es función de la intensidad media. Este resultado fue obtenido, pero sólo para la red fundamental  $E_1$ , en las refs. [41], [49]. En la región  $\Lambda \ll \Lambda_D$ , el aumento de la  $\nu$ -ésima red  $E_\nu$  es menor que aquel ocurrido en la región  $\Lambda \approx \Lambda_D$ , con el incremento de  $I_0$ .

Las Figuras V.8.-V.11. también muestran que el aumento de las amplitudes con  $I_0$  depende fuertemente de los valores de  $\beta_S$  y  $N_S$ , en correlación con la dependencia sublineal de la fotoconductividad. Este es otro indicio fuerte de que ambos fenómenos están correlacionados y que son debido a la acumulación de carga en las trampas superficiales. Nótese que pequeñas concentraciones de trampas superficiales en el material fotorrefractivo y un gran ritmo de termoexcitación no permiten una eficiente acumulación de portadores de carga en los centros superficiales, haciendo entonces insignificante este efecto adicional en los procesos fotorrefractivos. La Subfigura  $a_1$  muestra las amplitudes para  $N_S$  relativamente pequeño y  $\beta_S$  grande. El efecto de amplificación de las amplitudes armónicas no aparece, ni siquiera para una intensa fluencia de radiación. Por lo tanto, el efecto de las trampas superficiales en los procesos fotorrefractivos permanece apantallado, teniendo la red fundamental y sus armónicos el comportamiento predicho por el modelo de Kukhtarev. Por el contrario, grandes valores de  $N_S$  y pequeños valores de  $\beta_S$ , como los de la Subfigura  $b_2$ , permiten una eficiente acumulación de carga en las trampas superficiales, tal que el efecto de las mismas se manifiesta muy fuertemente. En efecto, se predice un fuerte aumento de las amplitudes de todas las redes con el aumento de  $I_0$ , efecto no determinado por el modelo de Kukhtarev. Este efecto no lineal adicional, es más notorio con un aumento de la intensidad de excitación, como muestran las Figuras V.8.-V.11. Tal aumento de las amplitudes de las redes fotorrefractivas es consecuencia directa de la retención de carga por parte de las trampas superficiales en el efecto fotorrefractivo. El caso intermedio entre ambos mencionados está ilustrado en las Subfiguras  $a_2$  y  $b_1$ . El efecto de amplificación de las amplitudes armónicas disminuye con el aumento de  $\beta_S$  y la disminución de  $N_S$  y viceversa.

Consideremos ahora el análisis de las redes armónicas en términos del factor de modulación y el espaciado de la red. Dentro de los límites del modelo de Kukhtarev, se estableció que las redes armónicas de orden superior se originan más fuertemente al aumentar simultáneamente el factor de modulación y el espaciado de la red. Lo interesante es saber como influyen las trampas superficiales en este comportamiento. Los resultados más trascendentes, a partir de las ecuaciones IV.36.-IV.38. se manifiestan en las Figuras V.12.-

V.15., donde las amplitudes de las redes fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico están dadas en función de  $\Lambda$  y  $m$ . Las Subfiguras  $a_i$  y  $b_i$  de las Figuras V.12.-V.15. representan las amplitudes a diferentes intensidades que introducen cambios significativos en su comportamiento, como fue mostrado en las Figs. V.8.-V.11:  $a_i$  indica una intensidad baja ( $0.08W/cm^2$ ) y  $b_i$  dos órdenes de magnitud más ( $8W/cm^2$ ). El subíndice  $i$  indica diferentes valores de los parámetros de las trampas superficiales, que permiten diferentes acumulaciones de carga en los mismo y por lo tanto pueden alterar la dinámica del efecto fotorrefractivo. El subíndice  $i = 1$  indica  $N_S = 5 \times 10^{17}cm^{-3}$  y  $\beta_S = 5 \times 10^4s^{-1}$ , y el subíndice  $i = 2$  indica  $N_S = 5 \times 10^{18}cm^{-3}$  y  $\beta_S = 10^4s^{-1}$ . Hemos realizado las simulaciones sin la presencia de un campo aplicado  $E_0$ .

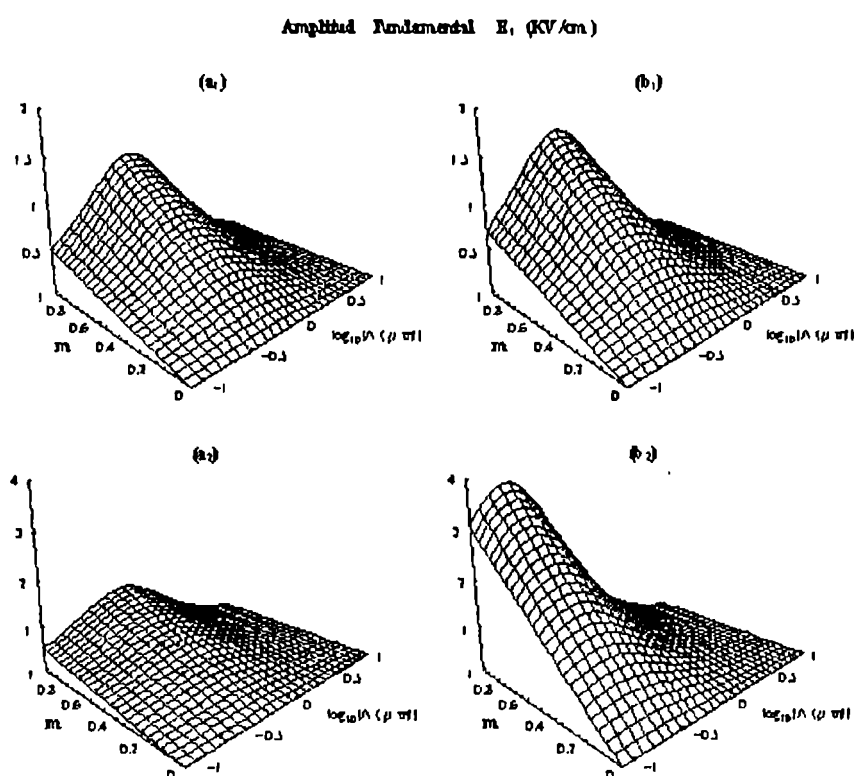


Figura V.12. Superficies que representan la amplitud de  $E_1$  en función de  $\Lambda$  y  $m$ , para diferentes valores de  $I_0$ ,  $N_S$  y  $\beta_S$ .

Las Subfiguras  $a_1$  y  $b_1$  indican que la influencia de las trampas superficiales es imperceptible en la dinámica de efecto fotorrefractivo para materiales con población despreciable de impurezas superficiales y/o veloz ritmo de excitación térmica ya que las superficies

$E_\nu$  son idénticas a las obtenidas en el marco del modelo de Kukhtarev, independientemente de los valores de  $I_0$ . Pero, a medida que  $N_S$  se incrementa y disminuye  $\beta_S$ , tal que la influencia de dichas impurezas comienza a ser importante en el proceso de acumulación de carga, se observa un comportamiento distinto de  $E_\nu$  para valores extremos de  $I_0$  como puede verse en las subfiguras  $a_2$  y  $b_2$ . En efecto, para intensidad de excitación alta, la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  se desplaza hacia valores más pequeños del espaciado de la red  $\Lambda$  y las amplitudes aumentan alrededor de estos valores.

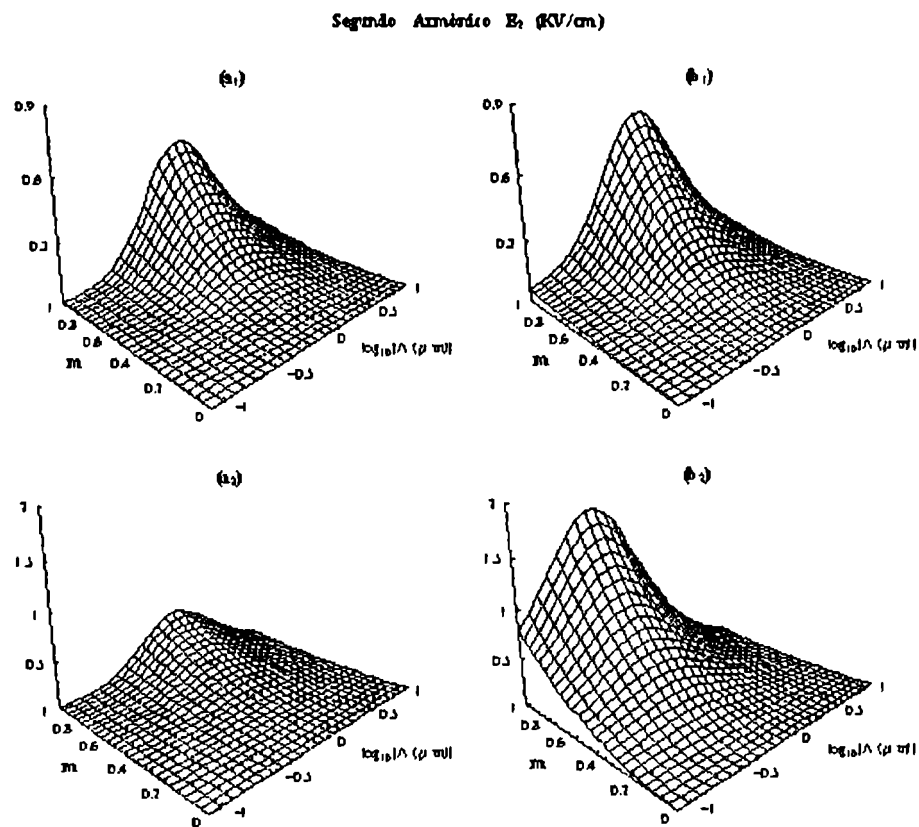


Figura V.13. Superficies que representan la amplitud de  $E_2$  en función de  $\Lambda$  y  $m$ , para diferentes valores de  $I_0$ ,  $N_S$  y  $\beta_S$ .

Para una población elevada de trampas superficiales y un ritmo lento de excitación térmica, la acumulación de carga es muy eficiente y la influencia de las trampas superficiales aumenta en la dinámica del efecto fotorrefractivo. Las superficies  $E_\nu$  cambian notablemente de las correspondientes a modelo de Kukhtarev. Este cambio está condicionado a los valores

de  $I_0$ . En las Subfiguras  $a_2$  y  $b_2$  se muestran las superficies  $E_\nu$  para valores de  $\beta_S$  y  $N_S$  que permiten una acumulación eficiente de carga en las mismas pero para intensidades separadas en dos órdenes de magnitud. Para pequeñas intensidad de excitación no se generan suficientes portadores de carga libre en la banda de conducción ó de valencia tal que a pesar de ser eficientes, la pequeña concentración de portadores de carga libres limita la acumulación de carga en las trampas superficiales. Por ello, el efecto de dichas trampas sobre los procesos fotorrefractivos sigue estando apantallado haciendo similar al comportamiento de la red fundamental y sus armónicos al obtenido en el marco del modelo de Kukhtarev.

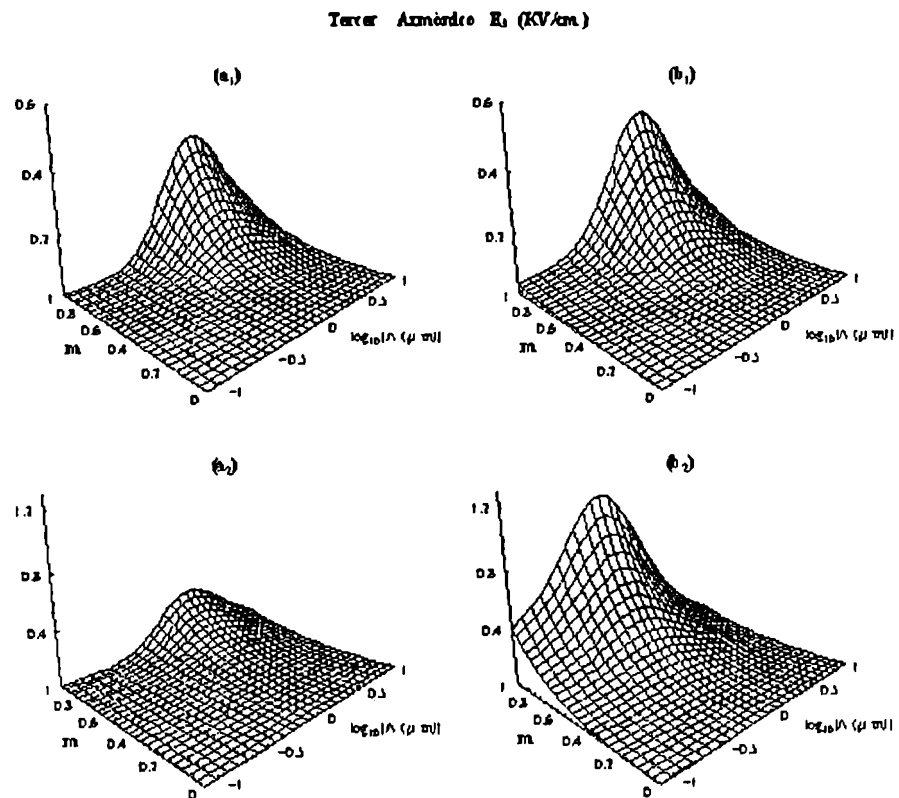


Figura V.14. Superficies que representan la amplitud de  $E_3$  en función de  $\Lambda$  y  $m$ , para diferentes valores de  $I_0$ ,  $N_S$  y  $\beta_S$ .

Por el contrario, para excitaciones intensas, la influencia de las trampas superficiales en el efecto fotorrefractivo es importante ya que la alta densidad de portadores libres fotogenerados permite la fuerte acumulación de carga en las trampas superficiales y agudiza

la inhomogeneidad en la distribución de cargas, lo amplifica el campo espacial de carga y por lo tanto, las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos superiores como puede observarse en las Subfiguras  $b_2$ . Además, en tales Subfiguras, se observa que los valores de  $\Lambda_D$  se desplazan hacia valores más pequeños del espaciado a medida que se incrementa  $I_0$  tal que, el mayor aumento de las amplitudes se produce alrededor del respectivo valor de  $\Lambda_D$ . Si analizamos comparativamente las redes armónicas, resulta evidente que la posición de los máximos de las amplitudes de la red de orden  $\nu + 1$  se encuentran corridos hacia valores más grandes del espaciado con respecto de la red de orden  $\nu$  para idénticos valores de  $I_0$ ,  $N_S$ , y  $\beta_S$ , (cualquier Subfigura de las Figs. V.12.-V.15.).

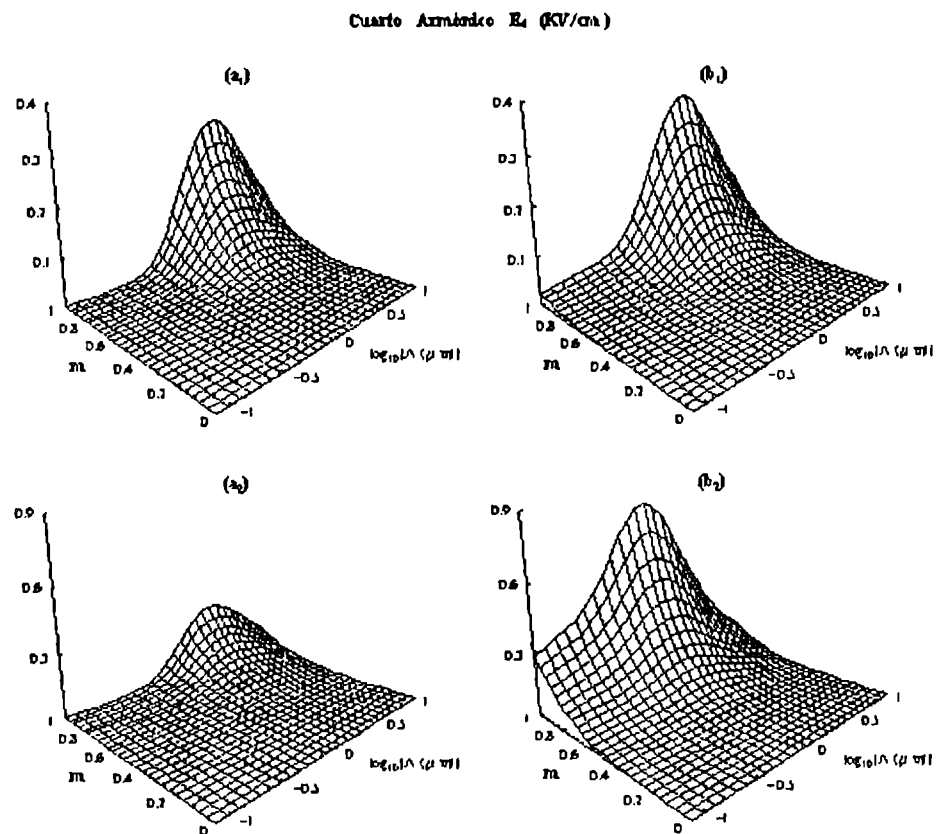


Figura V.15. Superficies que representan la amplitud de  $E_4$  en función de  $\Lambda$  y  $m$ , para diferentes valores de  $I_0$ ,  $N_S$  y  $\beta_S$ .

Esto indica que la influencia de las redes de orden  $\nu$  crece, al igual que en el modelo de Kukhtarev, hacia las regiones de espaciados más grandes y por lo tanto la acumulación de

carga en las trampas superficiales no altera este comportamiento. Las Figuras V.12-V.15. muestran también la dependencia de las amplitudes en función del otro parámetro externo responsable de la respuesta lineal y no lineal del medio: el factor de modulación  $m$ . Es importante recordar que las redes armónicas de orden superior y por lo tanto la respuesta no lineal en los materiales fotorrefractivos se produce para elevadas profundidades de la modulación<sup>[16],[20]</sup>. La dependencia lineal de la amplitud de la red fundamental en función del factor  $m$  para valores arbitrarios del factor de modulación, espaciado de red, intensidad media de excitación y los parámetros de las trampas superficiales se visualiza en la Figura V.12. También, la dependencia cuadrática de la amplitud del segundo armónico, la cúbica para el tercer y la cuadrática para el cuarto armónico se pueden observar en las Figuras V.13.-V.15. Este peculiar comportamiento de las redes, es similar al predicho por el modelo de Kukhtarev dado por la expresión V.1.

Para finalizar el análisis en términos de  $\Lambda$  y  $m$ , se muestra en la Figura V.16, las amplitudes de los tres primeros armónicos normalizadas a la amplitud fundamental,  $E_\nu/E_1$  ( $\nu = 2, 3, 4$ ) para identificar la región ( $\Lambda, m$ ) donde el medio puede experimentar una fuerte respuesta no lineal, a través de la generación de las redes armónicas. Las distintas Subfiguras  $a_i, b_i, c_i$  fueron graficadas para intensidad pequeña ( $i = 1$ ) y alta ( $i = 2$ ) cuyo valores corresponden a las Figuras V.12.-V.15. Con el propósito de maximizar la influencia de los niveles superficiales en la generación de las redes fotorrefractivas, los cálculos se realizaron suponiendo una elevada concentración de impurezas superficiales y un ritmo lento de termoexcitación de las mismas. Los valores utilizados son  $N_S = 5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$  y  $\beta_S = 10^5 \text{s}^{-1}$ . Se verificó que para bajas intensidades de excitación (Subfiguras  $a_1, b_1, c_1$ ), las relaciones  $E_\nu/E$  son similares a las obtenidas para el modelo de Kukhtarev, independientemente de los valores de  $N_S$  y  $\beta_S$ . También se observa que en la región lineal<sup>[8]</sup>,  $m \ll 1$ , e independiente de  $\Lambda$ , las amplitudes de las redes armónicas son despreciables frente a la amplitud de la red fundamental para valores arbitrarios de  $I_0, N_S$  y  $\beta_S$ . Las no linealidades no aparecen en esta región, en concordancia con los resultados experimentales.

En la Figura V.16. también se distinguen las regiones, en términos de  $\Lambda$ , donde cambia la respuesta del material. Se aplica para el modelo de trampas superficiales el mismo análisis que en el marco del modelo de Kukhtarev para las diferentes regiones. En la región lineal no están presentes las amplitudes de las redes armónicas y corresponde a  $\Lambda \ll \Lambda_D$ . Aún para una modulación apreciable, únicamente la red fundamental contribuye al campo espacial de carga. La región de transición se ubica para valores más altos del espaciado,



donde las amplitud relativas de los armónicos crece fuertemente con el aumento de  $\Lambda$ . En esta región, tales amplitudes dependen fuertemente de ambos parámetros:  $\Lambda$  y  $m$ . Por último, la región no lineal esta corrida hacia la región de grandes espaciados de la red. La amplitud de la red fundamental y de sus armónicos satura con el aumento de  $\Lambda$ . Esta es la región donde las redes armónicas de orden superior tiene una fuerte influencia.

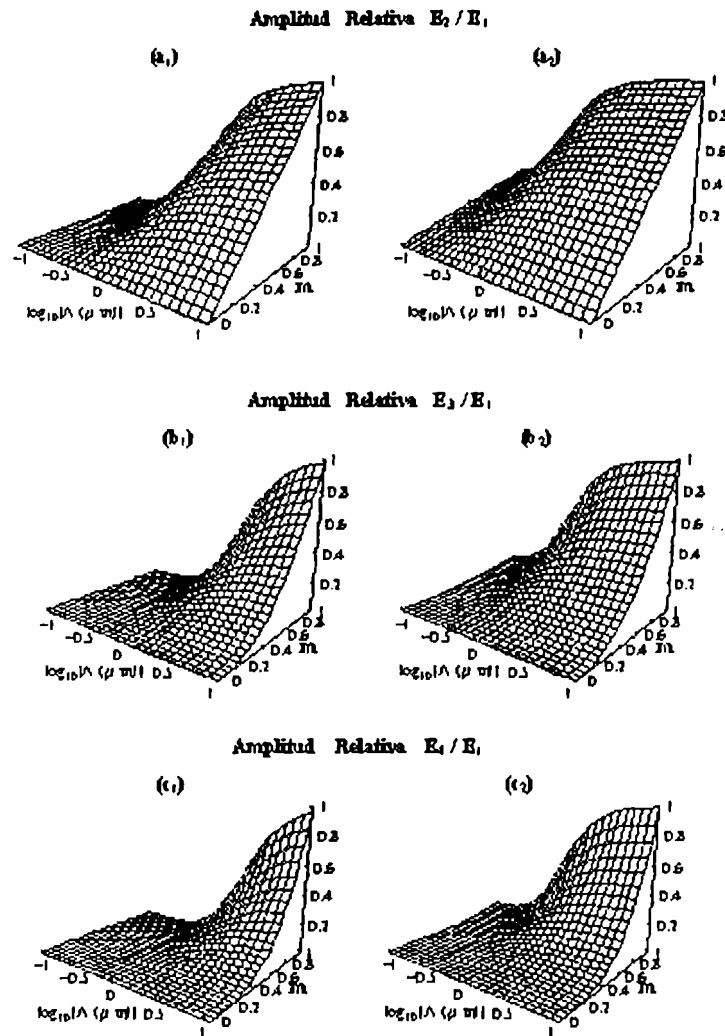


Figura V.16. Dependencia de la razón de la amplitud del segundo ( $a_i$ ), tercer ( $b_i$ ) y cuarto armónico ( $c_i$ ) con respecto a la amplitud de la red fundamental, sin campo externo.

Nótese también que para valores de  $m$  cercanos a uno, las amplitudes de las tres redes armónicas superiores alcanzan a la amplitud de la red fundamental. En esta región, la respuesta no lineal es fuerte aún para valores no muy grandes de la modulación. Este comportamiento es interpretado, observando que los máximos de las amplitudes de los sucesivos armónicos de orden superior se corren hacia mayores valores del espaciado, como se representa en las Figuras V.8.–V.15.

La diferencia sustancial introducida por la presencia de trampas superficiales, es que la extensión de cada una de estas tres regiones en  $\Lambda$ , depende fuertemente de la densidad de las mismas, de la intensidad de excitación y de su ritmo de termoexcitación. Esto se puede dilucidar a partir de la Figura V.16. En efecto, la amplitud relativa de las redes armónicas  $E_\nu/E_1$  no difiere de las obtenidas en el marco del modelo de Kukhtarev para excitación poco intensa, independientemente del valor de la población de trampas superficiales y su velocidad de excitación térmica (Subfiguras  $a_1, b_1, c_1$ ). Pero para intensidad alta, la región no lineal se ensancha notablemente hacia la dirección de valores más bajos del espaciado  $\Lambda$ . La extensión de esta región dependerá críticamente de  $N_S$  y  $\beta_S$ . Para valores que hacen despreciable el efecto de dichas trampas, esto es rápido ritmo de termoexcitación y pequeña concentración de impurezas superficiales, las superficies  $E_\nu/E_1$  son a las dadas por el modelo de Kukhtarev, aún para una alta intensidad media de excitación. Pero, para valores tales que la acumulación de portadores de carga en los niveles superficiales es trasendente, la región no lineal se extiende notablemente hacia espaciados de red bajos para altos valores de  $I_0$  dominando una parte mayoritaria de la región experimental usual del espaciado. En las Subfiguras  $a_2, b_2$  y  $c_2$ , se muestra este comportamiento. También el peso significativo de las amplitudes armónicas se produce en la dirección diagonal de la región  $(\Lambda, m)$ . Es evidente que el intervalo donde el armónico  $\nu$  contribuye, se reduce a medida que aumenta el orden del armónico  $\nu$  concentrándose hacia valores altos de los mismos.

Por lo tanto, el modelo de trampas superficiales predice que los regímenes lineal y no lineal dependen fuertemente no sólo de  $\Lambda$  y  $m$ , sino también de  $I_0, \beta_S$  y  $N_S$ . Esto indica que la densidad de portadores libres en el material y la separación energética de las mismas de la respectiva banda de conducción ó valencia es relevante a la hora de evaluar la respuesta lineal y no lineal del medio, haciendo que las trampas superficiales puedan tener un rol no despreciable en el efecto fotorrefractivo.

Por otro lado, también se analizó el comportamiento de la red fotorrefractiva fundamental sus armónicos al aplicar un campo externo, en la dirección  $x$  del cristal. La

Figura V.17. muestra la dependencia de las amplitudes de las redes fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico en función del campo aplicado para  $m = 1$ , con cada fila de Subfiguras correspondientes a las diferentes regiones en términos de  $\Lambda$  y cada columna correspondiente a intensidades extremas de excitación con valores idénticos a los de las figuras anteriores. Las Subfiguras  $a_i$ ,  $b_i$  and  $c_i$  corresponden a valores del espaciado propio de las regiones lineal, de transición y no lineal:  $\Lambda = 0.1\mu m$ ,  $\Lambda = 1\mu m$  y  $\Lambda = 10\mu m$  respectivamente.

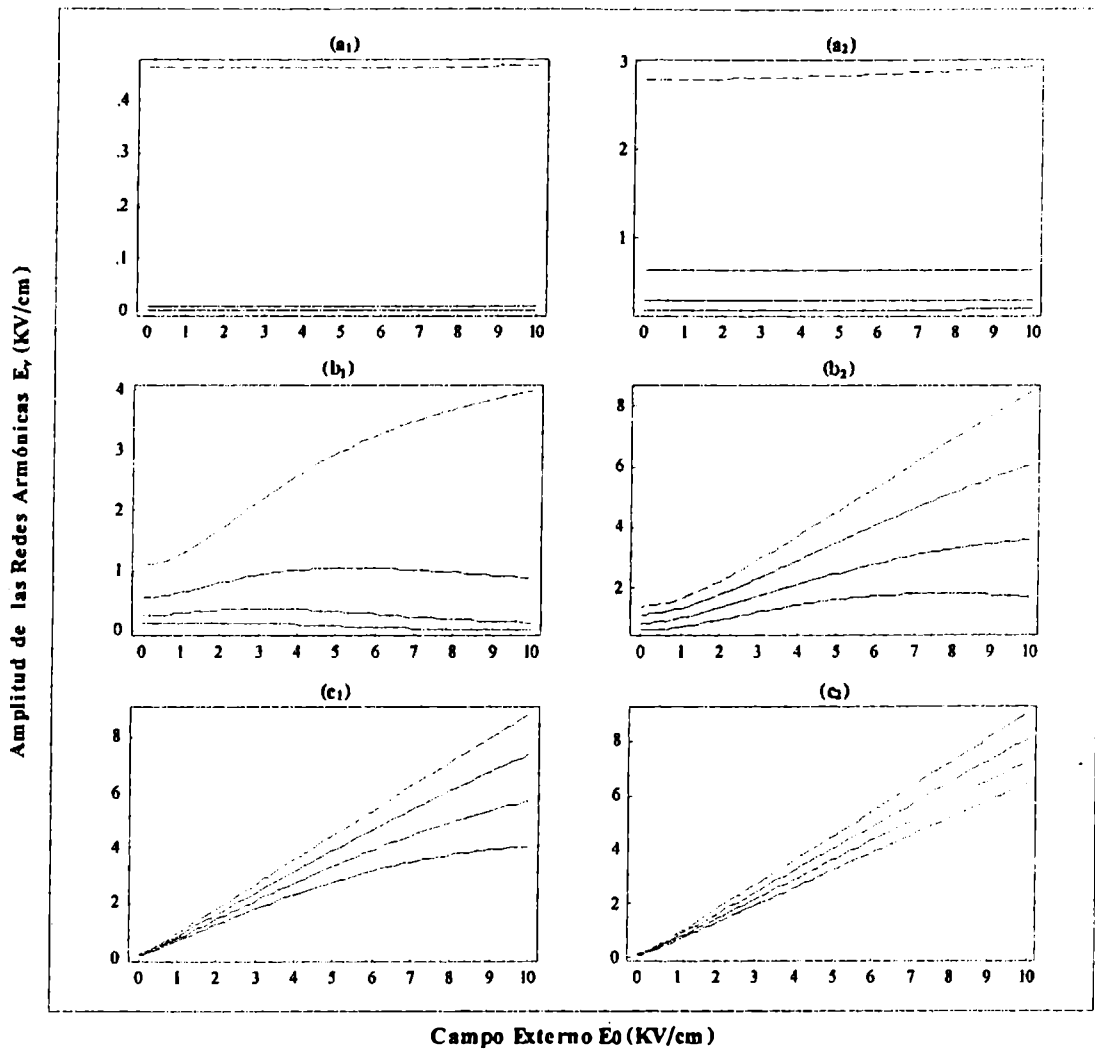


Figura V.17. Amplitudes de las redes fundamental y tres primeros armónicos de orden superior en términos del campo externo aplicado. La línea punteada representa la amplitud de la red fundamental y las siguientes líneas continuas, las amplitudes del segundo, tercer y cuarto armónico respectivamente.

Los valores de  $\beta_S$  y  $N_S$  también se corresponden con los de la figura anterior. La profundidad de modulación fue simulada  $m = 1$  en todos los casos. En similitud con el modelo de Kukhtarev, en la región  $\Lambda \ll \Lambda_D$  (Subfiguras  $a_1, a_2$ ), el campo aplicado no influye en las amplitudes de las redes armónicas independientemente del valor de  $I_0$ , siendo significativa sólo la contribución de la amplitud fundamental al campo espacial de carga. La importancia de los armónicos aumenta con el incremento de  $E_0$ : la Subfigura  $a_2$  muestra que la amplitud del segundo armónico es más significativa en relación a la Subfigura  $a_1$ . La región  $\Lambda \approx \Lambda_D$  se muestra en las Subfiguras  $b_1, b_2$ . Nótese que para un incremento de  $E_0$ , la red fundamental crece sublinealmente y con mayor derivada que las amplitudes de las redes armónicas para intensidad de excitación pequeña como muestra la Subfigura  $b_1$ . En este caso, la contribución de las redes armónicas al campo espacial de carga son pequeñas frente a la contribución de la red fundamental. En cambio para excitación intensa (Subfigura  $b_2$ ), la influencia de las redes armónicas aumenta a medida que  $E_0$  se incrementa y el comportamiento de la red fundamental es prácticamente lineal para altos valores del campo aplicado. Por último, para  $\Lambda \gg \Lambda_D$  (Subfiguras  $c_1, c_2$ ) todas las componentes se incrementan con el aumento del campo aplicado. Sin embargo, para campo aplicado intenso pero baja intensidad de radiación, es evidente el comportamiento sublineal de las amplitudes armónicas frente al comportamiento lineal de la amplitud fundamental. Esto puede distinguirse en la Figura V.17.  $c_1$ . Por el contrario, todos los armónicos exhiben una dependencia lineal en función de  $E_0$  como muestra la Subfigura  $c_2$  para radiación intensa. Ambas Subfiguras muestran que la amplitud de la red fundamental se incrementa con mayor intensidad que la amplitud de sus armónicos con el aumento de  $E_0$ . Entonces, la respuesta no lineal del medio fotorrefractivo es más evidente para pequeños valores de  $E_0$ .

### V.3.3 Distribución espacial del campo fotorrefractivo

En el trabajo pionero de Alphonse y col.<sup>[102]</sup> y otros posteriores<sup>[16],[29]–[30]</sup> se asocio la respuesta no lineal del material con la pérdida sinusoidal del perfil del campo espacial de carga. En esta sección analizaremos la distribución espacial precisa del campo espacial de carga dentro del volumen del cristal en el marco del modelo de trampas superficiales, a partir de las expresiones IV.36.-IV.38, para las amplitudes y fases de la red fundamental y sus armónicos. El criterio de convergencia de la suma de Fourier al valor de  $E_{SC}$  es el utilizado para el modelo de Kukhtarev: la serie de Fourier se trunca en el

$\nu$ -ésimo término y se dice convergente al campo fotorrefractivo, cuando el valor de la suma de Fourier truncada en el término  $\nu + 1$  no supera en  $2 \times 10^{-2}$  ( un 5% ) al valor de la suma truncada en el término  $\nu$  para cualquier valor de la coordenada espacial  $x$ .

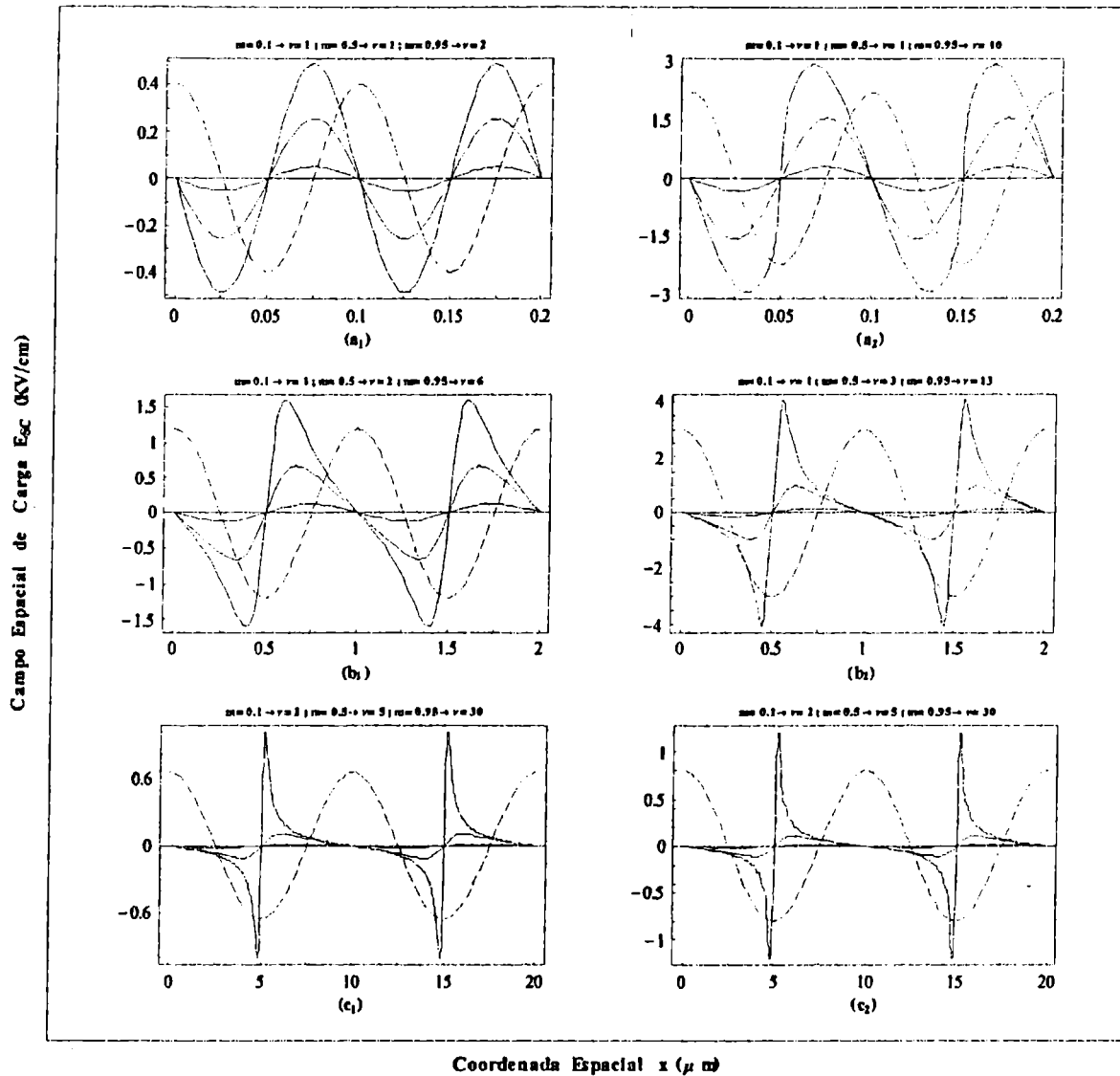


Figura V.18. Perfil de  $E_{sc}$  a lo largo de dos períodos de red con campo externo nulo. La línea punteada simboliza el perfil del patrón de excitación. Las curvas llenas en cada Subfigura representan el perfil para:  $m = 0.95$ ,  $m = 0.5$  y  $m = 0.1$ . El número  $\nu$  indica la cantidad de componentes de la expansión de Fourier necesarios para la convergencia del campo fotorrefractivo para cada valor de  $m$ .

En la Figura V.18. se muestra el perfil del campo espacial de carga para dos períodos de red y para diferentes valores del factor de modulación, en las tres regiones en términos de  $\Lambda$ . Para remarcar las diferencias entre los modelos de Kukhtarev y trampas superficiales, los perfiles fueron simulados para valores extremos de la intensidad de radiación, y para materiales con participación importante de impurezas superficiales en la dinámica de los procesos fotorrefractivos. Los valores de cada Subfigura  $a_i$ ,  $b_i$  y  $c_i$  se corresponden con los de las Figuras V.16.-V.17. En la región lineal y para baja intensidad de excitación (Subfigura  $a_1$ ), el perfil de  $E_{SC}$  permanece sinusoidal, por lo que la contribución de los armónicos es despreciable. Sólo la componente fundamental  $\nu = 1$  contribuye, aún para alta modulación. Esto está en acuerdo con los resultados experimentales. También se pone de manifiesto otro resultado clásico de régimen lineal: un corrimiento de fase en  $\pi/2$  entre la red de índice y el patrón interferométrico. Al aumentar  $I_0$ , y maximizar la influencia de las trampas superficiales en la dinámica fotorrefractiva, se produce una leve pérdida de sinusoidalidad en el perfil espacial del campo, más evidente para altos valores de  $m$ , lo cual indica la contribución del segundo armónico. En la región de transición, donde la contribución de las redes armónicas se incrementa notablemente con el aumento del período de red, el perfil del campo se aparta de la forma sinusoidal para altos valores de  $m$ , como puede apreciarse en las Subfiguras  $b_1$  y  $b_2$ . Se distingue que los máximos del campo espacial de carga e intensidad de excitación interferométrica nula no se producen en la misma región espacial. Un mayor apartamiento de ambos está directamente relacionada con la participación de las redes armónicas en los procesos fotorrefractivos. Comparando las Subfiguras  $b_1$  y  $b_2$ , se puede distinguir que la respuesta no lineal del medio identificado con un mayor apartamiento de la forma sinusoidal del campo fotorrefractivo aumenta a medida que se la excitación se intensifica. Por último, para la región en  $\Lambda$  donde el medio experimenta una fuerte respuesta no lineal, y en coincidencia con el modelo de Kukhtarev, el número de componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga es grande y se pierde completamente forma sinusoidal del perfil como puede observarse en las Subfiguras  $c_1$  y  $c_2$ , independiente valor de  $I_0$ . La intensidad del campo fotorrefractivo es grande en regiones espaciales pequeñas tal que se manifiesta un pico en la distribución del campo espacial de carga. La amplitud del pico depende de la intensidad de excitación, siendo más intensa para mayor intensidad, como era de esperar. Esto indica una alta concentración de carga en una región espacial reducida. Para finalizar, se verificó que una reducción de la concentración de impurezas superficiales y/o un incremento en ritmo de excitación térmica conduce a un

comportamiento similar al obtenido en el marco del modelo de Kukhtarev, representado por las Subfiguras  $a_1$ ,  $b_1$ ,  $c_1$ .

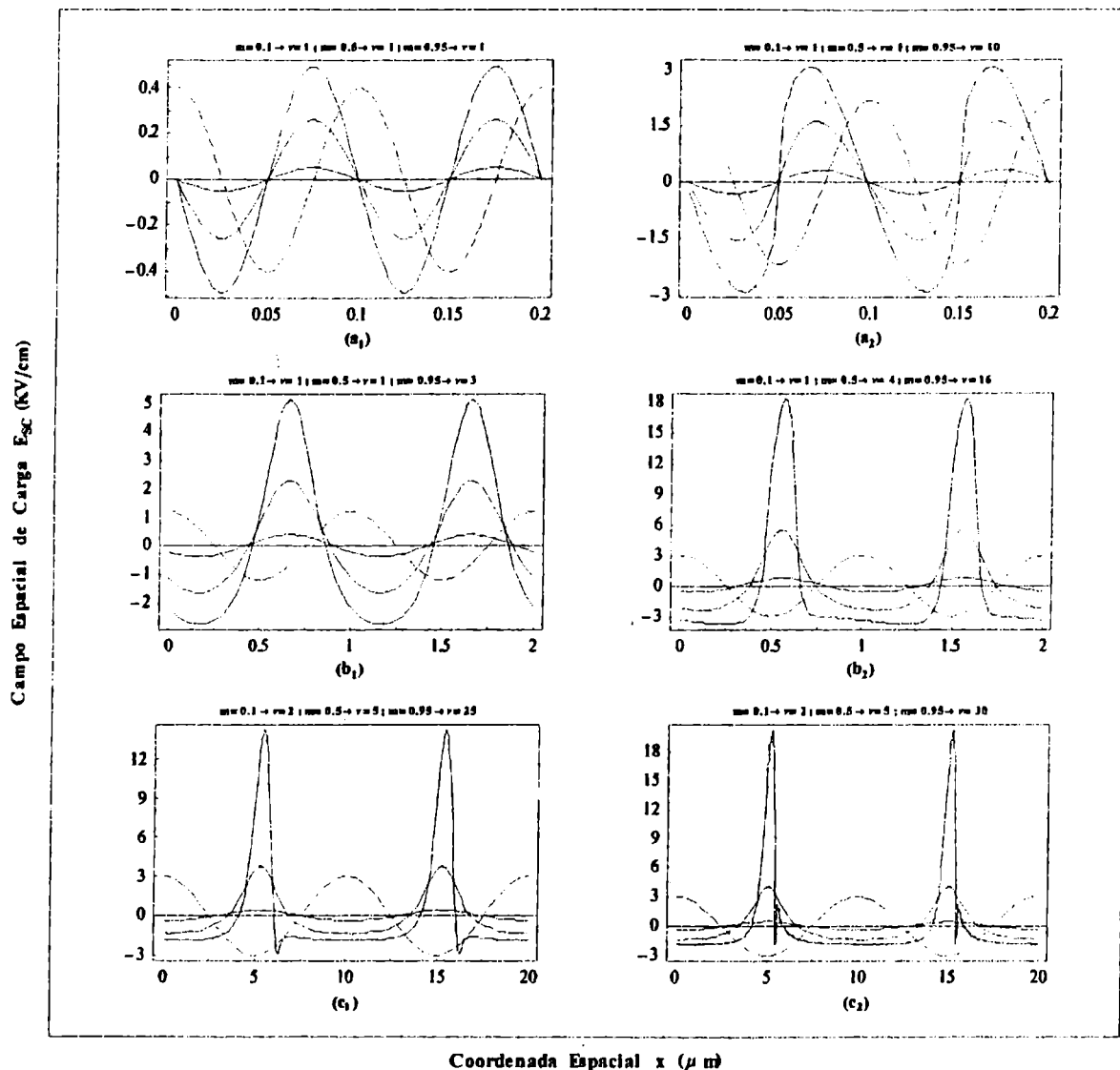


Figura V.19. Perfil del campo espacial de carga a lo largo de dos períodos de red con un campo externo aplicado de 5 KV/cm. Todos los demás parámetros corresponden a los dados en la Fig. V.18.

Por otro parte en la Figura V.19., se analizó la distribución espacial del campo fotorrefractivo en presencia de un campo eléctrico externo. Los valores de los parámetros

corresponden a los de la Figura V.18. con un campo aplicado de 5 KV/cm. Es evidente la ruptura de simetría de la distribución espacial del campo alrededor del punto donde  $E_{SC} = 0$ . Dicho punto cambia de ubicación con la variación de la profundidad de modulación a diferencia de lo ocurrido sin la aplicación de un campo externo. La diferencia de intensidades en los picos positivos y negativos de  $E_{SC}$ , está relacionado con una distribución espacial no simétrica de la carga en presencia de un campo externo que introduce una dirección privilegiada en el transporte de la misma. Nótese que para una gran profundidad de modulación, el número de componentes armónicos necesarios para la convergencia del campo espacial de carga disminuye en presencia de campo eléctrico aplicado. Por lo tanto, el campo externo tiende a inhibir la generación de las redes armónicas en concordancia con la evidencia experimental. Por otra parte, la contribución de los armónicos al campo fotorrefractivo se incrementa con el aumento de la intensidad de excitación. Por ejemplo, si  $E_0 = 0$ , entonces  $\nu = 6$  (Subfig. V.18.  $b_1$ ), pero  $E_0 = 5KV/cm$ ,  $\nu = 3$  (Subfig. V.19.  $b_1$ ) para  $m = 0.95$ ,  $\Lambda = 1\mu m$  y  $I_0 = 0.08W/cm^2$ . En cambio para  $I_0 = 8W/cm^2$  y  $E_0 = 0$ , produce la convergencia en  $\nu = 13$  (Subfig. V.19.  $b_2$ ), pero si  $E_0 = 5KV/cm$ ,  $\nu = 16$  (Subfig. V.19.  $b_2$ ). También, un mayor número de armónicos resulta para intensidades altas, y valores intermedios y pequeños del espaciado de red. Esto puede distinguirse en las Subfiguras V.18.-V.19.  $a_2$ ,  $b_2$ . Sin embargo, para valores crecientes del espaciado, se tiene una contribución similar para intensidad de excitación altas y bajas (Subfiguras V.18.-V.19.  $c_1$ ,  $c_2$ ). Por lo tanto, si se busca almacenar una mayor cantidad de redes armónicas, es necesario no sólo aumentar  $\Lambda$  y  $m$ , sino también debe incrementarse  $I_0$ , y por lo tanto la densidad de portadores de carga libres en el material.

#### V.4 En el marco de modelos con transporte bipolar de carga

En esta sección se discutirán los resultados obtenidos a partir de las expresiones IV.59.-IV.61. para el campo complejo  $\mathcal{E}_\nu$  en el marco del modelo de transporte de carga electrón-hueco, con niveles producidos por dos especies de impurezas fotoactivas, aceptoras y donoras. Se hará un análisis de la respuesta lineal y no lineal del medio fotorrefractivo y se comparará con los resultados obtenidos para el modelo de Kukhtarev y el de trampas superficiales. Nuevamente, el análisis se basó en términos de la intensidad media de excitación, espaciado de la red, factor de modulación y campo eléctrico aplicado, en el rango experimental usual.



### V.4.1 Dependencia de las redes armónicas con los principales parámetros externos

Prácticamente no existe información sobre el análisis de la respuesta no lineal del medio por el uso de modelos de transporte de carga electrón-hueco. Un solitario trabajo, concebido por Boutsikaris y col.<sup>[70]</sup>, analiza el comportamiento de la red fundamental y segundo armónico mediante un análisis perturbativo. En este trabajo, se utiliza un desarrollo de Fourier hasta segundo orden con el fin de encontrar el comportamiento de la amplitud del segundo armónico y su relación con el fundamental para un modelo de transporte bipolar de carga originadas a partir de impurezas fotoactivas que originan un único nivel de energía profundo dentro del gap. Desafortunadamente, el análisis aproximado hace que los resultados se reduzcan a casos particulares de aplicabilidad restringida. Por ello, nuestro análisis basado en soluciones analíticas exactas, por primera vez permite estudiar materiales fotorrefractivos que presentan un mecanismo de conducción bipolar en todo el rango experimental usual. El análisis se hará en el marco del un modelo que postula la existencia de centros fotoactivos profundos que generan un nivel donador efectivo responsable de la fotogeneración y recombinación de electrones libres y un nivel efectivo aceptor para huecos que yacen a distancias similares de la respectiva banda. Esta disposición fue observada en variantes dopadas de BSO<sup>[63]</sup> KNBO<sub>3</sub>:Fe<sup>[58]</sup>, BaTiO<sub>3</sub><sup>[54],[56]</sup>, algunos semiconductores fotorrefractivos como el InP:Fe<sup>[70]</sup> y otros materiales<sup>[60]</sup>. El signo del campo espacial de carga depende básicamente del signo del portador dominante y por lo tanto, de las concentraciones de impurezas donoras yceptoras ionizadas y no ionizadas en equilibrio termodinámico<sup>[51],[63],[69]</sup>. En medios fotorrefractivos el signo de los portadores de carga, a través de la movilidad puede determinarse por medidas del efecto Hall<sup>[112]</sup>.

Para este tipo de materiales se estableció que la mayor variación en las propiedades fotorrefractivas es consecuencia de las diferentes concentraciones en equilibrio termodinámico, de donores y aceptores totales  $N_D$ ,  $N_A$ , y ionizados  $N_D^+$ ,  $N_A^-$ , estos últimos actuando como trampas de portadores libres<sup>[63],[68]</sup>. Por lo tanto, el análisis fue hecho variando  $N_A^-$  y  $N_A$ , para concentraciones fijas de  $N_D^+$  y  $N_D$  dados por la Tabla 5.1. La fuerte simetría del modelo de transporte bipolar de carga sugiere que se obtiene similares resultados variando la concentración de donores y dejando fijos los aceptores. En este caso el campo espacial de carga resultará con signo cambiado.

Conservando el orden en el análisis se comenzará con la dependencia de las ampli-

tudes de la red fundamental y sus armónicos en términos de la intensidad de modulación. En el marco del modelo de Kukhtarev se predijo la independencia de dichas amplitudes. Sin embargo, para el modelo de trampas superficiales se derivó un comportamiento diferente: un fuerte aumento de la amplitud de la red fundamental y de sus armónicos, con el incremento la intensidad media de excitación.

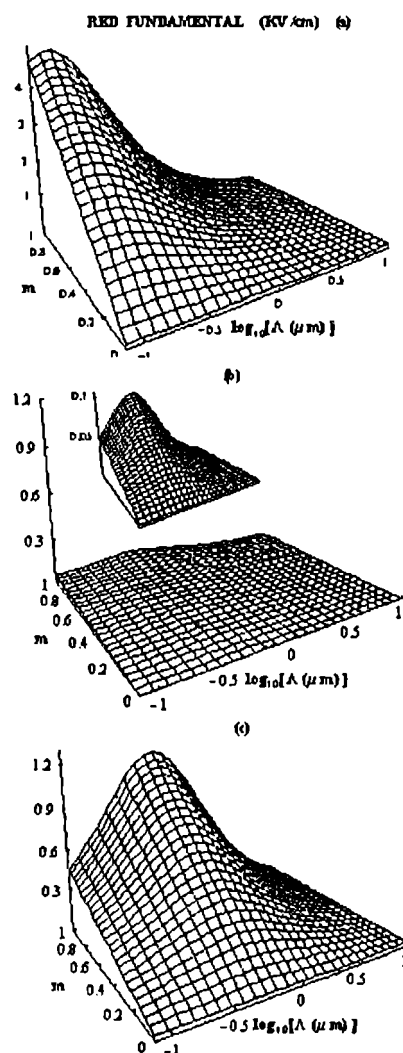


Figura V.20. Superficies que representan a  $E_1$  en función de  $\Lambda$  y  $m$  para diferentes valores de concentraciones de aceptores totales e ionizados.

Dentro del modelo bipolar, las simulaciones arrojaron la constancia en las amplitudes de todas las redes armónicas con la variación de  $I_0$  en el rango de excitación continua ( $0.001 - 10 \text{ W/cm}^2$ ) e independientemente de la concentración de aceptores totales e ionizados  $N_A$  y  $N_{Aeq}^-$ . Dicha independencia esta fuertemente asociada con el comportamiento lineal de la fotoconductividad en función de la intensidad observada experimentalmente para estos materiales. Nuestras simulaciones previas verificaron tal comportamiento lineal para ambos tipos de portadores de carga al ir variando la intensidad media de la excitación.

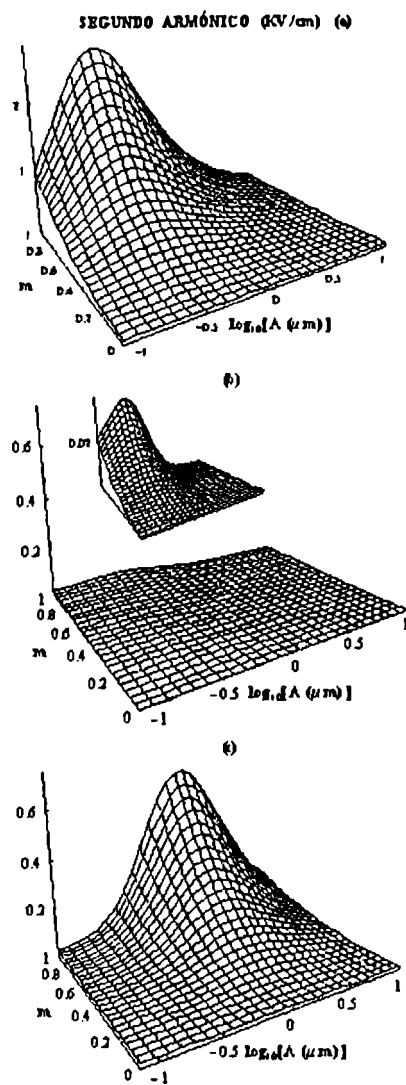


Figura V.21. Superficies que representan a  $E_2$  en función de  $m$  y  $\Lambda$ .

En las secciones precedentes se estableció que las redes armónicas superiores aumentan con el incremento del espaciado de la red y el factor de modulación. También que la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  está desplazada hacia espaciados más pequeños, para el armónico de orden  $\nu + 1$  respecto del orden  $\nu$ . Los mismos comportamiento también se verificaron para el modelo bipolar de carga. Los resultados más significativos están mostrados en las Figuras V.20.-V.23. en las cuales se representa la variación de las amplitudes  $E_\nu$  correspondientes a la red fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico en términos de la profundidad de modulación  $m$  y el espaciado de la red  $\Lambda$ .

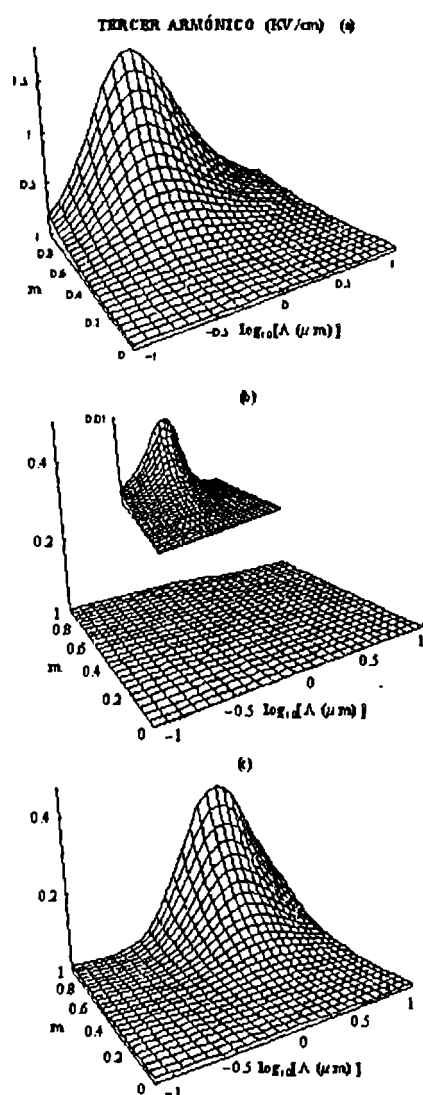


Figura V.22. Superficies que representan a  $E_3$  en función de  $m$  y  $\Lambda$ .

Cada subfigura se corresponde con  $N_{Aeq}^-$  mucho menores, del mismo orden y mucho mayores que  $N_{Deq}^+$ . Los valores correspondientes a las Subfiguras son: a)  $N_{Aeq}^- = 1.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  y  $N_A = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , b)  $N_{Aeq}^- = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  y  $N_A = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ; c)  $N_{Aeq}^- = 8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  y  $N_A = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , para un valor fijo de  $N_{Deq}^+ = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  en todos los casos.

Los resultados arrojaron comportamientos diferentes para las distintas relaciones de concentraciones de impurezas aceptoras y donoras ionizadas. Además las redes armónicas resultaron depender mucho más sensiblemente a dicha variación que a la variación de impurezas aceptoras y donoras totales.

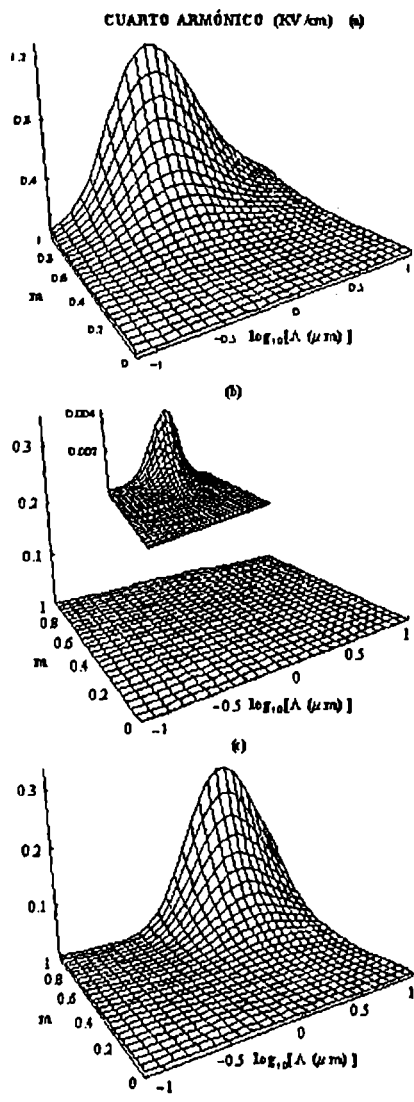


Figura V.23. Superficies que representan a  $E_4$  en función de  $m$  y  $\lambda$ .

En las Figuras V.20.-V.23. se distinguen tres comportamientos diferentes para las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos. Cuando  $N_{Aeq}^- \gg N_{Deq}^+$ , el efecto fotorrefractivo es consecuencia, básicamente, de la redistribución de huecos en los niveles aceptores, y  $E_{SC}$  tiene el signo correspondiente a este tipo de portadores de carga, tal que el efecto de los electrones es imperceptible. La situación dinámica es equivalente a la de un material que posee una especie fotorrefractiva, aceptora responsable de la fotogeneración de huecos a la banda de valencia, es decir se comporta como fotoconductor *tipo p*. Se observó que las superficies  $E_\nu$  cambian muy poco, aún, con una fuerte variación en la densidad total de aceptores  $N_A$  relativo a donores  $N_D$ . Por ejemplo, la amplitud fundamental para el valor del espaciado correspondiente a la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  varía sólo de 3.5 KV/cm para  $N_A = 5 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ , a 4.5 KV/cm para  $N_A = 5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ , lo que puede observarse en la Figura V.20. *a*. El valor de  $\Lambda_D$  para los armónicos está corrido hacia mayores valores del espaciado con respecto al valor de la red fundamental, en analogía con el modelo de Kukhtarev y de trampas superficiales.

Cuando en equilibrio termodinámico,  $N_{Aeq}^- \approx N_{Deq}^+$ , situación que corresponde a las Figuras V.20.-V.23. *b*, entonces la distribución de electrones y huecos en el material es similar en cualquier región espacial. Así se produce un apantallamiento en el campo espacial de carga debido a la compensación de carga producida por electrones y huecos. Esto perjudica notablemente la formación de redes holográficas ya que la red de índice de refracción no se forma apreciablemente, aún para altos valores de la profundidad de la modulación, tal que el efecto fotorrefractivo puede ser eliminado total o parcialmente para este tipo de materiales. Por lo tanto, fotoconductividades electrónicas y de huecos similares resultan perjudiciales cuando se requiere cambios apreciables en el índice de refracción. Para la red fundamental  $E_1$ , la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  se ubica alrededor de los valores que predice el modelo de Kukhtarev, pero para los armónicos se observa un resultado peculiar:  $\Lambda_D$  se desplaza hacia valores menores del espaciado lo que produce que las redes armónicas sean más apreciables para valores más pequeños del espaciado. También, se verificó que el debilitamiento de las amplitudes de las distintas redes armónicas se hace más notable cuando se hacen similares las concentraciones totales de impurezas aceptoras  $N_A$  y donoras  $N_D$ . Por otro lado, se analizó el comportamiento de las redes armónicas para concentraciones relativamente bajas de aceptores ionizados con respecto a la concentración de donadores,  $N_{Aeq}^- \ll N_{Deq}^+$ , y los resultados se muestran en las Figuras V.20.-V.23. *c*. Se encontró que las superficies  $E_\nu$  son similares a las obtenidas dentro del

modelo de Kukhtarev. Debido a la baja concentración de aceptores ionizados que actúan como trampas, la redistribución de huecos en las mismas es insuficiente para alterar la dinámica del efecto fotorrefractivo dada por el modelo de Kukhtarev. Las redes armónicas están formadas como consecuencia de la redistribución de electrones en las trampas donoras, es decir que el material se comporta como si tuviera un nivel fotorrefractivo único y un mecanismo de transporte electrónico (material *tipo n*). También se verificó que para tales valores de  $N_{Aeq}^-$ , las amplitudes varían imperceptiblemente para diferentes concentraciones de las impurezasceptoras totales que posee el material.

También, se realizó un análisis en términos de la profundidad de la modulación  $m$ . Se verificó la dependencia lineal de la amplitud de la red fundamental en función de  $m$  para valores arbitrarios del mismo, del espaciado de red y de concentración de aceptores totales e ionizados, hecho que se visualiza claramente en la Figura V.20. También, es evidente en las Figuras V.21.-V.23., la dependencia cuadrática, cúbica y cuártica de las amplitudes del segundo, tercer y cuarto armónico dada por la expresión V.1, la que se verificó a partir de las Ecuaciones IV.59.-IV.61.usando el principio de inducción completa.

Por otro lado y siguiendo el esquema de las secciones precedentes, se analizó la importancia relativa de las amplitudes de las redes armónicas de orden superior  $E_\nu$  con respecto a la red fundamental en la región experimental usual ( $\Lambda, m$ ) y los resultados más relevantes son mostrados en las Figuras V.24.-V.26 en las que se graficó la relación  $E_\nu/E_1$  ( $\nu = 2, 3, 4$ ). Algunos rasgos característicos, ya denotados en el modelo de Kukhtarev y de trampas superficiales, son evidentes a partir de las Subfiguras *a, b* y *c*. Se muestra que para la región lineal<sup>[8]</sup>,  $m \ll 1$ , las redes armónicas de orden superior son despreciables en comparación con la red fundamental, independientemente de los valores del espaciado y de concentración de aceptores  $N_{Aeq}^-$  y  $N_A$ . Las no-linealidades tampoco aparecen dentro del marco del modelo bipolar de carga en esta región experimental. Otro rasgo característico común a todos los modelos, incluido el modelo bipolar de carga, es la identificación de regiones de diferente comportamiento en términos del espaciado de red  $\Lambda$ : la región lineal esta corrida hacia valores bajos del espaciado, la región de transición para valores intermedios y la región no lineal que se encuentra desplazada hacia grandes valores de  $\Lambda$ , con respecto de la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  de la red fundamental.

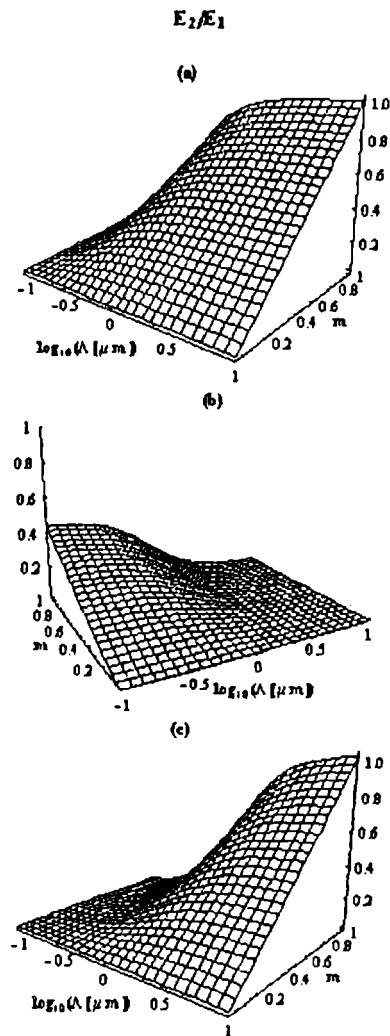


Figura V.24. Superficies que representan la amplitud relativa del segundo armónico respecto de la fundamental para diferentes valores de concentraciones de impurezas.

La característica del modelo bipolar de carga es que la extensión de cada región depende fuertemente de la relación entre los valores de los donores y aceptores totales e ionizados. Las Subfiguras *a* muestran las relaciones  $E_\nu/E_1$  ( $\nu = 2, 3, 4$ ) para relativamente altos valores de concentración de impurezas aceptoras ionizadas tal que  $N_{Aeq}^- \gg N_{Deq}^+$ . Los valores numéricos son los mismos que los correspondientes a las Figuras V.20.-V.23.



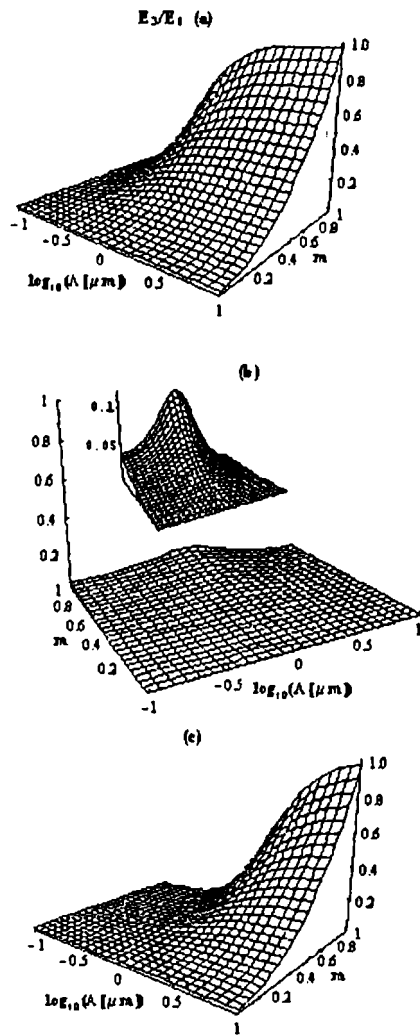


Figura V.25. Superficies que representan la amplitud relativa del tercer armónico.

Como se mencionó, una alta concentración de trampas aceptoras respecto de las donoras produce una fuerte redistribución de huecos. La eficiente formación del campo fotorrefractivo interno es consecuencia de este portador de carga, ya que la redistribución de electrones en trampas donoras permanece apantallada por ser este el portador de carga minoritario. Para estos valores de trampas aceptoras, las amplitudes de las redes armónicas tienen una notable influencia dentro del medio, como puede apreciarse a partir de las Subfiguras *a*.

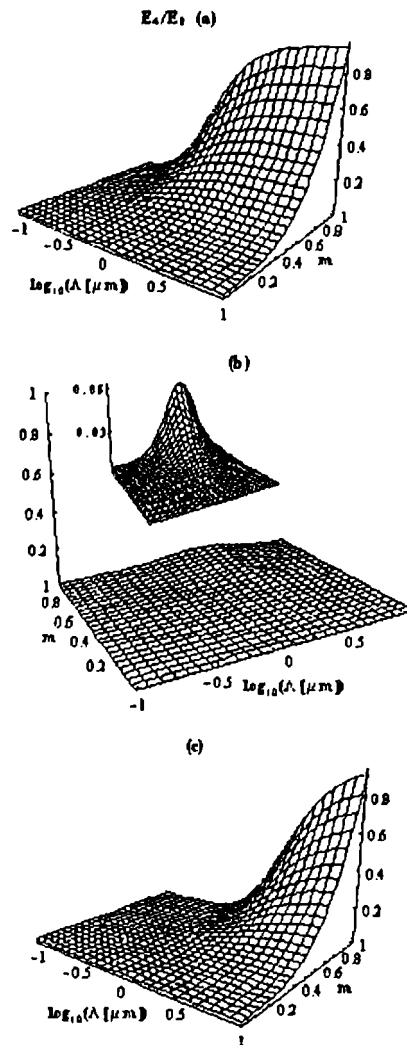


Figura V.26. Superficies que representan la amplitud relativa del cuarto armónico.

Las redes armónicas son significativas en una región extendida de  $\Lambda$ , respecto del modelo de Kukhtarev, por lo que la región no lineal es notablemente más extensa, encontrándose corrida hacia valores más pequeños del espaciado de la red. La amplitud relativa de las mismas esta saturada a su máximo valor, para  $m$  fijo, tal que la importancia de los órdenes superiores se incrementa con la profundidad de modulación acorde a la proporción  $m^\nu$ . En esta región del espaciado, la importancia de los armónico es fuerte, aún para valores no muy altos del factor de modulación. Nótese también las amplitudes

de las redes armónicas alcanzan, en magnitud, a la amplitud de la red fundamental para  $m \approx 1$ . Por otro lado, cuando el campo espacial de carga se encuentra apantallado debido a la compensación de las redes complementarias de electrones y huecos, lo que ocurre cuando  $N_{Aeq}^- \approx N_{Deq}^+$ , las amplitudes de las redes armónicas son de peso despreciable frente a la amplitud de la red fundamental en la región  $(\Lambda, m)$  usual. Las Subfiguras  $a_2$  muestran las superficies  $E_\nu/E_1$  para concentraciones similares de trampas donoras y aceptoras, con los valores numéricos idénticos a los de las Figuras V.20.-V.23.. Únicamente la amplitud del segundo armónico alcanza un valor relativamente apreciable ( $\geq 0.4$ ) para  $m \approx 1$  y, curiosamente para valores bajos de  $\Lambda$ . Esto es debido a que la longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$  del segundo armónico  $E_2$  está corrida hacia espaciados de red más bajos con respecto a  $\Lambda_D$  correspondiente a la amplitud de la red fundamental, como puede verse a partir de las Figuras V.20.-V.21. Luego, la longitud de apantallamiento de Debye de los sucesivos armónicos también están corridos hacia valores más pequeños del espaciado, con respecto al fundamental. Esto produce que los valores de saturación de las superficies  $E_\nu/E_1$  también estén corridos hacia  $\Lambda$  más pequeños, aunque las magnitudes de los armónicos incluyendo al fundamental son despreciables comparado con sus magnitudes en las otras regiones en  $\Lambda$ , lo cual es debido a la compensación de carga producido por la competición de ambos portadores de carga. Esto puede apreciarse en las Subfiguras  $b$ .

Por último, se verificó que las relaciones  $E_\nu/E_1$  para el modelo bipolar de carga coinciden con el resultado obtenido para el modelo de Kukhtarev, para una concentración de aceptores ionizados relativamente bajas con respecto a la concentración de donores ionizados, es decir  $N_{Aeq}^- \ll N_{Deq}^+$ , lo que se muestra en las Figuras V.24.-V.26. *c*. En efecto, la redistribución de huecos en trampas aceptoras resulta despreciable comparada con la redistribución de electrones en trampas donoras. Por lo tanto, la influencia de huecos permanece apantallada y no están presentes efectos no lineales adicionales debido a las impurezas aceptoras. Al mismo tiempo, se verificó que estos resultados son invariantes con respecto a la concentración relativa de impurezas aceptoras y donoras totales. Un análisis global muestra, que comparando las sucesivas amplitudes de las redes armónicas a partir de las Figuras V.24.-V.26., la región donde estas contribuyen se reduce a medida que crece el orden del armónico  $\nu$  y el modelo bipolar predice que la respuesta lineal y no lineal del medio depende fuertemente, no sólo de factor de modulación y el espaciado, como en el modelo clásico, sino también de la relación de la concentración entre impurezas donoras y aceptoras ionizadas en equilibrio termodinámico. Esto sugiere que un análisis de la respuesta no lineal

podría estar incompleto si no se incluye el conjunto completo de estos parámetros.

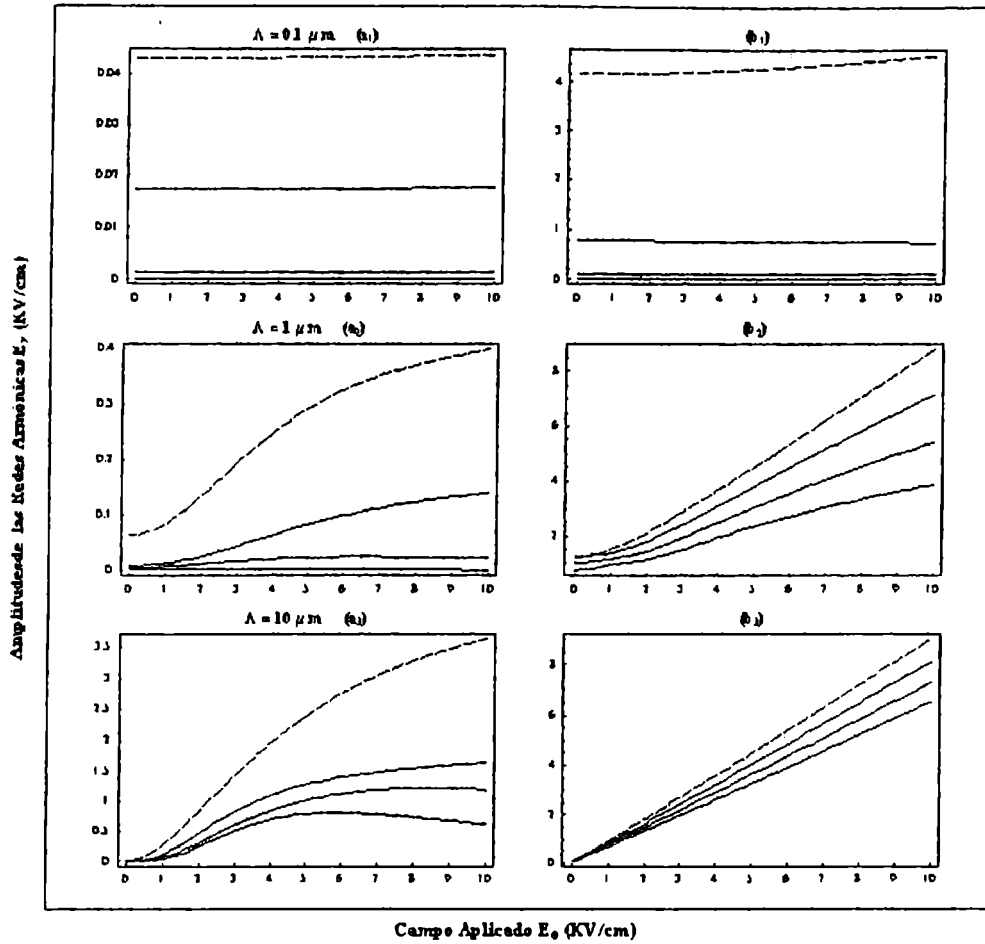


Figura V.27. Amplitudes de la red fundamental (línea punteada) y los tres siguientes armónicos en función del campo externo aplicado para las tres regiones  $\Lambda$  de interés y diferentes concentraciones de impurezas aceptoras indicadas en el texto.

Para finalizar el análisis, se estudio el comportamiento de las redes fotorrefractivas armónicas en función de un campo externo aplicado. La Figura V.27. muestra dicha dependencia para la amplitud fundamental, segundo, tercer y cuarto armónico para  $m = 1$ , y donde cada fila de Subfiguras corresponde a las diferentes regiones de interés en  $\Lambda$ :  $\Lambda = 0.1$

$\mu m$ , para Subfigs.  $i = 1$ ,  $\Lambda = 1 \mu m$ , para Subfigs.  $i = 2$  y  $\Lambda = 10 \mu m$ , para Subfigs.  $i = 3$ , y cada columna corresponde a diferentes concentraciones de especiesceptoras totales e ionizadas. Los valores numéricos de los parámetros se corresponden con: Subfigura  $a_i$ )  $N_{Aeq}^- = 1.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  and  $N_A = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,  $b_i$ )  $N_{Aeq}^- = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  and  $N_A = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , para un valor fijo  $N_{Deq}^+ = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Es decir, las Subfiguras  $a_i$  muestran los perfiles del campo para  $N_{Aeq}^- \gg N_{Deq}^+$  y las Subfiguras  $b_i$  para  $N_{Aeq}^- \approx N_{Deq}^+$ . Se verificó que para  $N_{Aeq}^- \ll N_{Deq}^+$ , el comportamiento es similar al obtenido para el modelo de Kukhtarev.

También se realizó un análisis en términos de  $\Lambda$ . Para  $\Lambda \ll \Lambda_D$  (Subfiguras  $a_1$  y  $b_1$ ), el campo aplicado deja invariante las amplitudes de las redes armónicas independientemente de las concentraciones  $N_A$  y  $N_{Aeq}^-$  respecto de  $N_D$  y  $N_{Deq}^+$ . En dicha región, sólo es significativa la contribución de la amplitud fundamental al campo espacial de carga. Es obvio, por los valores de las amplitudes, que a concentraciones similares de aceptores y donores ionizados el campo está apantallado. En cambio para concentraciones relativamente altas de aceptores ionizados, el campo está amplificado. La región  $\Lambda \approx \Lambda_D$ , en la cual las amplitudes de las redes armónicas se tornan más significativas, se muestra en las Subfiguras  $a_2, b_2$ . Nótese que para un incremento en los valores del campo aplicado, la red fundamental crece sublinealmente y con mayor derivada que las amplitudes de las redes superiores. Sin embargo, la diferencia entre los respectivos armónicos es mayor para concentraciones más bajas de aceptores ionizados como indica la Subfigura  $a_2$  respecto de  $b_2$ . Es decir, la contribución de las redes armónicas a  $E_{SC}$  es mayor a medida que  $E_0$  se incrementa. También, adviértase que el comportamiento de la red fundamental comienza a ser más lineal para altos valores del campo aplicado y un valor grande de  $N_{Aeq}^-$  respecto de  $N_D^+$ . En la región de grandes espaciados, el crecimiento de las amplitudes con el campo aplicado se hace más notable como puede verse en las Subfiguras  $a_3, b_3$ . Sin embargo, para altos valores del campo aplicado, es evidente el comportamiento sublineal de las amplitudes armónicas frente a la dependencia lineal de la amplitud fundamental para  $E_0$  intensos y para bajas concentraciones de impurezasceptoras ionizadas. Ya para altas concentraciones relativas de  $N_{Aeq}^-$ , todos los armónicos exhiben una dependencia lineal en función de  $E_0$  como muestra la Subfigura  $b_3$ . Son muy significativas las amplitudes de las redes armónicas frente al fundamental, para concentraciones que permiten el apantallamiento del campo como indica la Subfigura  $a_3$ . Por último, similarmente con los modelos analizados, la respuesta no lineal del medio fotorrefractivo es más evidente para pequeños valores del campo aplicado.

### V.4.2 Distribución espacial del campo fotorrefractivo

Se ha visto que la superposición de armónicos produce el apartamiento del perfil sinusoidal del campo espacial de carga, cuando las redes armónicas también contribuyen a sintetizar el campo fotorrefractivo.

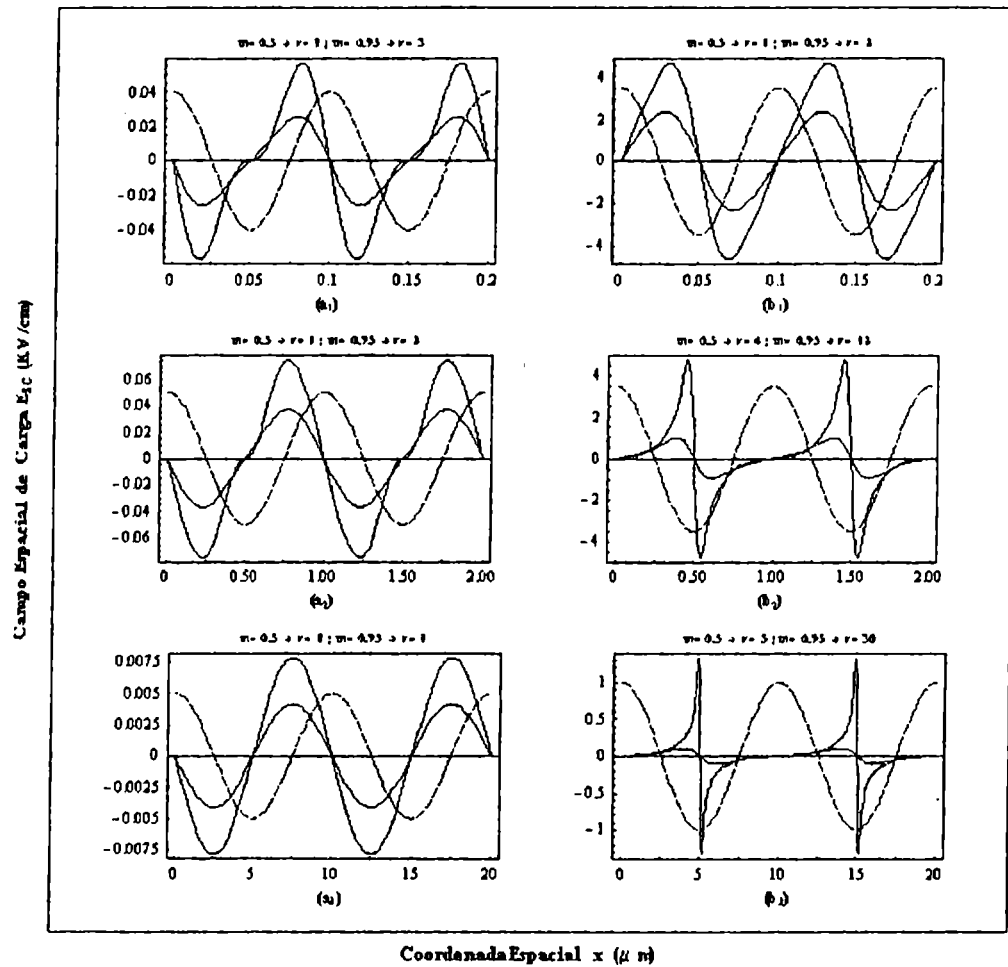


Figura V.28. Distribución espacial del campo fotorrefractivo a lo largo de dos períodos de red para las regiones de interés en términos de  $\Lambda$  y diferentes valores de concentración de impurezas.

Este peculiar fenómeno está asociado con la respuesta no lineal del medio y experimentalmente se estableció que tal respuesta se produce para modulaciones intensas del patrón de interferencia. A pesar de haber verificado experimentalmente que muchos materiales fotorrefractivos poseen un mecanismo de transporte bipolar de la carga, no se reportan trabajos que obtengan la distribución espacial del campo fotorrefractivo, ni aún empleando métodos aproximados de resolución, en este marco teórico.

Un análisis riguroso sólo es posible conociendo exactamente el comportamiento de la amplitud de la red fundamental y de sus armónicos a partir de las expresiones IV.59.-IV.61. para el modelo de transporte bipolar de carga. Dichas expresiones nos permiten predecir el perfil de  $E_{SC}$  a partir del análisis de la convergencia de la serie de Fourier truncaada IV.1.. En la Figura V.28., las Subfiguras  $a_i$  y  $b_i$ , muestran la distribución espacial del campo fotorrefractivo en las tres regiones de interés en términos del espaciado de red, sin campo externo aplicado y cada columna corresponde a diferentes valores de concentración de aceptores ionizados y neutros con idénticos valores que en la Figura V.27.. Es decir, en la Figura V.28., las Subfiguras  $a_i$  muestran los perfiles del campo para  $N_{Aeq}^- \gg N_{Deq}^+$  y las Subfiguras  $b_i$  para  $N_{Aeq}^- \approx N_{Deq}^+$ , donde se observan comportamientos diferentes. Los resultados obtenidos para  $N_{Aeq}^- \ll N_{Deq}^+$  coinciden con los obtenidos para el modelo de Kukhtarev. Para  $N_{Aeq}^- \approx N_{Deq}^+$ , se observa el comportamiento peculiar ya mencionado en el análisis de las amplitudes de las redes armónicas: en la región de espaciados pequeños (Fig. V.27.  $a_1$ ) donde los armónicos no se generan para los modelos de Kukhtarev y de trampas superficiales, el perfil del campo pierde apreciablemente su forma sinusoidal alrededor de los valores nulos para  $m$  apreciable. La contribución del segundo armónico es considerable. La amplitud del segundo armónico decrece contra la amplitud del fundamental a medida que se incrementa  $\Lambda$  (Fig. V.27.  $a_2$ ), para ser finalmente despreciable en la región de espaciados de red grandes. Se obtiene un perfil completamente sinusoidal en esta región (Fig. V.27.  $a_3$ ). Esto no debe sorprender, ya que es evidente observando las Figuras V.20.-V.26. En efecto, allí se observa que la contribución apreciable de los armónicos se produce en la región de espaciados pequeños. Sin embargo, es importante hacer notar que las amplitudes de todas las redes, incluyendo a la fundamental se manifiestan muy debilitadas debido a la competencia de redistribución entre electrones en trampas donoras y huecos en trampas aceptoras.

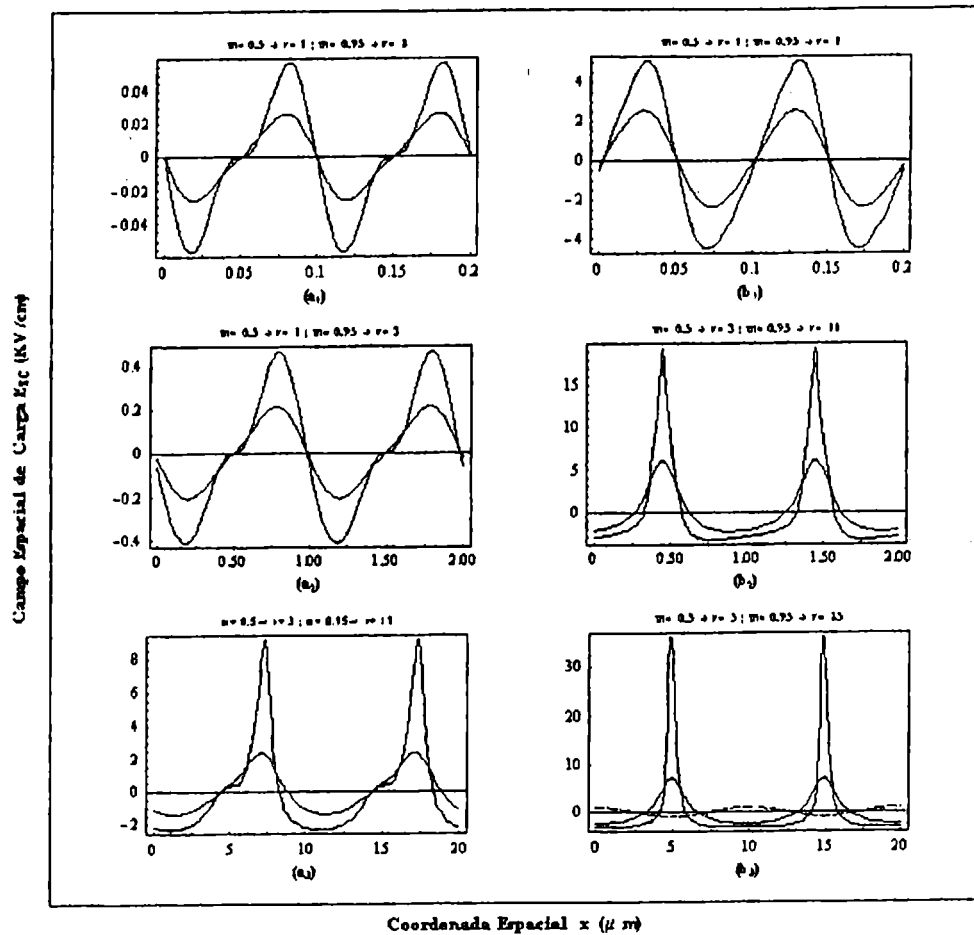


Figura V.29. Distribución espacial del campo fotorrefractivo a lo largo de dos períodos de red para las regiones en  $\Lambda$  típicas, con campo externo aplicado de 5 KV/cm.

Por otro lado y en concordancia con las secciones precedentes, cuando la redistribución de uno de los portadores es dominante frente al otro, la región de espaciados bajos se corresponde con la región lineal donde el perfil del campo interno es prácticamente sinusoidal. Por otra parte, la región de espaciados intermedios se corresponde con la región de transición, donde los primeros armónicos comienzan a influir en la distribución del campo tal que este va perdiendo su perfil sinusoidal. También se verificó que los valores máximos de las amplitudes y los valores nulos de la intensidad del patrón de interferencia dejan de



estar desfasados en  $\pi/2$ . Finalmente, la región de grandes espaciados se identifica con la región no lineal similar a lo obtenido en el marco de los otros dos modelos: el número de componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga es muy apreciable y la forma sinusoidal de la distribución del campo se pierde completamente. Se verificó para  $N_{Aeq}^- \ll N_{Deq}^+$ , que los efectos de las redes armónicas son similares a las obtenidas en el marco del modelo clásico de Kukhtarev. Las Subfiguras  $b_i$  muestran la distribución espacial del campo fotorrefractivo para las tres regiones en términos de  $\Lambda$ , y una concentración de aceptores ionizados mucho mayor que la concentración de donores ionizados  $N_{Aeq}^- \gg N_{Deq}^+$ . Los perfiles se corresponden con un material fotoconductor tipo p, sin influencia de la red electrónica.

En la Figura V.29, se muestra la distribución espacial del campo fotorrefractivo con un campo aplicado en la dirección  $x$ . Nuevamente, cada fila corresponde a cada una de las regiones típicas del espaciado y cada columna a diferentes valores de concentraciones relativas de las especies donoras yceptoras totales e ionizadas. Los valores numéricos son los mismos que los correspondientes a la Figura anterior, salvo que  $E_0 = 5KV/cm$ . Nuevamente, el principal rasgo distintivo es la pérdida de simetría del perfil espacial de  $E_{SC}$  alrededor del valor nulo del campo espacial de carga, la cual es más evidente para grandes espaciados como puede distinguirse en la Figura V.29..

Por lo tanto si es necesario almacenar una considerable cantidad de redes, sería conveniente no sólo moverse hacia valores altos del espaciado sino también considerar valores altos del factor de modulación, y además, evitar los materiales con similar concentración de trampas donoras yceptoras ionizadas en equilibrio termodinámico.

## Capítulo VI

# Conclusiones

### VI.1 Conclusiones generales

Se han obtenido, por primera vez y sin restricciones, las amplitudes y fases de las componentes armónicas que sintetizan el campo espacial de carga, las que están asociadas a las respectivas redes de índice de refracción armónicas observadas experimentalmente. El análisis fue hecho en régimen continuo y en el marco del modelo de Kukhtarev, y sus extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de transporte bipolar de carga, utilizando parámetros correspondientes al cristal BSO. Se eligió dicho material, ya que diversos resultados obtenidos en ellos y en diferentes condiciones experimentales, pudieron ser satisfactoriamente explicados mediante los modelos analizados en esta Tesis. Además, los resultados más generales pueden ser aplicados a otros materiales cuyos procesos se corresponden con tales modelos, como el cristal ferroeléctrico  $\text{BaTiO}_3$ .

Las expresiones para las amplitudes y fases se obtuvieron en función de los principales parámetros externos: intensidad media de excitación, profundidad de la modulación, espaciado de red, campo eléctrico aplicado, y en términos de los parámetros intrínsecos relevantes de cada uno de los modelos analizados.

En términos de la intensidad media de excitación, se encontró que las amplitudes de la red fundamental y de sus armónicos no dependen de este parámetro en el rango cw usual para el modelo de Kukhtarev y transporte bipolar de carga, es decir, para modelos que no postulan la presencia de niveles energéticos superficiales. Dicha independencia está íntimamente relacionada con la dependencia lineal en la densidad de portadores de carga libres o equivalentemente en la fotoconductividad con la intensidad.

En cambio, se observó que las amplitudes de los armónicos superiores sí pueden depender de la intensidad media para cristales que acumulan carga en forma eficiente en sus trampas superficiales. Para intensidades bajas, la fotoconductividad depende linealmente de este parámetro y las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos no dependen de la intensidad media. Sin embargo, para valores altos de la intensidad, donde la fotoconductividad aumenta en forma sublineal, se observó un aumento de las amplitudes de las redes armónicas cuando crece de dicho parámetro. La amplificación de la amplitud fundamental y sus armónicos se produce principalmente alrededor de la longitud de apantallamiento de Debye. Este aumento depende fuertemente de la concentración total de impurezas superficiales y de su ritmo de excitación térmica, es decir de la proximidad de los niveles superficiales a la respectiva banda de conducción ó de valencia. Un ritmo lento de termoexcitación (niveles superficiales más alejados) y una densidad apreciable de impurezas superficiales permiten una acumulación muy eficiente de portadores de carga en estas trampas produciendo así el mayor crecimiento de las amplitudes de la red fundamental y los armónicos superiores. Por otro lado, la acumulación de carga se torna menos eficiente cuando el ritmo de termoexcitación aumenta (disminuye la separación de los niveles superficiales y la banda respectiva) y la densidad de las trampas decrece. En particular, para concentraciones extremadamente bajas de impurezas superficiales y/o alto ritmo de excitación térmica, no hay acumulación de carga y es despreciable el efecto dinámico de las trampas superficiales en el efecto fotorefractivo. En estas circunstancias, las amplitudes de las redes armónicas son idénticas a aquellas predichas por el modelo de Kukhtarev.

Para los modelos analizados en esta Tesis, se estableció que la amplitud de la red de orden  $\nu$  depende de la profundidad de modulación  $m$  proporcionalmente a  $m^\nu$ . Este resultado concuerda con el hecho que para muy baja modulación  $m \ll 1$ , la red fundamental es la única que se forma en el cristal. Las redes armónicas en cambio sólo se generan para valores apreciables del factor de modulación  $m \approx 1$ . También se observó que las amplitudes de las redes armónicas, relativas a la red fundamental, crecen notablemente no sólo cuando se incrementa la profundidad de modulación, sino también cuando crece el espaciado de red. Por lo tanto, el análisis de la respuesta no lineal del medio sería incompleto si sólo se tiene en cuenta la profundidad de modulación. Es decir, el campo espacial de carga se aparte notablemente de su perfil sinusoidal para valores crecientes de ambos parámetros. En términos del espaciado, se obtuvo la presencia de máximos en las amplitudes de las redes para el valor denominado longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$ . En función

de su valor para la red fundamental, se han identificado las regiones donde el material presenta respuestas muy diferentes, es decir, regiones donde las redes armónicas pueden ó no originarse. En efecto, la región lineal, donde los armónicos superiores son despreciables frente al fundamental, se ubica en la zona  $\Lambda \ll \Lambda_D$  y la región no lineal, donde los armónicos superiores son significativos, en la zona  $\Lambda \gg \Lambda_D$ . Esto se debe básicamente a que la longitud de Debye del armónico de orden  $\nu + 1$  se encuentra corrido hacia espaciados mayores con respecto al armónico de orden  $\nu$ . La región de transición lineal-no lineal se encuentra entre ambas regiones, es decir para espaciados  $\Lambda \sim \Lambda_D$ .

Sin embargo, la presencia de trampas superficiales o transporte electrón-hueco de la carga pueden causar ciertas alteraciones en este comportamiento general. De hecho, la extensión de las regiones mencionadas depende de los valores de la intensidad media, concentración de trampas superficiales y ritmo de termoexcitación que permitan una eficiente acumulación de carga en dichas trampas. En particular, la longitud de la región no lineal se extiende fuertemente hacia la región de espaciados de red más pequeños a expensas de la región lineal cuando se aumenta la intensidad de excitación, para un ritmo lento de excitación térmica y una concentración apreciable de impurezas superficiales. Ello indica que la presencia de impurezas eficientes extiende notablemente el límite de respuesta no lineal del material fotorrefractivo. En relación al modelo de transporte bipolar de carga, se obtiene un comportamiento análogo al modelo de Kukhtarev cuando la concentración de las impurezas donoras es mucho mayor ó menor que la concentración de las impurezas aceptoras. En efecto, la redistribución de carga causada por el portador minoritario es despreciable frente al portador mayoritario y el medio se comporta como si tuviese una especie fotorrefractiva que genera un único portador de carga. En cambio, concentraciones similares de impurezas donoras y aceptoras provocan un fuerte debilitamiento en la generación del campo espacial de carga, debido a la fuerte compensación de carga que produce la simultánea redistribución de carga de electrones y huecos. En estas condiciones, el comportamiento de las redes armónicas frente a la red fundamental es distinto al comportamiento general arriba descrito: la longitud de Debye del armónico de orden  $\nu + 1$  se encuentra corrido hacia espaciados menores con respecto al armónico de orden  $\nu$ . Entonces, la influencia de los armónicos se hace más evidente para la región de espaciados pequeños  $\Lambda \ll \Lambda_D$  y la respuesta no lineal del material se produce para espaciados pequeños, en oposición al resultado general. En cambio, sus amplitudes son despreciables para grandes períodos espaciales  $\Lambda \gg \Lambda_D$ . Sin embargo, para concentraciones similares de donores y aceptores, la

amplitud de la red fundamental y sus armónicos está muy debilitada, y por ende, el efecto fotorrefractivo puede estar total ó parcialmente inhibido.

Se ha analizado, también, la influencia de un campo eléctrico estacionario aplicado en dirección perpendicular a las franjas interferométricas, en el comportamiento de la red fundamental y sus armónicos, en cada uno de los rangos del espaciado descritos anteriormente. Para la región lineal  $\Lambda \ll \Lambda_D$ , se obtuvo que la amplitud de las redes armónicas no depende del campo externo  $E_0$ , y además dichas amplitudes son despreciables frente a la amplitud fundamental, en concordancia con los resultados experimentales. La presencia de trampas superficiales, que permiten una eficiente acumulación de carga en las mismas, aumenta la amplitud del segundo armónico para altas intensidades. Este armónico también crece para concentraciones similares de aceptores y donores en un esquema de conducción bipolar, notándose que el valor absoluto de la amplitud fundamental ya está apantallada a causa de la competición electrón-hueco. En la región  $\Lambda \sim \Lambda_D$ , las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos crecen sublinealmente cuando se aumenta el campo  $E_0$ , teniendo el armónico de orden  $\nu$  mayor derivada que el orden  $\nu + 1$ . Esto implica que la contribución más significativa de las redes armónicas se produce para valores más pequeños del campo externo. Sin embargo, la presencia de trampas superficiales *eficientes* incrementa la derivada de las amplitudes armónicas superiores haciendo que estas sean significativas frente a la amplitud fundamental, aún para campos aplicados intensos. Finalmente, en la región no lineal  $\Lambda \gg \Lambda_D$ , la dependencia con el campo aplicado es prácticamente lineal para el fundamental y sublineal para los armónicos, pero en régimen de excitación intensa, las trampas superficiales con eficiente acumulación de carga producen una dependencia lineal tanto para el fundamental como para los armónicos en el rango completo de variación de  $E_0$ . Por otro lado, concentraciones similares de donores y aceptores en el esquema de conducción bipolar provoca un comportamiento sublineal de todos los armónicos, con mayor derivada para la red fundamental respecto de sus armónicos, por lo cual estos no se originan eficientemente.

En lo que concierne al análisis de la distribución espacial del campo fotorrefractivo, en términos de la superposición de los diferentes armónicos, y en el marco general se concluye que: en la región lineal el perfil es sinusoidal, lo que muestra que el campo espacial de carga es consecuencia sólo de la red fundamental, sin presencia de las redes armónicas. Además, la red fundamental presenta un desfase en  $\pi/2$  con respecto al patrón de excitación, lo que está de acuerdo con los resultados experimentales. Al alejarse de la región lineal, incrementando

el factor de modulación y/o el espaciado de la red, el perfil del campo espacial de carga va perdiendo su forma sinusoidal, lo cual indica que los armónicos comienzan a ser apreciables en el efecto fotorrefractivo. Más aún, en la región altamente no lineal que ocurre para  $\Lambda \gg \Lambda_D$  y  $m \sim 1$ , el perfil sinusoidal se pierde por completo. Los agudos picos del campo indican altas concentraciones de carga en regiones muy restringidas. En caso de no haber campo externo, tal que la difusión es el único mecanismo de transporte, la distribución del campo fotorrefractivo resulta simétrico en el volumen del cristal, como consecuencia de no existir una dirección privilegiada para el transporte de la carga. La acción del campo externo rompe la simetría de la distribución espacial de carga, introduciendo una dirección privilegiada para el transporte de la carga. Así, se observan picos de mayor intensidad en el campo local en la región de mayor inhomogeneidad de la carga.

Por último, a partir de las expresiones analíticas de las amplitudes, es posible conocer la cantidad de armónicos necesarios para sintetizar el campo espacial de carga para valores arbitrarios de los parámetros internos y externos.

## VI.2 Resumen de las conclusiones

- ▶ Se han obtenido las expresiones rigurosas para las amplitudes y fases de las redes fotorrefractivas armónicas en el marco del modelo de Kukhtarev y sus extensiones: el modelo de trampas superficiales y el modelo de transporte bipolar de carga.
- ▶ Las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos resultó ser independiente de la intensidad de excitación para el modelo de Kukhtarev y el modelo de transporte bipolar de carga. En cambio, un incremento de las amplitudes para el modelo de trampas superficiales puede ocurrir con el aumento de dicho parámetro. Este fenómeno está asociado con la acumulación eficiente de carga en dichas trampas, lo que también provoca una dependencia sublineal de la fotoconductividad.
- ▶ Para identificar los rangos de comportamiento lineal y no lineal del medio fotorrefractivo, el análisis necesariamente debe ser hecho, no sólo en términos del factor de modulación, sino también en función del espaciado de red.
- ▶ Se estableció que la amplitud de la red de orden  $\nu$  depende de la profundidad de modulación  $m$  proporcionalmente a  $m^\nu$ .
- ▶ Se derivó la presencia de máximos en las amplitudes de las redes para un valor deter-

minado del período, denominado longitud de apantallamiento de Debye  $\Lambda_D$ . En función del mismo, se han identificado las regiones donde el material presenta una respuesta diferente: en la región  $\Lambda \ll \Lambda_D$ , el comportamiento es lineal, tal que los armónicos no se originan. En cambio, la respuesta no lineal se produce para  $\Lambda \ll \Lambda_D$  donde los armónicos se generan significativamente.

- ▶ La presencia de trampas superficiales eficientes extiende la región no lineal hacia períodos más pequeños en detrimento de la región lineal.
- ▶ La presencia de transporte electrón-hueco, puede debilitar el campo espacial de carga para concentraciones similares de donores y aceptores. En este marco, la generación de los armónicos se produce para la región de espaciados pequeños  $\Lambda \ll \Lambda_D$ , en oposición al resultado general.
- ▶ Un campo aplicado inhibe la generación de las redes armónicas. El comportamiento de las amplitudes de la red fundamental y sus armónicos es sublineal con el aumento del campo externo en la región de espaciados pequeños, y se torna lineal a medida que se incrementa el espaciado. El rango donde ocurren estos efectos depende de la intensidad para una acumulación eficiente en trampas superficiales y por otro lado, de la concentración de donores y aceptores en un esquema de transporte bipolar de carga.

## Bibliografía

- [1] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Bollmann, J. J. Levinstein, K. Nassau, *Optically-induced refractive indice inhomogeneities in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>*, Appl. Phys. Lett. **9**, 72 (1966).
- [2] J. B. Thaxter, *Electrical control of holographic storage in strontium-barium niobate*, Appl. Phys. Lett. **15**, 210 (1969).
- [3] N. V. Kukhtarev, Pis'ma Zh. Tekh. Fiz. **2**, 1114 (1976) [*Kinetics of hologram recording and erasure in electrooptic crystals*, Sov. Tech. Phys. Lett. **2**, 438 (1976)].
- [4] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, M. S. Soskin and V. L. Vinetskii, *Holographic storage in electrooptic crystals*, Ferroelectrics **22**, 949, 961 (1979).
- [5] P. Yeh, *Introduction to photorefractive nonlinear optics*, (New York: J. Wiley, 1993).
- [6] P. Günter and J. P. Huignard, eds. *Photorefractive Materials and Their Applications I and II*. (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- [7] H. Kogelnik, *Coupled wave theory for thick hologram gratings*, Bell System Tech. Journal **48**, 2909 (1969).
- [8] G. C. Valley, *Short-pulse grating formation in photorefractive materials*, IEEE J. Quantum Electron., **Q-19**, 1637 (1983).
- [9] L. B. Au and L. Solymar, *Grating formation in photorefractive materials at large illumination*, Opt. Commun. **72**, 261 (1989).
- [10] L. B. Au, *Response of photorefractive materials for given initial conditions: an analytical solution*, Opt. Commun. **72**, 265 (1989).



- [11] D. Fluck, P. Amrhein, and P. Günter, *Photorefractive effect in crystals with a nonlinear recombination of charge carriers: theory and observation in KNbO<sub>3</sub>*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 2196 (1991).
- [12] D. C. Jones and L. Solymar, *Transient response of photorefractive bismuth silicon oxide in the pulsed regime*, Opt. Comm. **85**, 372 (1991).
- [13] H. Okamura, K. Takeuchi, T. Tanaka, K. Kuroda, *Grating formation with very short pulses in photorefractive materials: weak excitation limit*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2650 (1997).
- [14] P. Vaveliuk, B. Ruiz, N. Bolognini and J. Fernandez, *Transient Behavior of the Photorefractive Space-Charge Field*, Phys. Rev. B **62**, 4511 (2000).
- [15] D. A. Temple and C. Warde, *High-order anisotropic diffraction in photorefractive crystals*, J. Opt. Soc. Am. B. **5**, 1800 (1988).
- [16] Y. H. Lee, and R. W. Hellwarth, *Spatial harmonics of photorefractive gratings in a barium titanate crystal*, J. Appl. Phys. **71**, 916 (1992).
- [17] J. E. Millerd, E. M. Garmire, M. B. Klein, B. A. Wechsler, F. P. Strohkendl and G. A. Brost, *Photorefractive response at high modulation depths in Bi<sub>12</sub>TiO<sub>20</sub>*, J. Opt. Soc. Am. B. **9**, 1449 (1992).
- [18] J. P. Huignard and B. Ledu, *Collinear Bragg diffraction in photorefractive Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>*, Opt. Lett. **7**, 310 (1982).
- [19] F. Vachss and L. Hesselink, *Selective enhancement of spatial harmonics of a photorefractive grating*, J. Opt. Soc. Am. B. **5**, 1814, (1988).
- [20] J. V. Alvarez-Bravo, M. Carrascosa and L. Arizmendi, *Experimental effects of light intensity modulation on the recording and erasure of holographic gratings in BSO crystals*, Opt. Commun. **103**, 22 (1993).
- [21] M. G. Moharam, T. K. Gaylord, and R. Magnusson, *Holographic grating formation in photorefractive crystals with arbitrary electron transport lengths*, J. Appl. Phys. **50**, 5642 (1979).

- [22] E. Ochoa, F. Vachss and L. Hesselink, *Higher-order analysis of the photorefractive effect for large modulation depths*, J. Opt. Soc. Am. A. **3**, 181 (1986).
- [23] F. Vachss and L. Hesselink, *Nonlinear photorefractive response at high modulation depths*, J. Opt. Soc. Am. A. **5**, 690, (1988).
- [24] R. Saxena and T. Y. Chang, *Perturbative analysis of higher-order photorefractive gratings*, J. Opt. Soc. Am. B. **9**, 1467, (1992).
- [25] S. M. Shandranov, N. Nazhestkina, ó. V. Kobozev and A. A. Kamshilin, *Nonlinearity of a response in photorefractive crystals with a square-wave applied field*, Appl. Phys. B **68**, 1007 (1999).
- [26] L. B. Au and L. Solymar, *Space-charge field in photorefractive materials at large modulation*, Opt. Lett. **13**, 660, (1988).
- [27] G. A. Brost, *Photorefractive grating formations at large modulation with alternating electric fields*, J. Opt. Soc. Am. B. **9**, 1454 (1992).
- [28] G. A. Brost, *Numerical analysis of photorefractive grating formation dynamics at large modulation in BSO*, Opt. Comm. **96**, 113 (1993).
- [29] E. Serrano, V. Lopez, M. Carrascosa, and F. Agullo-Lopez, *Steady-state photorefractive gratings in  $\text{LiNbO}_3$  for strong light modulation depths*, IEEE J. Quantum Electron. **Q-30**, 875 (1994).
- [30] E. Serrano, V. Lopez, M. Carrascosa, and F. Agullo-Lopez, *Recording and erasure kinetics in photorefractive materials at large modulation depths*, J. Opt. Soc. Am. B. **11**, 670 (1994).
- [31] E. Serrano, M. Carrascosa, and F. Agullo-Lopez, *Analytical and numerical study of photorefractive kinetics at high modulation depths*, J. Opt. Soc. Am. B. **13**, 2587 (1996).
- [32] Z. Zhou, X. Sun, Y. Li, Y. Jiang, H. Zhao, K. Xu and Q. Wan, *Kinetics of the higher-order response of photorefractive materials*, J. Opt. Soc. Am. B. **13**, 2580 (1996).
- [33] P. Buchhave, *Computer simulation of multiple dynamic photorefractive gratings*, J. Opt. Soc. Am. B. **15**, 1865 (1998).

- [34] A. Bledowski, J. Otten, and K. H. Ringhofer, *Photorefractive hologram writing with modulation 1*, Opt. Lett. **16**, 672, (1991).
- [35] E. Serrano, M. Carrascosa, and F. Agullo-Lopez, *Nonperturbative analytical solution for steady-state photorefractive recording*, Opt. Lett. **20**, 1910, (1995).
- [36] Ph. Refregier, L. Solymar, H. Rajbenbach and J. P. Huignard, *Two-beam coupling in photorefractive  $Bi_{12}SiO_{20}$  crystals with moving grating: theory and experiments*, J. Appl. Phys. **58**, 45 (1985)
- [37] D. Mahgerefteh and J. Feinberg, *Explanation of the apparent sublinear photoconductivity of photorefractive barium titanate*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2195 (1990).
- [38] F. P. Strohkendl, *Light-induced dark decays of photorefractive gratings and their observation in  $Bi_{12}SiO_{20}$* , J. Appl. Phys. **65**, 3773 (1989).
- [39] I. Biaggio, M. Zgonik and P. Günter, *Build-up and dark decay of transient photorefractive gratings in reduced  $KNbO_3$* , Opt. Commun. **77**, 312 (1990).
- [40] G. Pauliat and G. Roosen, *Photorefractive effect generated in sillenite crystals by picosecond pulses and comparison with the quasi-continuous regime*, J. Opt. Soc. Am. B. **7**, 2259, (1990).
- [41] P. Tayebati, *The effect of shallow traps on the dark storage of photorefractive grating in  $Bi_{12}SiO_{20}$* , J. Appl. Phys. **70**, 4082 (1991).
- [42] K. Okamoto, T. Sawada and K. Ujihara, *Transient response of a photorefractive grating produced in a BSO crystal by a short light pulse*, Opt. Commun. **99**, 82 (1993).
- [43] P. Nouchi, J. P. Partanen and R. W. Hellwarth, *Simple transient solutions for photocunduction and space-charge field in a photorefractive material with shallow traps*, Phys. Rev. B. **47**, 581 (1993).
- [44] J. Li, X. H. Li, F. Y. Lu, H. F. Wang, S. Z. Yuan, Y. Zhu and X. Wu, *Erasure of photorephactive gratings in barium titanate*, J. Appl. Phys. **76**, 7541 (1994).
- [45] J. P. Partanen, P. Nouchi, J. M. C. Jonathan and R. W. Hellwarth, *Comparison between holographic-photocurrent measurements of electron mobility in photorephactive  $Bi_{12}SiO_{20}$* , Phys. Rev. B. **44**, 1487 (1991).

- [46] G. Le Saux and A. Brun, *Photorefractive material response to short pulse illuminations*, IEEE J. Quantum Electron. **Q-23**, 1680 (1987).
- [47] M. H. Garrett, P. Tayebati, J. Y. Chang, H. P. Jenssen and C. Warde, *Shallow-trap-induced positive absorptive two-beam coupling gain and light-induced transparency in nominally undoped barium titanate*, J. Appl. Phys. **72**, 1965 (1992).
- [48] I. Biaggio and G. Roosen, *Influence of the shallow traps on the enhancement of the photorefractive grating amplitude by a high-frequency alternating electric field: a probabilistic analysis*, J. Opt. Soc. Am. B. **13**, 2306, (1996).
- [49] P. Tayebati and D. Mahgerefteh, *Theory of the photorefractive effect for  $Bi_{12}SiO_{20}$  and  $BaTiO_3$  with shallow traps*, J. Opt. Soc. Am. B. **8**, 1053, (1991).
- [50] F. P. Strohkendl, P. Tayebati and R. W. Hellwarth, *Comparative study of photorefractive  $Bi_{12}SiO_{20}$  crystals*, J. Appl. Phys. **66**, 6024 (1989).
- [51] L. M. Bernardo, J. C. Lopes and ó. D. Soares, *Hole-electron competition with fast and slow gratings in  $Bi_{12}SiO_{20}$  crystals*, Appl. Opt. **29**, 12 (1990).
- [52] B. Mainguet, F. Le Guiner and G. Picoli, *Moving grating and intrinsic electron-hole resonance in two wave mixing in photorefractive  $InP:Fe$* , Opt. Lett. **15**, 938 (1990).
- [53] S. Zhivkova and M. Miteva, *Holographic recording in photorefractive crystals with simultaneous electron-hole transport and two active centers*, J. Appl. Phys. **68**, 3099 (1990).
- [54] N. Barry and M. J. Damzen, *Two-beam coupling and response-time measurements in barium titanate using high-intensity laser pulses*, J. Opt. Soc. Am. B **9**, 1488 (1992).
- [55] I. Foldvari, J. J. Martin, Ch. A. Hunt and R. C. Powell, *Temperature dependence of the photorefractive effect in undoped  $Bi_{12}GeO_{20}$* , J. Appl. Phys. **74**, 783 (1993).
- [56] M. J. Damzen and N. Barry, *Intensity dependent hole-electron competition and photocarrier saturation in  $BaTiO_3$  when using intense laser pulses*, J. Opt. Soc. Am. B **10**, 600 (1993).
- [57] M. Zgonik, K. Nakagawa and P. Günter, *Electro-optic and dielectric properties of photorefractive  $BaTiO_3$  and  $KNbO_3$* , J. Opt. Soc. Am. B **12**, 1416 (1995).

- [58] C. Medrano, M. Zgonik, I. Liakatas and P. Günter, *Infrared photorefractive effect in doped KNbO<sub>3</sub> crystals*, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 2657 (1996).
- [59] A. Mazur, U. van Stevendaal, K. Buse, M. Weber, ó. F. Schirmer, H. Hesse and E. Krätzig, *Light-induced charge transport processes in photorefractive barium titanate crystals doped with iron*, Appl. Phys. B **65**, 481 (1997).
- [60] A. Shumelyuk, S. Odoulov and G. Brost, *Nearly degenerate two-beam coupling in photorefractive crystals with two species of movable carriers*, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 2125 (1998).
- [61] M. B. Klein and G. C. Valley, *Beam coupling in BaTiO<sub>3</sub> at 442 nm*, J. Appl. Phys. **57**, 4901 (1985).
- [62] C. Medrano and P. Günter, Chapter 10, *Insulating Materials For Optoelectronics*, F. Agullo-Lopez Ed. (1996).
- [63] G. C. Valley, *Simultaneous electron-hole transport in photorefractive materials*, J. Appl. Phys. **59**, 3363 (1986).
- [64] F. P. Strohkendl, J. M. C. Jonathan and R. W. Hellwarth, *Hole-electron competition in photorefractive gratings*, Opt. Lett. **14**, 1362 (1986).
- [65] R. Orłowski and E. Krätzig, *Holographic method for the determination of photoinduced electron and hole transport in electrooptic crystals*, Solid State Commun. **27**, 1351 (1978).
- [66] S. I. Stepanov, *Light refraction in crystals with bipolar photoconductivity*, Sov. Phys. Tech. Phys. **27**, 1300 (1982).
- [67] M. C. Bashaw, T. -P. Ma, R. C. Baker and S. Mroczkowski, *Introduction, revelation and evolution of complementary gratings in photorefractive bismuth silicon oxide*, Phys. Rev. B **68**, 3099 (1990).
- [68] I. Aubrecht, H. C. Ellin, A. Grunnet-Jepsen and L. Solymar, *Space-charge fields in photorefractive materials enhanced by moving fringes: comparison of electron-hole transport models*, J. Opt. Soc. Am. B **12**, 1915 (1995).

- [69] L. Boutsikaris, S. Mailis and N. A. Vainos, *Comparative study of photorefractive  $Bi_{12}SiO_{20}$  crystals*, J. Opt. Soc. Am B **15**, 1042 (1998).
- [70] L. Boutsikaris and F. Davidson, *Perturbative analysis of higher-order photorefractive gratings in  $InP:Fe$* , Opt. Commun. **105**, 411 (1994).
- [71] F. S. Chen, *A laser-induced inhomogeneity of refractive index in KTN*, J. Appl. Phys. **38**, 3418 (1967).
- [72] A. Ashkin and J. M. Dziedzic, *Laser induced refractive index inhomogeneities and absorption saturation effects in  $CdS$* , IEEE J. Quantum Electron. **QE-3**, 400 (1967).
- [73] J. B. Thaxter, *Electrical control of holographic storage in strontium barium niobate*, Appl. Phys. Lett. **15**, 210 (1969).
- [74] R. L. Townsend, and LaMacchia, *Optically induced refractive index changes in  $BaTiO_3$* , J. Appl. Phys. **4**, 5188 (1970).
- [75] M. Peltier and F. Micheron, *Volume hologram recording and charge transfer process in  $Bi_{12}SiO_{20}$  and  $Bi_{12}GeO_{20}$* , J. Appl. Phys. **48**, 3683 (1977).
- [76] K. Sutter and P. Günter, *Photorefractive grating in the organic crystal 2-cyclooctylamino-5-nitropyridine doped with 7,7,8,8-tetracyanoquinodimethane*, J. Opt. Soc. Am. B **7**, 2274 (1990).
- [77] S. Ducharme, J. C. Scott, R. J. Tweig, and W. E. Moerner, *Observation of the photorefractive effect in a polymer*, Phys. Rev. Lett. **66**, 271 (1991).
- [78] D. D. Nolte, R. M. Brubaker, M. R. Melloch, J. M. Woodall and S. E. Ralph, Appl. Phys. Lett. **41**, 679 (1992).
- [79] A. M. Glass, *The photorefractive effect*, Opt. Eng. **17**, 5 (1978).
- [80] F. P. Strohkendl and R. W. Hellwarth, *Contribution of holes to the photorefractive effect in n-type  $Bi_{12}SiO_{20}$* , J. Appl. Phys. **62**, 2450 (1987).
- [81] M. P. Petrov, S. I. Stepanov and A. V. Khomenko, *Photorefractive crystals in coherent optical systems* (Springer Series in Optical Sciences, Springer-Verlag, Berlin 1991).

- [82] S Tao, D. R. Selviah, J. E. Midwater, *Spatioangular multiplexed storage of 750 holograms in an Fe:LiNbO<sub>3</sub> crystal*, Opt. Lett. **8**, 912 (1993).
- [83] G. Pauliat and G. Roosen, *New advances in photorefractive holographic memories*, Int. J. Opt. Computing **2**, 271 (1991).
- [84] L. Arizmendi, P. D. Townsend, M. Carrascosa, J. A. Baquedano and J. M. Cabrera, *Photorefractive fixing and related thermal effects in LiNbO<sub>3</sub>*. J. Phys.:Cond. Matt. **3**, 5399 (1991).
- [85] A. Marrackhi, *Two-beam coupling photorefractive spatial light modulation with reversible contrast*, Appl. Phys. Lett. **53**, 634 (1988).
- [86] P. Yeh, *Two-wave mixing in nonlinear materials*, IEEE J. Quantum Electron. **QE-25**, 484 (1989).
- [87] R. A. Fisher, *Optical phase conjugation*, (Academic Press, Yew York, 1983).
- [88] A. Yariv, *Phase conjugate optics and real time holography*, IEEE J. Quantum Electron. **QE-14**, 650 (1978).
- [89] C. R. Petts, *Optical correlation in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> at 632.8 nm*, M. W. MacCall and L. C. Laycock, Elect. Lett. **20**, 32 (1984).
- [90] J. P. Huignard and A. Marrakchi, *Coherent signal beam amplification in two-wave mixing experiments with photorefractive Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> crystals*, Opt. Commun. **38**, 249 (1981).
- [91] E. Ochoa, L. Hesselink and G. Goodman, *Real-time intensity inversion using two-wave and four wave mixing in photorefractive Bi<sub>12</sub>GeO<sub>20</sub>*, Appl. Opt. **24**, 1826 (1985).
- [92] A. Marrackhi and W. H. Hubbard, *Fan-in issues in a holographic grating interconnect system*, Opt. Lett. **16**, 417 (1991).
- [93] D. Psaltis, D. Brady, X. G. Gu and S. Lin, *Holography in artificial neural networks*, Nature **343**, 325 (1990).
- [94] T. J. Hall, R. Jaura, L. M. Connors and P. D. Foote, *The photorefractive effect- a review*, Prog. Quant. Electr. **10**, 77 (1985).

- [95] F. S. Chen, *Optically induced change of refractive index in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>*, J. Appl. Phys. **40**, 3389 (1969).
- [96] J. J. Amodei, *Electron diffusion effects during hologram recording in crystals*, Appl. Phys. Lett. **18**, 22 (1971).
- [97] S. L. Hou, R. B. Lauer, and R. E. Aldrich, *Transport processes of photoinduced carriers in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>*, J. Appl. Phys. **44**, 2652 (1973).
- [98] R. B. Lauer, *Electron effective mass and conduction-band effective density of states in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>*, J. Appl. Phys. **45**, 1794 (1974).
- [99] D. von der Linde, A. M. Glass and K. F. Rodgers, *High-sensitivity optical recording in KTN by two-photon absorption*, Appl. Phys. Lett. **26**, 22 (1975).
- [100] M. P. Petrov, A. V. Khomenko, V. I. Berezkin and M. V. Krasinkova, *Optical information recording in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub>*, Ferroelectrics **22**, 651 (1978).
- [101] J. P. Herriau, J. P. Huignard and P. Aubourg, *Some polarization properties of volume holograms in Bi<sub>12</sub>SiO<sub>20</sub> crystals and applications*, Appl. Opt. **17**, 1851 (1978).
- [102] G. A. Alphonse, R. C. Alig, D. L. Staebler and W. Phillips, *Time-dependent characteristics of photo-induced space-charge field and phase holograms in lithium niobate and other photorefractive media*, RCA Review **36**, 213 (1975).
- [103] V. G. Levich, Iv. A. Vdovin y V. A. Miamlin, *Curso de Física Teórica, Parte IV: Estadística Cuántica y Cinética Física* (Ed. Reverté, Madrid 1976).
- [104] N. Noginova, N. V. Kukhtarev, M. A. Noginov, Bo Su Chen, H. J. Caulfield and P. Venkaterswarlu, *Holographic current study in laser and photorefractive crystals*, J. Opt. Soc. Am. B. **13**, 2622 (1996).
- [105] S. Shim, C. H. Kwak, *Coupled-mode calculation of K/2 spatial subharmonics in photorefractive moving gratings*, Phys. Rev. A **54**, 863 (1996).
- [106] D. N. Christodoulides and M. I. Carvalho, *Bright, dark and gray spatial soliton states in photorefractive media*, J. Opt. Soc. Am. B. **12**, 1628 (1995).
- [107] V. A. Kalinin and L. Solymar, *Energy relations for space-charge waves in photorefractive materials*, Appl. Phys. Lett. **69**, 4265 (1996).



- [108] P. Vaveliuk, B. Ruiz, R. Duchowicz and N. Bolognini, *Theoretical analysis of photocurrent dark decay in photorefractive media*, IEEE J. Quantum. Electron., **Q-36**, 692 (2000).
- [109] J. Feinberg, D. Heiman, A. R. Tanguay Jr. and R. W. Hellwarth, *Photorefractive effect in and light-induced charge migration in barium titanate*, J. Appl. Phys. **51**, 1297 (1980).
- [110] G. J. Murillo, L. F. Magaña, M. Carrascosa and F. Agulló-López, *Effects of strong modulation on beam-coupling gain in photorefractive materials: application to  $Bi_{12}SiO_{20}$* , J. Opt. Soc. Am. B. **15**, 2092 (1998).
- [111] G. A. Brost and R. A. Motes, *Origin of the sublinear photorefractive response time in  $BaTiO_3$* , Opt. Lett. **15**, 1194 (1990).
- [112] S. L. Sochava, K. Buse and E. Krätzig, *Photoinduced Hall current measurements in photorefractive sillenites*, Phys. Rev. B **51**, 4684 (1995).