

Diss. ETH No. 12761

**PHYSICS AND APPLICATIONS OF
ULTRAVIOLET LIGHT INDUCED
PHOTOREFRACTIVE GRATINGS**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZURICH

for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by

PIETRO ARTURO GIOVANNI BERNASCONI

Dipl. Phys. ETH

born on the 5th November 1969

citizen of Novazzano (TI)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. P. Günter, examiner

Prof. Dr. H. Melchior, co-examiner

Zürich 1998

Abstract

This thesis is devoted to the investigation and the application of holographic gratings induced by ultraviolet light in ferroelectric materials. The gratings are recorded by exploiting the material photorefractive properties, i.e. by making use of their electro-optic and photoconductive properties.

A detailed analysis of such gratings based on time resolved wave mixing experiments is presented for two wide band gap dielectric crystals with large optical nonlinearities, potassium niobate (KNbO_3) and barium titanate (BaTiO_3). Unlike the usual approach to the photorefractive effect, our techniques rely on the generation of the holograms with light wavelengths shorter than the fundamental absorption edge.

The results reveal an unconventional two-layer structure of the gratings with a typical thickness of the order of $200 \mu\text{m}$. In a first layer placed close to the illuminated crystal surface, we identify a hologram component with a large modulation of the refractive indices (up to $\Delta n = 10^{-4}$) and characterised by a fast response time of few μs already for illuminations of few tens of mWcm^{-2} . This grating component dominated by interband effects, also shows an excellent robustness towards non-resonant illumination in the visible spectral range. In the second layer located deeper inside the crystal, the grating is approximately 5-10 times weaker and 2-3 orders of magnitude slower with characteristics similar to those of the conventional photorefractive gratings. Depending on the sign of the majority charge carriers in the two layers, we observe that the two grating components can be in phase or mutually shifted by π .

The spatial as well as the temporal response of these composite grating structures are understood with the help of the conventional band model which we extend and adapt to take into account the *interband* effects.

The qualitative and the quantitative predictions of the theoretical model are made possible by the precise knowledge of a full set of material parameters describing the change of the crystal optical properties under the influence of a light induced

electric field grating. For the first time, we present a full set of self-consistent parameters for the determination of the photorefractive response in KNbO_3 and BaTiO_3 . These parameters sets consider the measured electro-optic, piezoelectric, elasto-optic, elastic, and dielectric crystal properties interrelated through thermodynamic constraints. The temperature dependence and the wavelength dispersion of the electro-optic effects are also modelled and verified experimentally.

The charge transport properties under non-resonant illumination are investigated and the anisotropic band mobility tensor is determined through an all-optical technique. This new approach is extended to interband photoexcitation to determine the anisotropic bipolar mobility in KNbO_3 . The polaron nature of the charge transport in these two materials is evidenced, although several questions concerning the magnitude of the anisotropy of the mobility, ranging from 2-3 in KNbO_3 to 20 in BaTiO_3 , and its temperature dependence especially in BaTiO_3 , are still open.

The fast response, the low power operation, the short light wavelength employed to record the interband gratings, and their robustness towards visible illumination are used to implement applications for high-resolution massive parallel optical signal processing. We present an incoherent-to-coherent optical converter, a device which provides the transfer of space-temporal information carried by a incoherent light wave onto a coherent laser beam for further signal processing. We achieve a resolution of 124 lp/mm with an optical switching energy per bit of 0.5 pJ. The fast response allows an incoherent to coherent conversion rate of $60 \text{ Gbit s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. These results successfully compete with the best optically addressed spatial light modulators available based on multiple quantum wells (MQW) structures or on ferroelectric liquid crystals.

Interband photorefractive gratings are also tested as dynamic, tunable out-coupling gratings in waveguide structures. With 100 mWcm^{-2} of ultraviolet light we achieve a diffraction efficiency of $\sim 2\%$ with a response time of $20 \mu\text{s}$, which might be promising in view of the extension of the use of interband gratings for optical interconnects or switching in waveguides.

Kurzfassung

Diese Dissertation ist der Untersuchung und Anwendung ultravioletter lichtinduzierter holographischer Gitter in ferroelektrischen Materialien gewidmet. Die Gitter werden durch die photorefraktiven Materialeigenschaften erzeugt, d.h. durch die Ausnützung der elektro-optischen und photoleitenden Eigenschaften des Materials.

Eine ausführliche Analyse solcher Gitter, basierend auf zeitaufgelösten Vierwellenmischungsexperimenten, wird für zwei dielektrische Kristalle mit grosser Energiebandlücke und mit grossen Nichtlinearitäten durchgeführt: Kalium Niobat (KNbO_3) und Barium Titanat (BaTiO_3). Im Gegensatz zu sonst üblichen Experimenten zu den photorefraktiven Effekten, beruht unsere Technik auf der Erzeugung von Hologramme durch Lichtwellenlängen die kürzer sind als der fundamentalen Absorptionsbandkante.

Die Ergebnisse zeigen eine unkonventionelle, zweischichtige Gitterstruktur mit typischen Dicken von $200 \mu\text{m}$. In der ersten Schicht, unterhalb der beleuchteten Kristalloberfläche, befindet sich eine holographische Komponente mit grosser Brechungsindexmodulation (bis $\Delta n = 10^{-4}$) charakterisiert durch eine schnelle Antwortzeit von einigen μs bei Lichtintensitäten von nur wenigen mWcm^{-2} . Diese Gitterkomponente, dominiert durch Interbandeffekte, zeigt auch eine ausgezeichnete Robustheit gegenüber nichtresonanter Beleuchtung im sichtbaren Spektralbereich. In der zweiten Schicht, tiefer im Kristall gelegen, ist das Gitter ca. 5-10 mal schwächer und 2-3 Grössenordnungen langsamer, mit ähnlichen Kennzeichen wie bei konventionellen, photorefraktiven Gittern. In Abhängigkeit vom Vorzeichen der Majoritätsladungsträger finden wir, dass die zwei Gitterkomponenten in Phase oder gegenseitig um π phasenverschoben sein können.

Die räumliche sowie die zeitliche Antwort dieser zusammengesetzten Gitterstruktur wird mit Hilfe eines konventionellen Bandmodells erklärt, welches wir erweitern und, zur Berücksichtigung der Interbandeffekte, angepasst haben. Die qualitativen und quantitativen Voraussagen des theoretischen Modells werden durch die genaue Kenntniss einer vollständigen Menge Materialparameter ermöglicht, welche

die Änderungen der optischen Eigenschaften des Materials unter dem Einfluss von lichtinduzierten, elektrischen Gitterfeldern beschreiben. Erstmals, stellen wir eine vollständige Menge selbstkonsistenter Parameter zur Bestimmung der photorefraktiven Antwort in KNbO_3 und BaTiO_3 vor. Diese Parametersets bestehen aus gemessenen elektro-optischen, piezoelektrischen, elasto-optischen, elastischen und dielektrischen Kristalleigenschaften, welche durch thermodynamische Gleichungen korreliert sind. Die Temperaturabhängigkeit und die Wellenlängendispersion der elektro-optischen Effekte werden auch modelliert und experimentell geprüft.

Wir untersuchen die Ladungstransporteigenschaften unter nichtresonanter Beleuchtung und der Tensor der anisotropen Bandbeweglichkeit wird durch eine rein-optische Technik bestimmt. Diese neue Methode wird für die Interbandphotoanregung zur Messung der anisotropen Bipolarbeweglichkeit in KNbO_3 erweitert. Die polaronische Natur des Ladungstransports in diesen zwei Materialien wird herausgehoben, obwohl noch einige Fragen betreffend der Grösse der Beweglichkeitsanisotropie, zwischen 2-3 in KNbO_3 und 20 in BaTiO_3 , und ihre Temperaturabhängigkeit insbesondere in BaTiO_3 , offen bleiben.

Die schnelle Antwortzeit, der Kleinenergieverbrauch, die kurze Lichtwellenlänge und die Robustheit der Interbandgittern gegenüber sichtbarem Licht werden für Anwendungen für die Verarbeitung von hochaufgelösten, parallelen optischen Signalen genutzt. Wir demonstrieren einen inkohärent-nach-kohärent optischen Konverter, welcher die zeitliche und räumliche Informationen von einer inkohärenten Lichtwelle zur weiteren Signalverarbeitung auf einem kohärenten Laserstrahl überträgt. Wir erreichen eine Auflösung von 124 lp/mm mit einer Schaltungsenergie pro Bit von 0.5 pJ. Die schnelle Antwortzeit ermöglicht eine inkohärent-nach-kohärent Umwandlungsrate von $60 \text{ Gbit s}^{-1} \text{cm}^{-2}$. Solche Ergebnisse konkurrieren erfolgreich mit den besten, heute verfügbaren, optisch adressierten räumlichen Lichtmodulatoren, die auf multiplen Quantenwellenstrukturen oder ferroelektrischen Flüssigkristallen beruhen.

Die interbandphotorefraktiven Gitter werden auch als dynamische, abstimmbare Auskopplungsgitter in Wellenleitern getestet. Mit 100 mWcm^{-2} ultravioletten Licht erreichen wir $\sim 2\%$ Beugungseffizienz, mit einer Antwortzeit von $20 \mu\text{s}$, was aus Sicht einer Erweiterung der Anwendung von Interbandgittern für optische Koppler oder als Schaltungen in Wellenleitern vielversprechend sein könnte.

Sommario

Questa tesi é dedicata alla ricerca ed all'applicazione di reticoli olografici indotti da luce ultravioletta in materiali ferroelettrici. I reticoli vengono prodotti facendo uso delle proprietà fotorifrangenti del materiale, ossia sfruttandone le qualità elettro-ottiche e fotoconduttrici.

Un'analisi dettagliata di questi reticoli, basata su esperimenti di miscelazione d'onde con risoluzione temporale, é presentata per due cristalli dielettrici con ampia banda proibita e dalle spiccate non-linearità ottiche: il niobato di potassio (KNbO_3) ed il titanato di bario (BaTiO_3). A differenza dell'approccio usuale all'effetto fotorifrangente, le nostre tecniche si affidano alla produzione di ologrammi per mezzo di luce la cui lunghezza d'onda é più corta dello spigolo d'assorbimento fondamentale.

I risultati rivelano un'inusuale struttura a due strati dei reticoli con uno spessore complessivo tipicamente dell'ordine di $200 \mu\text{m}$. In un primo strato sotto la superficie illuminata del cristallo, scopriamo una componente dell'ologramma con una forte modulazione degli indici di rifrazione (fino a $\Delta n = 10^{-4}$) e caratterizzata da un tempo di risposta di soli alcuni μs già ad intensità luminose di poche decine di mWcm^{-2} . Questa componente del reticolo, dominata da effetti interbanda, presenta pure un'eccellente robustezza di fronte ad un'illuminazione non risonante nella parte visibile dello spettro. In un secondo strato situato più in profondità nel cristallo, il reticolo é circa 5-10 volte più debole e 2-3 ordini di grandezza più lento con caratteristiche simili ai reticoli fotorifrangenti di tipo convenzionale. Si osserva pure come il segno della maggioranza dei portatori di carica determini quando le due componenti del reticolo sono in fase oppure reciprocamente sfasate di π .

La risposta spazio-temporale di questi reticoli compositi é spiegata con l'aiuto del modello a conduzione di banda, esteso ed adattato per includere gli effetti interbanda. Le previsioni qualitative e quantitative del modello teorico sono possibili grazie ad un insieme completo di parametri del materiale che descrivono i cambiamenti delle proprietà ottiche del cristallo sotto l'influenza di un reticolo di campo elettrico fotoindotto. Questo lavoro é il primo a presentare un insieme completo e

coerente di parametri usati per determinare la reazione fotorifrangente in KNbO_3 e BaTiO_3 . Questi insiemi di parametri constano delle proprietà elettro-ottiche, piezoelettriche, elasto-ottiche, elastiche e dielettriche misurate nei cristalli e connesse tra loro da relazioni termodinamiche. La dipendenza degli effetti elettro-ottici dalla temperatura e dalla dispersione della lunghezza d'onda, sono pure modellati e verificati sperimentalmente.

Studiando le proprietà del trasporto di carica indotta da illuminazione non risonante, determiniamo il tensore della mobilità anisotropa di banda per mezzo di tecniche puramente ottiche. Questo nuovo approccio è esteso alla fotoeccitazione interbanda per valutare la mobilità bipolare anisotropa in KNbO_3 . La natura polaronica del trasporto di carica in questi due materiali è messa in evidenza benché alcune questioni rimangano ancora aperte concernenti l'ampiezza della anisotropia della mobilità, variante da 2-3 in KNbO_3 fino a 20 in BaTiO_3 , e la relativa dipendenza dalla temperatura, in particolare in BaTiO_3 .

Il corto tempo di risposta, l'operatività a bassa potenza, le piccole lunghezze d'onda della luce impiegate per produrre i reticoli interbanda e la loro robustezza di fronte ad illuminazioni nel visibile vengono usate per congegnare applicazioni per l'elaborazione di massa ed in parallelo di segnali ottici ad alta risoluzione. A tal proposito, presentiamo un convertitore ottico da incoerente a coerente, ossia un dispositivo che permette all'informazione spazio-temporale portata da luce incoerente di essere trasferita ad un fascio laser coerente per ulteriori elaborazioni del segnale. Si ottengono risoluzioni di 124 pl/mm con un'energia di commutazione per bit di 0.5 pJ. Il tempo di risposta veloce permette un ritmo di conversione da incoerente a coerente di $60 \text{ Gbit s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Questi risultati competono egregiamente con i migliori modulatori spaziali di luce indirizzati otticamente (OASLM) disponibili, basati su strutture a barriere quantiche multiple (MQW) o su cristalli liquidi ferroelettrici.

I reticoli fotorifrangenti interbanda sono pure messi alla prova quali reticoli iniettori di tipo dinamico ed accordabile per guide d'onda. Con 100 mWcm^{-2} di luce ultravioletta si raggiungono efficienze di ca. 2% con risposte di $20 \mu\text{s}$, una buona premessa in vista dell'estensione dell'uso di reticoli interbanda quali connettori ottici o commutatori in guide d'onda.