UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS

ANDERSON SILVA CHAVES

Novos resultados teóricos e experimentais para a técnica Z-scan

São Carlos - S.P.

2010

ANDERSON SILVA CHAVES

Novos resultados teóricos e experimentais para a técnica Z-scan

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Mestre em Ciências.

Área de Concentração: Física Aplicada

Orientador: Prof. Dr. Tomaz Catunda

São Carlos - S.P.

2010

Ficha catalográfica elaborada pelo Serviço de Biblioteca e Informação IFSC/USP

Chaves, Anderson Silva

Novos resultados teóricos e experimentais para a técnica Z-scan. / Anderson Silva Chaves; orientador Tomaz Catunda- São Carlos, 2010.

113p.

Dissertação (Mestrado – Programa de Pós-Graduação em Física - Área de concentração: Física Aplicada) – Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo.

1. Técnica Z-scan. 2. Óptica não-linear. 3. Índice de refração não-linear. 4. Integral de difração de Fresnel-Kirchhoff I. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Anderson Silva Chaves

Dissertação apresentada ao Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo para obtenção do título de Mestre em Ciências.
Área de Concentração: Física Aplicada.

Aprovado(a) em: 30.06.2010

Comissão Julgadora

Prof(a). Dr(a). Tomaz Catunda

Instituição: IFSC/USP Assinatura_____

Prof(a). Dr(a). Lino Misoguti

Instituição: IFSC/USP Assinatura_____

Prof(a). Dr(a). Marcelo Martinelli

Instituição: IF/USP Assinatura_____

AGRADECIMENTOS

A Deus, por toda benevolência e felicidade.

Aos meus pais, Damião e Catarina, e meus irmãos, Kátia e Rodrigo, pelo incentivo, compreensão e amor incondicionais, atravessando comigo todas as adversidades.

Ao Prof. Tomaz Catunda, pelas boas ideias e orientação que possibilitaram a realização desse trabalho.

Ao companheiro de laboratório Renato Antônio Cruz pelas proveitosas conversas e discussões.

À minha namorada Vanessa di Genova e sua família por todo carinho, amor e luz em minha vida.

Aos amigos da graduação: Sebastião (Zé Maria), Antonio (Nettão), Fernando Tsutae, César Maia (Fião), Willian e Gustavo (Narizinho) pelo apoio e amizade.

Aos professores Milton Ferreira de Souza e Sérgio Carlos Zílio que sempre me ajudaram desde o ingresso à universidade até os dias atuais. Agradeço pelos valiosos ensinamentos de vida, encorajamento e oportunidades.

Aos colegas do Laboratório de Espectroscopia de Sólidos: Rui, Gláucia, Marcos Gugliotti, Antônio e aos que não estão mais: Regina e Carlos Máximo.

Ao professor Lino Misoguti pelo apoio na iniciação científica.

A todos os professores que passaram em minha vida, em especial, àqueles que deram o máximo para se tornarem inesquecíveis: Djalma Mirabelli Redondo, Lidério Ioratti Júnior e Miled H. Y. Moussa.

Aos meus avôs Joaquim e Lázaro (in memoriam) e às minhas avós Euvira e Ana (in memoriam), assim como toda minha grande e estimada família (impossível nomeá-los neste espaço).

A muitos amigos que tornaram essa trajetória mais leve e bem humorada: Filipe Rocha (Bucho), Douglas Barros (Saci Branco), Diego Lencione (Diegrilho), Douglas, Juninho, Felipe (Batata), Saulinho, Ailton Alves, Jeison Tribiolli, José Carlos Pizolato Jr., Homero, Carlinhos, Daniel (Krust) dentre outros.

A todos os funcionários e técnicos do Instituto de Física de São Carlos, pelo auxílio em muitas tarefas. Obrigado!

À Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP), pelo suporte financeiro.

Por fim, agradeço à grande e terrível Camoréo, assim como minha Kentuckinha do coração.

RESUMO

CHAVES, A.S. **Novos resultados teóricos e experimentais para a técnica Z-scan.** 2010. 113p. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2010.

O índice de refração não-linear n_2 é o parâmetro chave da não-linearidade de terceira ordem em materiais ópticos. Um método simples, direto e sensível para medição do índice de refração não-linear (n_2) é a técnica Z-scan proposta Sheik-Bahae *et al* [1]. Nesse trabalho, um estudo sistemático quanto a esta técnica foi realizado. Utilizando a integral de difração de Fresnel-Kirchhoff, foi possível analisar a técnica investigando a influência do raio de abertura da íris. Foram obtidas expressões analíticas inéditas quando consideramos baixas não-linearidades induzidas por amostras finas. Esses resultados mostraram que o valor de n_2 obtido é aproximadamente 36% maior do que n_2 obtido por Sheik-Bahae para abertura linear de S=0,5, por exemplo.

Extensões da técnica foram feitas, onde simulações para testar a viabilidade de medidas Z-scan no campo próximo e com dois feixes foram realizadas, de onde também foi possível encontrar resultados analíticos inéditos. Esses resultados teóricos foram testados tanto para feixe único quanto duplo em alguns experimentos, sendo obtido um bom acordo. Por fim, um novo método para medição do índice de refração não-linear não-degenerado foi proposto, em que é possível obter n_2 no comprimento de onda do feixe de prova, num experimento com dois feixes. Esse resultado é importante uma vez que, em muitos casos, não é possível a realização de uma medida Z-scan convencional, devido ao fato da amostra não absorver o comprimento de onda do feixe de prova. Um resultado de n_2 para rubi em *633nm* foi obtido em bom acordo com resultados prévios da literatura, em que foram utilizadas técnicas de maior complexidade experimental.

Palavras-chave: Técnica Z-scan. Óptica não-linear. Índice de refração não-linear. Integral de difração de Fresnel-Kirchhoff.

ABSTRACT

CHAVES, A.S. **Novel theoretical and experimental results to Z-scan technique.** 2010. 113p. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2010.

The nonlinear refractive index n_2 is the key parameter of the third order nonlinearity of optical materials. A simple, direct and sensitive measurement of nonlinear refractive index n_2 is so-called Z-scan technique proposed by Sheik Bahae *et al* [1]. In this work, a systematic study on this technique was performed. Based on Fresnel-Kirchhoff diffraction integral formula, it was possible to analyze the technique in order to investigate the influence of the aperture's radius. We obtained unpublished analytical expressions when we consider small nonlinearities induced by thin samples. These results showed that the value of n_2 obtained is about 36% larger than n_2 obtained by Sheik-Bahae when the linear opening is 50%, for example.

Extensions about the technique were made. Simulations were performed in order to test the feasibility of near-field Z-scan and two-color Z-scan measurements. Again it was also possible to find unpublished analytical results. The theoretical results were tested in some experiments and good agreement was found. Finally, a new method for measuring the non-degenerate refractive index was proposed. So, there is the possibility to obtain n_2 at the wavelength of the probe beam in a two-color Z-scan experiment. This result is important since in many cases is impossible to perform a conventional z-scan measurement, due to the fact that the sample does not absorb the wavelength of the probe beam. A result of n_2 for ruby at *633nm* was obtained in good agreement with previous studies.

Keywords: Z-scan technique. Nonlinear optics. Nonlinear refractive index. Fresnel-Kirchhoff difraction integral.

LISTA DE FIGURAS

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO

O índice de refração não-linear n_2 é o parâmetro chave da não-linearidade de terceira ordem em materiais ópticos. Dentre as técnicas existentes para determinação de n_2, o método Z-scan proposto por Sheik-Bahae *et al* [1] em 1989 é bastante simples e sensível, em que um único feixe laser incide no meio não-linear. Esta técnica consiste em correlacionar as distorções na frente de onda, provocadas pelo meio, com a divergência do feixe no campo distante. Em medidas de refração não-linear, uma íris (abertura) é colocada na frente de um fotodetector, possibilitando a medição da intensidade quando a divergência do feixe é alterada. Com isso, o comportamento da intensidade transmitida pela abertura (relacionado com n_2) é de fundamental importância em experimentos Z-scan.

Desde a sua introdução, a técnica Z-scan tem sido extensivamente estudada por diferentes modelos teóricos[2,3,4] em que diversos autores têm analisado o método para descrever a transmitância medida pelo detector em amostras finas[2,5] ou espessas[6,7], assim como para fracas[6,8] ou fortes[2,9,10] não-linearidades. No entanto, a influência da abertura da íris, até onde sabemos, foi muito pouco investigada. Sheik-Bahae considerou a influência de aberturas para medidas Z-scan, fazendo uma análise numérica, assim como feito por Chapple et al [11].

Diversas extensões da técnica Z-scan foram propostas afim de melhorar sua sensibilidade ou aplicabilidade, como exemplo podemos citar a técnica Z-scan com duas cores[12,13], na qual um feixe de prova ‘sente’ os efeitos provocados por outro feixe (com diferente comprimento de onda) que excita a amostra. Analisando a transmitância do feixe de prova é então possível determinar n_2 não-degenerado, ou seja, n_2 no comprimento de onda do feixe de prova. No entanto, essa técnica é muito pouco usada devido a dificuldades experimentais, como alinhamento crítico.

Neste trabalho, considerando um modelo em que um feixe gaussiano incide em uma amostra fina com pequena não-linearidade, usando a integral de Fresnel-Kirchhoff, investigamos a transmitância em função da abertura, onde foram obtidos alguns resultados interessantes em desacordo com a literatura para feixe único no campo distante. Também,

análises quanto ao experimento para feixe único no campo próximo foram feitas; assim como análises quanto à transmitância medida no experimento com dois feixes em que foi possível a obtenção de resultados analíticos. Para validar as simulações, experimentos Z-scan foram feitos, em que foram utilizados cristais dopados com íons onde n_2 é proveniente de fenômenos populacionais. Por fim, propusemos um método para medição de n_2 não-degenerado que fosse viável experimentalmente.

Esta dissertação está dividida da seguinte forma:

- No Capítulo 1 (Introdução) apresentamos uma visão geral do assunto
- No Capítulo 2 (Noções de óptica não-linear) procuramos mostrar um embasamento teórico voltado à óptica não-linear, ressaltando efeitos de terceira ordem de onde provém o índice de refração não-linear. Também, são discutidos alguns fenômenos físicos para o surgimento de n_2, onde enfatizamos os efeitos populacionais em sólidos dopados com íons.
- No Capítulo 3 (Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff-IDFK) apresentamos a integral de difração para análise no campo próximo ou no campo distante, assim como introduzimos o chamado número de Fresnel. Também, falamos sobre feixe gaussiano mostrando que sua propagação pode ser conseguida usando a IDFK.
- No Capítulo 4 (Técnica Z-scan)$_2$ falamos sobre os princípios básicos de um experimento Z-scan, mostrando como é possível obter n_2 de uma medição, sendo apresentadas algumas considerações importantes. Também, algumas extensões da técnica são apresentadas, como por exemplo, a técnica Z-scan com duas cores.
- No Capítulo 5 (Resultados teóricos e discussões) são apresentados os cálculos, resultados, simulações e discussões quanto ao comportamento da transmitância não-linear medida em experimentos Z-scan para diferentes condições experimentais. Nesse Capítulo, são apresentados os resultados para a influência da abertura da íris sobre medidas de Z-scan.
- No Capítulo 6 (Material e métodos) falamos sobre o método Z-scan resolvido no tempo para medidas de não-linearidades lentas (provenientes de efeitos populacionais). Também, mostramos o aparato experimental deste método (utilizado

nas medidas feitas nesse trabalho) falando, principalmente, sobre o sistema de aquisição dos dados.

- No Capítulo 7 (Resultados experimentais e discussões) são apresentados os resultados experimentais para diferentes condições. Para cada caso, comparações são feitas com os resultados teóricos conseguidos e com a literatura.
- No Capítulo 8 (Conclusões) fazemos as conclusões sobre os resultados obtidos assim como apresentamos novas propostas para pesquisas futuras.
- Finalmente, temos as referências bibliográficas e em seguida os apêndices A (IDFK em coordenadas cilíndricas) e B (Fator de correção temporal).

2 Noções de óptica não-linear

Na ótica linear é bem conhecido que as propriedades óticas da matéria variam com a freqüência da luz, mas não com sua intensidade. Pode-se dizer que o objeto de estudo da ótica não-linear é a variação destas propriedades com a intensidade da luz. Efeitos ópticos não-lineares não fazem parte de nossa vida diária, pois em baixas intensidades (que normalmente ocorrem na natureza) as propriedades ópticas dos materiais, em qualquer instante, são independentes da intensidade de iluminação.

As primeiras experiências que evidenciaram o princípio da óptica não-linear foram realizadas em 1875, quando o físico escocês John Kerr observou alterações do índice de refração no dissulfureto de carbono (CS_2), quando submeteu uma pequena amostra a um campo elétrico intenso[14]. No entanto, durante muito tempo, os fenômenos de óptica não-linear continuaram sem grandes avanços.

A partir do desenvolvimento do laser em 1960 por Maiman[15], foi possível observar pela primeira vez que a presença de altas intensidades de luz pode provocar mudanças nas propriedades ópticas do meio alterando, por exemplo, o índice de refração ou o coeficiente de absorção. Quando isso acontece a luz que provoca mudanças nas propriedades do material também é afetada de uma maneira não-linear.

Com o aparecimento do laser, a conseqüente possibilidade de se usarem feixes monocromáticos e coerentes de elevada energia fez emergir rapidamente o campo da não-linearidade óptica. Logo, em 1961, Franken e seus colaboradores[16] realizaram uma experiência onde fizeram incidir um feixe de luz de um laser de Rubi com um comprimento de onda de ~ 694 nm, num cristal de quartzo (SiO_2) devidamente orientado em relação ao feixe incidente. A radiação emergente foi analisada num espectrômetro, tendo-se observado ser constituída por duas freqüências, uma igual à do feixe incidente e a outra com metade da freqüência do feixe gerado pelo laser de Rubi. Este efeito foi denominado por Geração de Segundo Harmônico e é considerado por muitos como o nascimento da óptica não-linear.

Após esta experiência muitos outros fenômenos ópticos não-lineares foram observados. As propriedades de não-linearidade óptica têm sido observadas numa grande diversidade de materiais, incluindo cristais orgânicos, semi-orgânicos, inorgânicos, polímeros,

cristais líquidos, etc. O interesse crescente neste tipo de materiais deve-se fundamentalmente ao forte potencial tecnológico que apresentam[17,18].

Na óptica não-linear, a susceptibilidade elétrica χ (que representa as propriedades ópticas do meio) depende do campo elétrico. Em geral podemos expandir χ ($E(t)$) numa série de potências de $E(t)$ [19,20]

$$\chi(E(t)) = \chi^{(1)} + \chi^{(2)}E(t) + \chi^{(3)}E(t)^2 + ... \qquad (1)$$

Então a polarização do meio pode ser expressa por:

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi(E(t))E(t) = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} + \chi^{(2)}E(t) + \chi^{(3)}E(t)^2 + ...\right)E(t) \qquad (2)$$

sendo ε_0 a permissividade dielétrica no vácuo. Onde $E(t)$ e $P(t)$ foram tomados escalares por questão de simplicidade.

Nesta situação $\chi^{(1)}$ é a susceptibilidade linear e é muito maior que os termos de mais alta ordem $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, $\chi^{(4)}$,... O símbolo $\chi^{(1)}$ representa as propriedades lineares, tais como o índice de refração, absorção, ganho e birrefringência.

Na interação da luz com a matéria considera-se que o sistema atômico é perturbado pela interação com o campo eletromagnético da luz, por isso o parâmetro natural da expansão é E/E_a , onde E_a é o campo atômico típico da ordem de $10^9 V/cm$. Desta maneira podemos estimar a ordem de grandeza dos fatores na Equação (1). Normalizando em relação a $\chi^{(1)} \sim 1$ temos:

$$\chi^{(2)}E \sim \frac{E}{E_a} \therefore \chi^{(2)} \sim \frac{1}{E_a} \sim 3{,}3\times10^{-9}\, cm/V \qquad (3)$$

e analogamente para $\chi^{(3)}$ temos:

$$\chi^{(3)} \sim \frac{1}{E_a^2} \sim 1{,}1\times10^{-17}\, cm^2 / V^2 \tag{4}$$

As quantidades $\chi^{(2)}$ e $\chi^{(3)}$ são conhecidas como susceptibilidades ópticas de segunda e terceira ordens, respectivamente. $\chi^{(2)}$ representa as propriedades não-lineares que se originam de transições do dipolo elétrico e devido às restrições de simetria, as susceptibilidades de dipolo elétrico pares são nulas ($\chi^{(2)}$=0), em materiais com simetria de inversão. Essas propriedades causam efeitos como a geração do segundo harmônico, a geração de soma de freqüências, a geração de diferença de freqüências e o efeito eletro-óptico linear ou Efeito Pockels.

Efeitos não-lineares de terceira ordem podem ser observados independentemente das propriedades de simetria do meio. Estes efeitos incluem a geração do terceiro harmônico, a mistura de freqüências, o espalhamento Raman e Brillouin, a auto-modulação de fase, a modulação de fase cruzada e o efeito eletro-óptico quadrático ou Efeito Kerr. Embora sejam efeitos de mais alta ordem, $\chi^{(3)}$ pode ser mais intenso que $\chi^{(2)}$ nos casos de interação quase ressonantes e em cristais de simetria de inversão.

Processos não-lineares de ordem mais alta do que a terceira são menos eficientes, exceção feita aos casos em que uma ressonância do material é explorada, quando efeitos de alta ordem podem tornar-se evidentes.

2.1 Propriedades não-lineares de terceira ordem

Nesse trabalho, estamos interessados principalmente em processos de terceira ordem relacionados à susceptibilidade não-linear $\chi^{(3)}$ .Considerando o caso mais simples em que uma onda monocromática da forma $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ é aplicada no meio, usando a Equação (2), a polarização não-linear de terceira ordem pode ser expressa como

$$P^{(3)}(t) = \chi^{(3)} E(t)^3 = \frac{1}{4}\chi^{(3)} E_0^3 \cos(3\omega t) + \frac{3}{4}\chi^{(3)} E_0^3 \cos(\omega t) \tag{5}$$

onde foi utilizado a relação $\cos^3(\omega t) = 1/4\cos(3\omega t) + 3/4\cos(\omega t)$.

O primeiro termo na Equação (5) revela a geração do terceiro harmônico, ou seja, uma resposta do sistema na freqüência 3ω. Já o segundo termo, ainda mantém a mesma freqüência ω incidente, conseqüentemente, isto leva ao aumento da susceptibilidade de um pequeno incremento $\Delta\chi$ na freqüência ω dado por

$$\varepsilon_0 \Delta\chi = \frac{P_{NL}}{E(\omega)} = \frac{3}{4}\chi^{(3)} \left|E(\omega)\right|^2 = \frac{3}{2}\frac{\chi^{(3)}}{n_0 \varepsilon_0 c} I \tag{6}$$

onde P_{NL} é a polarização não-linear devido apenas às susceptibilidades de ordens superiores a $\chi^{(1)}$, sendo que $I = \frac{n_0 c \varepsilon_0}{2}\left|E(\omega)\right|^2$ é a intensidade incidente e n_0 é o índice de refração linear.

Como $n^2 = 1 + \chi$, então um aumento em χ leva a um pequeno incremento no índice de refração $\Delta n \approx (\partial n/\partial\chi)\Delta\chi = \Delta\chi/2n$. Assim:

$$\Delta n = \frac{3}{4}\frac{\chi^{(3)}}{{n_0}^2 \varepsilon_0^2 c} I = n_2 I \tag{7}$$

Então, a variação do índice de refração é dependente da intensidade

$$n = n_0 + n_2 I \tag{8}$$

n_2 é o chamado índice de refração não-linear.

A expressão (8) para o índice de refração é muitas vezes chamada de efeito Kerr óptico devido á analogia feita com o Efeito Kerr eletroóptico, no qual o índice de refração do material se altera em proporção ao quadrado do campo elétrico estático aplicado.

Usando a Equação (7) e a estimativa feita na Equação (4) temos que $n_2 \sim 10^{-16}\ cm^2/W$, que é um valor típico de n_2 no visível para vidros óticos. No entanto, como $n_0{}^2 = 1 + \chi^{(1)}$, então $\chi^{(1)}$ varia proporcionalmente com n_0, assim a condição $\chi^{(1)} \sim 1$ não pode ser válida sempre. Com isso, a ordem de magnitude de n_2 (em cm^2/W) é 10^{-16} a 10^{-14} em vidros, 10^{-17} a 10^{-7} em vidros dopados com terras raras ou semicondutores e 10^{-10} a 10^{-8} em materiais orgânicos.

2.1.1 Auto-focalização (self-focusing)

A principal e mais dramática conseqüência da origem do índice de refração não-linear é a chamada auto-focalização[20,21] ($n_2 > 0$). Resulta claro a partir da Equação (8) que a intensidade do laser produz uma alteração do índice de refração total que varia seguindo o perfil transversal do feixe, ou seja, $n(r) \propto I(r)$. Na grande maioria dos casos o feixe laser pode ser aproximado por um perfil espacial de intensidade gaussiano e o índice de refração é maior no eixo do que nas bordas do feixe. Este fato implica numa diferença de caminho óptico que aumenta na região central do feixe, relativo às bordas fazendo com que o meio se comporte como uma lente convergente, focalizando o feixe (Figura 1(a)). Porém, para o caso do efeito de auto-defocalização ($n_2 < 0$), devido a combinação de um valor negativo do índice de refração não-linear e um feixe que possui intensidade maior no seu centro, o meio se comporta como uma lente divergente, pois o índice de refração é menor relativo as extremidades (Figura 1(b)).

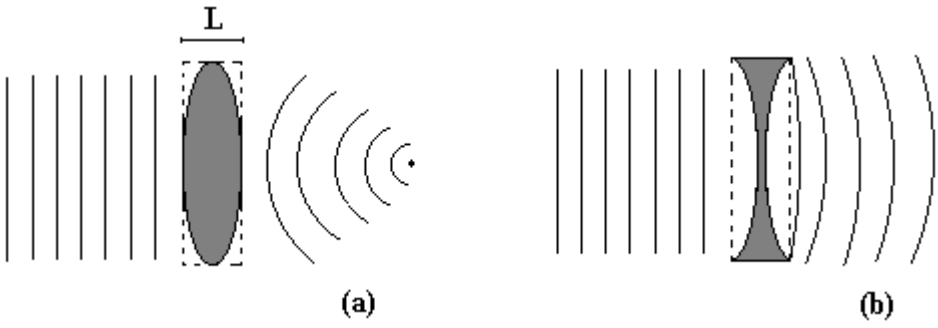

Figura 1- (a) Ilustração do efeito de auto-focalização, em que o meio não-linear (n_2>0) de espessura L, se comporta como uma lente convergente; (b) Efeito de auto-defocalização em que o meio (n_2<0) se assemelha a uma lente divergente.

O fenômeno de auto-focalização é bem conhecido desde os primeiros experimentos de óptica não-linear. Em materiais ópticos que apresentam não-linearidades de terceira ordem elevadas, podem induzir auto-focalização ou auto-defocalização, o que pode tanto destruir o material quanto interromper a propagação da luz. A observação desse fenômeno foi vista inicialmente apenas como um problema na transmissão de feixes de alta potência em materiais. Atualmente, estes fenômenos são estudados para aplicações tecnológicas em sistemas de comunicação, processamento de informações e chaveamento óptico [22].

2.1.2 Auto-modulação transversal de fase

Ao se propagar através de um meio não-linear de espessura L, um feixe com perfil transversal na intensidade induz uma variação de fase $\Delta\phi(r,z)$ devido à variação transversal no índice de refração $\Delta n(r,z)$ A variação de fase citada pode ser determinada por [20]:

$$\Delta\phi(r,z) = k\int_0^L \Delta n(r,z)dz \tag{9}$$

onde $\Delta n(r,z) \approx n_2 I(r,z)$.

2.1.3 Origens do índice de refração não-linear

O surgimento do índice de refração não-linear é devido a uma série de fenômenos físicos diferentes. As contribuições mais importantes podem ser dadas por [23]:

$$n_2 = n_2(eletrônico) + n_2(nuclear) + n_2(eletrostricção) + n_2(térmico)$$

O termo eletrônico é devido às deformações das órbitas dos elétrons e possui uma resposta praticamente instantânea quando comparado ao pulso de luz laser incidente, sendo da ordem de *fs* (comparado à freqüência de transições ópticas de elétrons ligados). Já o termo nuclear é caracterizado pelo tempo de resposta na ordem da escala temporal de movimentos nucleares, em torno de 1 *ps*. Esta resposta pode ser considerada lenta em relação à resposta eletrônica.

O efeito de eletrostricção é dado pela variação de índice de refração causado pela tensão induzida pelo campo elétrico do laser, ou seja, há um deslocamento das moléculas para as regiões de maior intensidade do campo elétrico ocasionando uma variação na densidade do meio. É esperado que este processo responda na escala de tempo *w/v* ou maior, onde *w* é o raio do feixe laser incidente e v é a velocidade do som no meio. Usando $w = 200\mu m$ e $v = 5\times10^5\ cm/s$, achamos que $w/v = 40ns$.

O efeito térmico produz uma mudança de índice de refração devido a um aquecimento no local em que a amostra absorve a luz, o tempo de resposta é mais longo (*ms*) e depende de propriedades térmicas do material.

Em sólidos dopados com íons terras raras e metais de transição, a redistribuição da população entre os níveis de energia excitado e fundamental tem um papel fundamental na variação do índice de refração. Este processo está relacionado ao coeficiente de absorção linear. Neste trabalho, consideramos apenas n_2 proveniente desses efeitos populacionais. Uma abordagem mais detalhada desse fenômeno físico está feita a seguir.

2.1.4 Índice de refração não-linear devido a efeitos populacionais

Estudos sobre o índice de refração não-linear (n_2) em sólidos dopados com íons terras raras e metais de transição são muito importantes devido às varias possíveis aplicações dos efeitos não-lineares e suas implicações no comportamento do laser.

Em materiais dopados com íons terras raras e metais de transição, a redistribuição da população entre os níveis de energia excitado e fundamental tem um papel fundamental na variação do índice de refração, Δn .Neste caso, esta redistribuição muda a susceptibilidade óptica total do sistema matriz + íon, χ , e, desta forma, seu índice de refração.

Vamos considerar um diagrama de níveis geral da Figura 2 que pode ser usado para um sólido dopado com Cr^{+3}, por exemplo. Supomos que o sistema é excitado a partir do estado fundamental G para um nível intermediário I_1 o qual relaxa rapidamente (~ ns) para um estado metaestável Ex (com tempo de vida τ_0 da ordem de milisegundos). No caso do Cr^{+3} temos a banda $^4T_2$ como nível intermediário (I_1) o nível metaestável ^2E (EX) decai diretamente para o fundamental (G). Na discussão que se segue, trataremos apenas as populações dos estados excitado metaestável N_{ex} e fundamental N_g, considerando as outras desprezíveis. Neste caso, o laser de bombeio não está em ressonância com a transição direta entre o estado fundamental e o metaestável, ou seja, não há efeitos ressonantes referentes ao nível laser superior. Sob o efeito do bombeio, uma parte da população permanece no estado fundamental enquanto outra parte vai para o nível excitado.

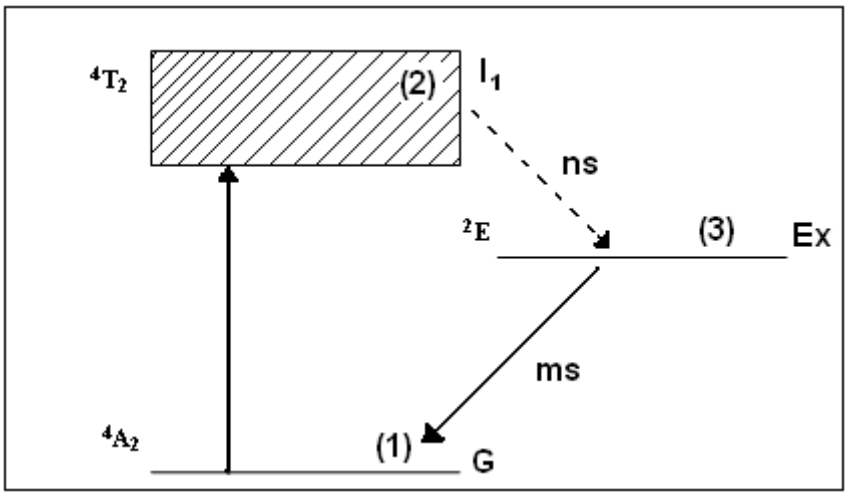

Figura 2 - Diagrama para um sistema de três níveis. As setas cheias indicam processos radiativos enquanto a tracejada indica processo não radiativo e extremamente rápido.

Podemos calcular as populações N_g e N_{ex}, correspondentes aos níveis G e Ex, através das equações de taxa. Uma vez que o tempo de vida do nível intermediário I_1 é muito pequeno (~ ns, logo muito menor que o tempo de vida de do estado Ex) consideramos N_{I1} ~ 0. Desprezamos o decaimento direto do nível I_1 para o nível G, pois a taxa de transição do nível I_1 para o nível Ex é muito maior, assim aproximaremos para um, a eficiência quântica de bombeio do nível Ex. Temos então as seguintes equações de taxa:

$$\frac{\partial N_g}{\partial t} = -\frac{\sigma I}{\hbar\omega} N_g + \frac{N_{ex}}{\tau_o} \tag{10a}$$

$$\frac{\partial N_{ex}}{\partial t} = +\frac{\sigma I}{\hbar\omega} N_g - \frac{N_{ex}}{\tau_o} \tag{10b}$$

$$N_0 = N_g + N_{ex} \tag{10c}$$

onde *I* é a intensidade de luz de freqüência ω excitando transição entre os níveis G e I_1, σ a Seção de choque desta transição e τ_0 o tempo de vida espontâneo no estado metaestável Ex. Se o sistema está no estado fundamental em $t = 0$, ou seja, $N_g = N_0$ e $N_{ex} = 0$, sendo a partir deste instante excitado através de um laser contínuo com intensidade *I*, das equações (10) obtemos para a população do nível excitado:

$$N_{ex}(t) = N_0 \left[\frac{I / I_s}{\left(1 + I/I_S\right)} \right] \left(1 - e^{-t/\tau} \right) \tag{11}$$

com

$$\tau = \frac{\tau_0}{1 + I / I_s} \tag{12}$$

e

$$I_S = \frac{\hbar\omega}{\sigma\tau_0} \tag{13}$$

Com isto, pode-se calcular a população do nível excitado a qualquer tempo e para qualquer valor da intensidade incidente. Quando *I* atinge I_S, a população do estado excitado atinge a mesma população do estado fundamental. I_S é a chamada intensidade de saturação.

As primeiras observações de mudanças no índice de refração de sólidos dopados devido a efeitos populacionais foram feitas por Baldwin e Riedel em 1967 [24,25]. Mais tarde, através de experimentos de mistura de onda[26] foi observado que esta redistribuição de população provocava uma mudança na susceptibilidade do meio da forma:

$$\chi = \chi_m + \chi_g + \frac{N_g}{N_0}\chi_g + \frac{N_{ex}}{N_0}\chi_{ex} \tag{14}$$

Onde χ_m é a susceptibilidade da matriz, $\chi_g(\chi_{ex})$ é a susceptibilidade da amostra quando todos os íons estão no estado fundamental (excitado). Entretanto, considerando as equações (10), esta relação pode ser reescrita como:

$$\chi = \chi_m + \chi_g + (\chi_{ex} - \chi_g)\frac{N_{ex}}{N_0} \tag{15}$$

O terceiro termo representa a contribuição de população na susceptibilidade total do sistema. Note que apesar de depender das susceptibilidades de primeira ordem do estado excitado e do fundamental, este termo é proporcional ao quadrado do campo elétrico da onda incidente (devido ao fator N_{ex}), de forma que ele pode ser considerado como um termo efetivo de susceptibilidade de terceira ordem [25]

$$\chi_{ef}^{(3)} = (\chi_{ex}^{(1)} - \chi_g^{(1)})\frac{N_{ex}}{N_0} \tag{16}$$

Para materiais laser dopados com íons emissores oticamente bombeados este termo pode produzir mudanças dependentes da intensidade na absorção e na dispersão do índice de refração complexo.

A dependência do índice de refração com a intensidade pode ser obtida através da Equação de Clausius –Mossoti [25] (no sistema CGS):

$$\frac{3}{4\pi}\frac{n^2-1}{n^2+1}=\chi_m+\chi_g+\frac{N_{ex}}{N_0}\left(\chi_{ex}-\chi_g\right) \tag{17}$$

Onde n é o índice de refração do material, $\chi_g\left(\chi_{ex}\right)$ é a susceptibilidade do estado fundamental (excitado) e χ_m é a susceptibilidade da matriz.

Supondo que $n=n_0+\Delta n$ com $\Delta n << n_0$ e substituindo a Equação (11) na (17), pode-se desenvolver esta expressão para escrever o índice de refração linear, n_0, e a variação do índice de refração, Δn, como:

$$n_0^2-1=4\pi f_L^2\left(\chi_m+\chi_g\right) \tag{18}$$

e

$$\Delta n=n_2 I_S\frac{N_{ex}}{N_0} \tag{19}$$

onde $f_L=\left(n_0^2+2\right)/3$ é o fator de Lorentz para correção do campo local. Quando $I << I_S$ e $t\to\infty$ então $\Delta n\approx n_2 I$, que é a expressão usual para o caso de amostras excitadas em intensidades bem abaixo da saturação. Na Equação (19) n_2 é o índice de refração não-linear complexo dado por:

$$n_2=\frac{2\pi}{n_0}f_L^2\left(\frac{\chi_{ex}-\chi_g}{I_s}\right) \tag{20}$$

Se χ_i for a susceptibilidade do nível i, então a polarizabilidade deste estado é dada por [26]:

$$\alpha_i=\mathrm{Re}\{\chi_i\}/N_0 \tag{21}$$

Já a Seção de choque de absorção deste nível é dada a partir da parte imaginária de χ_i através de:

$$\sigma_i = \frac{8\pi}{\lambda}\frac{f_L^2}{n_0}\frac{\mathrm{Im}\{\chi_i\}}{N_0} \tag{22}$$

o qual está relacionado com o coeficiente de absorção da intensidade da luz (lei de Beer) $A_j = N_o\sigma_j$[1*]. Convém observar que quando a radiação é ressonante com uma determinada transição j → k (a partir do estado j), $\mathrm{Im}\{\chi_j\}/N_o$ é proporcional a força de oscilador f_{jk} ou ao elemento de matriz da transição. Entretanto, a Equação (22) mostra que a Seção de choque σ_j depende não apenas de f_{ik} mas também da matriz hospedeira através de f_L.

Usando as relações (21) e (22) podemos escrever as partes real e imaginária de n_2 como função da diferença de polarizabilidade, $\Delta\alpha = \alpha_{ex} - \alpha_g$ e de Seção de choque de absorção, $\Delta\sigma = \sigma_{ex} - \sigma_g$ dos estados excitado e fundamental, respectivamente [26]:

$$n_2^{'} = 2\pi\frac{f_L^2}{n_0}N_0\frac{\Delta\alpha}{I_s} \tag{23}$$

e

$$n_2^{''} = \frac{\lambda}{4\pi}N_0\frac{\Delta\sigma}{I_s} \tag{24}$$

Assim, a refração e a absorção não-linear de um sistema típico dopado com íons emissores e bombeado oticamente dependem dos micro parâmetros $\Delta\alpha$ e $\Delta\sigma$, que estão diretamente relacionados com as propriedades do íon ativo. Nesta análise a contribuição da matriz para o índice de refração não-linear foi desprezada por ser algumas ordens de magnitude menor que a do íon dopante. De modo que a não-linearidade do íon é a dominante no sistema.

O efeito de auto-focalização gerado é conhecido como Lente de população (LP). A variação da fase induzida pelo efeito eletrônico é dada por [27-28]

[1*] neste texto vamos denotar A_j como o coeficiente de absorção do estado j. A notação usual na lei de Beer que usa α como coeficiente de absorção não será utilizada, pois denominamos como α a polarizabilidade.

$$\Delta\Phi_0 \approx \frac{2\pi}{\lambda} L_{ef} n_2^{'} I_o \tag{25}$$

onde L_{ef} é a espessura efetiva da amostra dada por $L_{ef} = 1 - e^{-AL} / A$, aqui L é a espessura da amostra e A é o coeficiente de absorção da amostra no comprimento de onda de bombeio. A consideração de L_{ef} é por causa da atenuação da intensidade devido à absorção linear, o resultado é proveniente da integração feita a partir da Equação (9).

3 A Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff

É bem conhecido que a integral de difração de Fresnel-Kirchhoff (IDFK) é muito usada em ótica linear, para o cálculo de Figuras de difração e também em aplicações práticas como o projeto de sistemas óticos. Neste caso a integral de difração é usada para tratar os efeitos da ótica física que, por exemplo, delimitam a resolução de um microscópio. Uma vez que estamos interessados em apresentar de forma quantitativa alguns dos fenômenos causados pela propagação de um feixe luminoso ao atravessar um material, e sua correspondente modificação no perfil da intensidade no campo de observação, este Capítulo tem por objetivo apresentar a IDFK. Vamos mostrar que o cálculo da propagação de um feixe gaussiano também pode ser feito usando a integral de difração. Além disso, utilizaremos este formalismo para o tratamento teórico da técnica Z-scan (Capítulo 3)

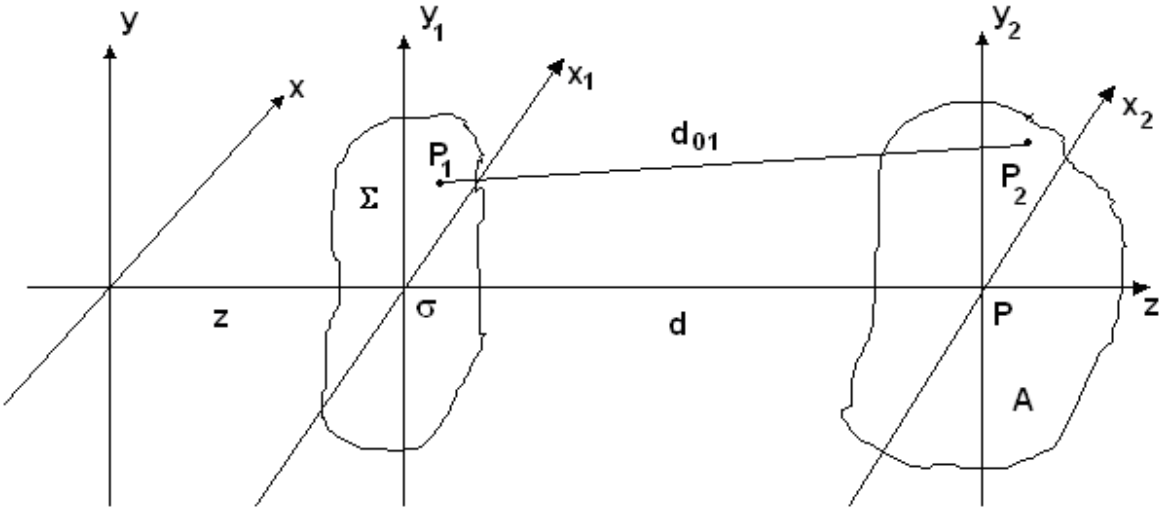

Figura 3 - Esquema representando a propagação da luz ao passar por um orifício em σ chegando até o plano do detector A

Consideremos inicialmente a difração de uma onda monocromática que é difratada por um orifício finito σ num plano opaco infinito Σ que se propaga na direção normal ao plano. Supondo que o orifício seja plano, sejam (x_1,y_1) as coordenadas no plano do orifício σ e (x_2,y_2) as coordenadas no plano de observação A, a uma distância d do orifício . A amplitude

do campo ε_a num ponto P_2 do plano de observação é dada pela soma do campo devido a todos os pontos P_1 do plano do orifício. Essa é a idéia básica do princípio de Huygens-Fresnel, segundo o qual cada ponto da frente de onda é o centro de uma perturbação que origina uma onda esférica secundária, e estas novas ondas esféricas interferem para definir a frente de onda num instante posterior. Matematicamente esta idéia é expressa pela Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff dada por [29]

$$\varepsilon_a(x_2, y_2) = \frac{i}{\lambda}\iint_\sigma \frac{e^{-ikd_{01}}}{d_{01}}\cos(\hat{n}\cdot\hat{d}_{01})\varepsilon_\sigma(x_1, y_1)dx_1dy_1 \qquad (26)$$

onde λ é o comprimento de onda da luz , $\hat{n}$ é o vetor normal à superfície Σ e d_{01} é a distância entre P_1 e P_2:

$$d_{01} = \left[d^2 + (x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2\right]^{1/2} = d\left[1 + \left(\frac{x_2 - x_1}{d}\right)^2 + \left(\frac{y_2 - y_1}{d}\right)^2\right]^{1/2}$$

Utilizando a expansão em série de Taylor: $(1+x)^{1/2} \approx 1 + x/2 - x^2/8 + ...$

$$d_{01} \approx d\left\{1 + \frac{1}{2}\left[\left(\frac{x_2 - x_1}{d}\right)^2 + \left(\frac{y_2 - y_1}{d}\right)^2\right]\right\} = d\left[1 + \frac{1}{2d^2}\left(x_2^2 + y_2^2 + x_1^2 + y_1^2 - 2x_2x_1 - 2y_2y_1\right)\right]$$

(27)

Onde consideramos que a distância d é muito maior que a dimensão linear da abertura σ, ou seja, $d >> r_1$, onde $r_1^2 = x_1^2 + y_1^2$. Com isso, podemos fazer a aproximação $d_{01} \cong d$ no

denominador de (26). Entretanto, na exponencial essa aproximação não é válida, visto que $\left|\vec{k}\right|$ é muito grande, da ordem de $10^5 cm^{-1}$ para luz visível.

Outra aproximação para (26) está relacionada ao fato de que a fonte de luz deve estar localizada centralmente em relação à abertura, de forma que $\cos(\hat{n}\cdot\hat{d}_{01})\cong 1$ (com precisão de 5% para ângulos menores que 18º [29]). Dessa forma a IDFK pode ser escrita como:

$$\varepsilon_a(x_2, y_2) = \frac{i}{\lambda d}\iint e^{-ik\cdot d_{01}}\varepsilon_\sigma(x_1, y_1)dx_1 dy_1 \tag{28}$$

Se o estudo for realizado no campo próximo, teremos a chamada Difração de Fresnel. Nesse caso, ao se calcular a distância d_{01}, todas as distâncias radiais, tanto do plano da abertura como do plano de observação, devem ser consideradas:

$$\varepsilon_a(x_2, y_2) = \frac{i}{\lambda d}e^{-i\xi}\iint Exp\left[-ik\left(\frac{x_1^2+y_1^2}{2d}-\frac{x_2x_1+y_1y_2}{d}\right)\right]\varepsilon_\sigma(x_1, y_1)dx_1 dy_1 \tag{29}$$

onde $\xi = kd\left(1+\frac{x_2^2+y_2^2}{2d^2}\right)$

Mas, no caso em que a difração é analisada no campo distante**,** temos a chamada Difração de Fraunhofer. Assim, como $d >> r_1$ os termos quadráticos de (27), relacionados ao plano de abertura, desaparecem e a IDFK para esse caso é dada por:

$$\varepsilon(x_2, y_2) = \frac{i}{\lambda d}e^{-i\xi}\iint Exp\left[ik\left(\frac{x_2x_1+y_1y_2}{d}\right)\right]\varepsilon(x_1, y_1)dx_1 dy_1 \tag{30}$$

Qualitativamente falando, a Difração de Fraunhofer ocorre quando as ondas incidente e difratada são planas. Este é o caso em que a distância *d* é tão grande que a curvatura da frente de onda pode ser desprezada. Na realidade, ondas planas não existem, pois carregam energia infinita, mas a suposição é válida na maior parte dos casos onde o diâmetro do feixe é muito maior do que o comprimento de onda.

Em problemas com simetria radial é viável a mudança de coordenadas cartesianas para cilíndricas. Essa transformação está feita no Apêndice A. Nesse sistema de coordenadas, para aproximação de Fresnel temos

$$\varepsilon_\sigma(r_2) = \frac{ik}{d} e^{-i\xi} \int_0^\infty e^{-ik\frac{r^2}{2d}} J_0\left(\frac{krr_2}{d}\right) \varepsilon(r) r dr \tag{31}$$

onde J_0 corresponde à função de Bessel de ordem zero. Para difração de Fraunhofer, a Equação (30) torna

$$\varepsilon_\sigma(r_2) = \frac{ik}{d} e^{-i\xi} \int_0^\infty J_0\left(\frac{krr_2}{d}\right) \varepsilon(r\ ) r dr \tag{32}$$

onde $r_2^2 = x_2^2 + y_2^2$ é a coordenada radial no plano de análise.

3.1 Consideração de campo próximo e distante

Um parâmetro bastante utilizado para distinguir se estamos trabalhando no campo próximo ou distante é o chamado número de Fresnel, N_F. Este parâmetro surge da análise da difração de uma onda monocromática com comprimento de onda λ, por um orifício circular de diâmetro *2a*, observado a uma distancia *d* do orifício. O número de Fresnel é definido como [30]

$$N_F = \frac{4a^2}{\lambda d} \tag{33}$$

A Figura 4 mostra a evolução do padrão de difração em função da distância *d*. A condição para campo distante é caracterizada quando aparece um mínimo de intensidade em um ângulo de difração fixo $\theta_d \sim 1{,}22\ \lambda/a$ (válido no caso de ângulos de difração pequenos, ou seja, $a \gg \lambda$). Isto ocorre para $d \gg 4a^2/\lambda$ que é equivalente a $N_F \ll 1$. Ou seja, no caso $N_F \gg 1$ o padrão de intensidade transmitida tem aproximadamente o tamanho do orifício (tal como a sombra da ótica geométrica) e para $N_F \ll 1$ o tamanho do feixe é inversamente proporcional ao tamanho do orifício. Esta relação se deve ao fato de que o campo transmitido tende a transformada de Fourier do orifício somente na condição de campo distante.

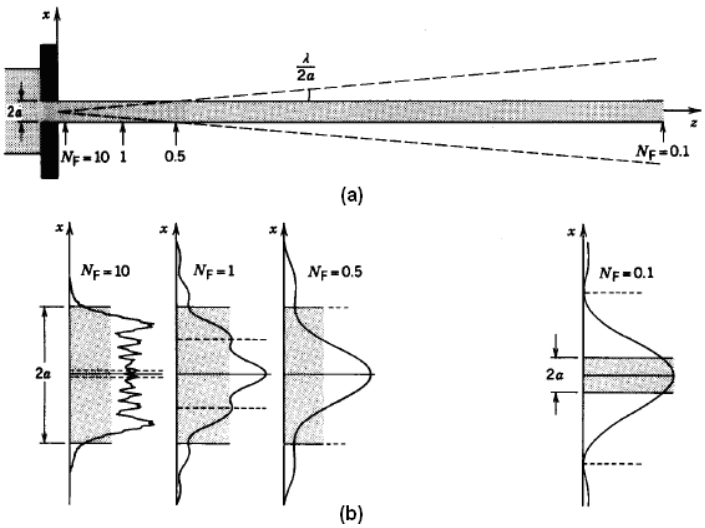

Figura 4 - Padrão de difração de uma abertura de diâmetro 2a. As curvas em (b) representam os padrões de difração obtidos nas posições em que se encontram as setas em (a) Figura retirada da referência 31.

3.2 Feixes gaussianos

Em geral, na saída de lasers comerciais, o feixe emitido é aproximadamente gaussiano no modo TEM_{00} (ordem zero), pois a distribuição radial de intensidade é gaussiana. Embora não demonstraremos aqui, a amplitude do campo elétrico é modulada por um polinômio de Hermite, sendo que existem feixes de ordens superiores, cujas distribuições de intensidade na direção radial não são tão simples. Com isso, feixes gaussianos são os mais simples e muitas vezes os mais desejados nas emissões de fontes laser. Assim como veremos nessa Seção, eles são bem caracterizados e sua evolução é suave e facilmente predita. A função de amplitude de um feixe gaussiano pode ser deduzida das condições de contorno da cavidade óptica onde a radiação laser é produzida [29], sendo as características geométricas da cavidade que determina o tipo de emissão obtida.

Considerando um feixe gaussiano de ordem zero se propagando na direção *z* (Fig.5), o perfil radial do campo elétrico e da intensidade podem ser dados por [29]:

$$\varepsilon(r,z) = \varepsilon_0(z)\frac{w_0}{w(z)}\exp[-\frac{r^2}{w(z)^2}]\times\exp[-\frac{ikr^2}{2R(z)} - i\tan^{-1}(z/z_c)] \tag{34}$$

$$I(r,z) = \left|\varepsilon(r,z)\right|^2 = I_o\exp(-2r^2/w(z)^2) \tag{35}$$

onde *R(z)* é o raio de curvatura da frente de onda, *w(z)* é o raio do feixe (medido do centro $r=0$ ao ponto onde a intensidade é $1/e^2$ de seu valor máximo), w_0 é a cintura do feixe no ponto *z* de máxima intensidade axial (onde o raio de curvatura é infinito) e $z_c = n_0\pi w_0^2/\lambda$ é a chamada distância confocal ou parâmetro Rayleigh do feixe em que n_0 é o índice de refração do meio ($n_0 \approx 1$, para o ar). O parâmetro z_c representa a distância que o feixe percorre até que sua área transversal dobre a partir da posição da cintura (w_0).

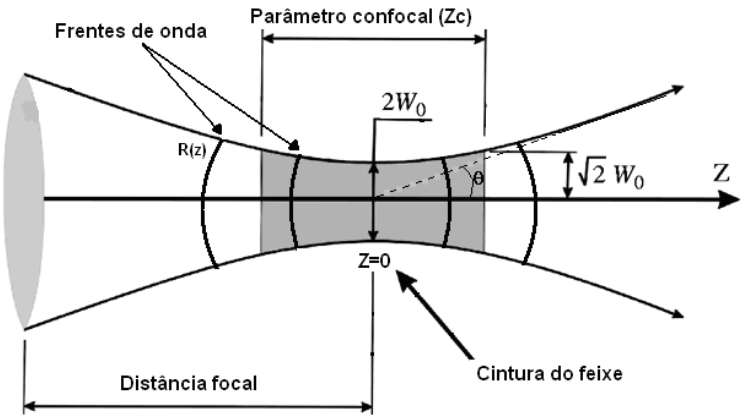

Figura 5 - Propagação de um feixe Gaussiano

A cintura do feixe e o raio de curvatura variam com a coordenada z da seguinte forma[29]:

$$w^2(z) = w_0^2\left[1+\left(\frac{z}{z_c}\right)^2\right] = w_0^2\left[1+\bar{z}^2\right] \tag{36}$$

$$R(z) = z\left(1+\frac{z_c^2}{z^2}\right) = z\left(1+\frac{1}{\bar{z}^2}\right) \tag{37}$$

onde foi nomeado o termo $\bar{z} = z/z_c$.

A primeira parte do lado direito da Equação (34) está relacionada com a amplitude do campo. Quando a coordenada radial *r* é modificada, então a amplitude decai exponencialmente. Para *r = 0*, a amplitude depende de z, ou mais precisamente inserindo (36) em (34) vemos que a amplitude decai com z. Quando z é grande, $R(z) \to z$, ou seja, o feixe se aproxima de uma onda esférica partindo da cintura e *w(z)* é aproximadamente proporcional a *z*. Por isso, podemos falar em um ângulo de divergência do feixe no campo distante $\theta \approx w(z)/z \approx \lambda/\pi w_o$ (Figura 5).

É importante notar que o produto de θ e w_0 depende apenas do comprimento de onda. No entanto, os feixes reais não são perfeitamente gaussianos e para quantificar esse desvio,

foi proposto o fator M^2 [29], onde o produto de θ e w_0 será $M^2\lambda/\pi$. Assim, um feixe gaussiano tem $M^2 = 1$; um feixe real possui $M^2 > 1$. Um grande valor de M^2 significa que o feixe diverge rapidamente (baixa colimação) e é mais difícil focalizá-lo a um spot pequeno.

A segunda metade da Equação (34) está ligada à fase da onda. O termo dado por $\tan^{-1}(z/z_c)$ é a chamada fase de Guoy, que é descrita mais detalhadamente nas páginas 682-685 da referência 29. Porém, o termo mais interessante é o que possui *R(z)*, que corresponde ao raio de curvatura da frente de onda. Quando a onda se propaga, a curvatura do feixe vai mudando conforme mostra as Figuras 5 e 6. Para *z = 0* o raio de curvatura é infinito, em que a frente de onda é plana. O valor mínimo de *R(z)* ocorre para $z = \pm z_c$, onde $R_{\min} = 2z_c$. Para *z>0* o raio de curvatura é positivo e se a luz caminha para a direita temos a divergência do feixe. Por outro lado para *z<0*, o raio de curvatura é negativo e o feixe estará convergindo.

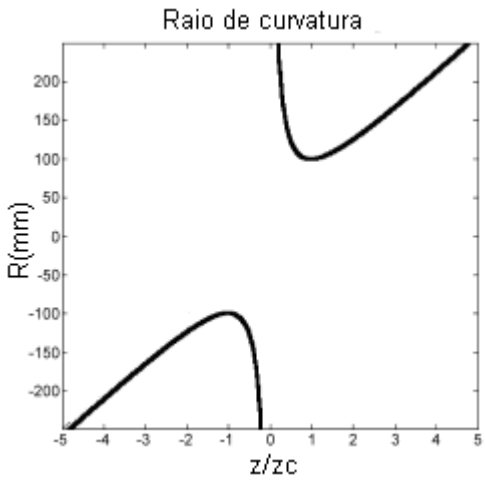

Figura 6 - Raio de curvatura de um feixe gaussiano que possui zc=50mm na região da posição da cintura, localizada em z=0. Figura adaptada da referência 32.

3.2.1 Aplicação da IDFK para feixes gaussianos

Considerando um meio linear, mostraremos que a integral de difração de Fresnel-Kirchhoff pode ser usada para calcular a propagação de um feixe gaussiano. Inserindo o campo elétrico incidente (tomaremos apenas a coordenada *x* para simplificação dos cálculos, mas em *y* as equações são similares) $\varepsilon(x_1) = Exp\left[-\left(x_1/w_1\right)^2\right]$ na IDFK e utilizando a aproximação de Fresnel, temos:

$$\varepsilon(X) = \frac{iw_1}{\lambda d}\int e^{-X_1^2} Exp\left[\frac{-ikw_1(X - X_1)^2}{2d}\right]dX_1 \tag{38}$$

onde $X1 = x_1/w_1$ sendo w_1 a cintura do feixe no plano de entrada e *d* a distancia entre o plano de incidência e o plano de observação.

A integral acima, calculada entre limites infinitos, possui solução conhecida dada por

$$\varepsilon(X) = \frac{iw_1}{\lambda d}\int_{-\infty}^{\infty} e^{-X_1^2} e^{-ia(X-X_1)^2} dX_1 = \frac{iw_1}{\lambda d}\frac{e^{-\frac{aX^2}{a-i}}}{\sqrt{1+ia}} \tag{39}$$

Onde escrevemos $a = kw_1^2/2d = z_c/d$. O fator exponencial pode ser manipulado para conseguirmos separar as partes real e imaginária.

$$-\frac{aX^2}{a-i} = -\frac{a^2+ai}{1+a^2}\times\frac{x^2}{w_1^2} = -\left(\frac{ik}{2R}+\frac{1}{w^2}\right)x^2$$

onde foi feita a suposição de que no campo distante o feixe deve continuar apresentando forma gaussiana. De (39) Obtemos as relações para a cintura do feixe *w*, assim como para o raio de curvatura *R*

$$w^2 = w_1^2\left(\frac{1+a^2}{a^2}\right) = w_1^2\left[1+\left(\frac{2d}{kw_1^2}\right)^2\right] = w_1^2\left[1+\left(\frac{d}{z_c}\right)^2\right]$$

$$R = \left(\frac{1+a^2}{a}\right)\times\frac{kw_1^2}{2} = d\left(1+\frac{z_c^2}{d^2}\right)$$

Assim, generalizando *d* para qualquer z, e w_1 para uma cintura qualquer, w_0, obtemos as relações usuais (36) e (37).

4 Técnica Z-scan

A técnica de varredura z ou mais comumente chamada Z-scan, é extensamente utilizada para medidas do índice de refração não-linear n_2, relacionado com a susceptibilidade não-linear de terceira ordem (χ^3) e medidas da absorção não-linear, que pode estar relacionado com absorção de dois fótons, por exemplo. Diversos trabalhos já foram realizados para diferentes materiais como cristais dopados com íons[33], vidros[34], semicondutores[35], materiais orgânicos[36]. Existem diversas técnicas usadas para tais medidas, podemos citar: mistura degenerada de quatro ondas[37], interferometria não-linear[38], experimentos fotoacústicos[39], geração de terceiro harmônico[40] e medidas de distorção de feixe[41]. Mas a técnica de Z-scan fornece uma detecção sensível e direta, utilizando um aparato experimental mais simples. A idéia básica consiste em correlacionar a variação de intensidade em uma abertura no plano de observação com a variação de fase induzida pela incidência do laser.

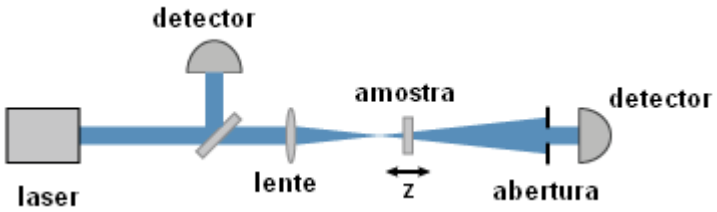

Figura 7 - Aparato básico para medidas z-scan

A Figura 7 mostra um esquema experimental básico para medidas z-scan. Luz proveniente de um laser passa por um divisor de feixes sendo medida por um primeiro detector de referência de modo que podemos determinar a fração de potência transmitida pelo diafragma (Esse procedimento também é utilizado para ter controle quanto às flutuações da potência do laser, porém isto é inviável, pois na maior parte dos casos é impossível saber a relação entre a luz incidente e a transmitida, veremos como resolver esse problema para medidas de n_2 provenientes de fenômenos lentos).

A luz é então focalizada por uma lente que produz um foco na região em que se encontra a amostra. A amostra então realiza uma varredura (scan) nessa região. A luz que

passa pela amostra adquire uma fase adicional não-linear que muda o raio de curvatura do feixe fazendo com que a divergência do feixe mude em cada posição da amostra. Essas mudanças serão ‘sentidas’ se colocarmos uma abertura na frente do último detector. Esse caso é chamado de ‘Z-scan com fenda fechada’. Pode-se ainda, fazer medidas sem a abertura (ou íris). Nesse caso, as medidas Z-scan podem ser consideradas como um aprimoramento de medidas de transmitância, para determinação da absorção saturável. Neste trabalho, estamos mais interessados em analisar mudanças de índice de refração, portanto tratamos apenas o primeiro caso.

4.1 Fundamentos da técnica

Nesta Seção descreveremos o princípio básico do funcionamento da técnica Z-scan para “fenda fechada”. Um feixe laser com perfil de intensidade gaussiano incide numa amostra não-linear tipo Kerr (que possui índice de refração dependente da intensidade). A amostra varre o eixo *z* percorrendo a região focal do feixe sendo detectado em cada ponto a potência transmitida $P(z)$ por uma abertura finita colocada a uma certa distância em relação à amostra.

O resultado de uma medida Z-scan se expressa em termos da Transmitância normalizada $T(z)$ definida como a razão entre $P(z)$ e a potência transmitida com a amostra longe do foco, onde a intensidade é suficientemente pequena podendo desprezar qualquer efeito não-linear: $T(z) = P(z)/P(z >> z_c)$.

A Figura 8 mostra um sinal típico de z-scan para amostra com n_2 negativo ou positivo. Quando a amostra está longe do foco, podemos considerar que $T(z) = 1$, onde a refração não-linear é desprezível. Assim como para $z>>z_c$ a transmitância normalizada tende novamente ao valor *1*.

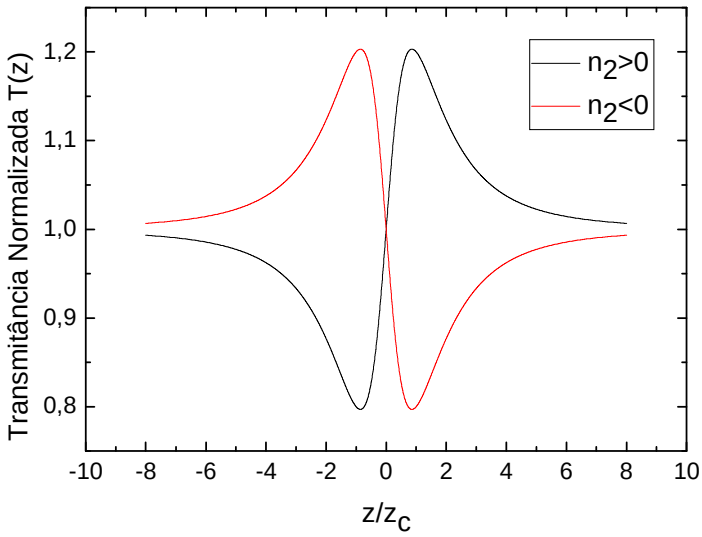

Figura 8 - Traço característico da técnica Z-scan com $n_2 > 0$ linha preta, e $n_2 < 0$ linha vermelha

Quando o feixe gaussiano passa pela amostra ele adquire uma fase adicional não-linear dada por

$$\Delta\phi(\rho,\bar{z}) = \Delta\phi_0(\bar{z})\exp\left(-2\rho^2\right) \tag{40a}$$

$$\Delta\phi_0(\bar{z}) = \frac{\Delta\Phi_0}{(1+\bar{z}^2)} \tag{40b}$$

e

$$\Delta\Phi_0 = kL_{ef}\, n_2\left(2P/\pi w_0^2\right) \tag{40c}$$

pois em (40b) $\Delta\phi_0(\bar{z}) = kL_{ef}\, n_2\left(2P/\pi w^2(\bar{z})\right)$, o termo em parêntesis representa a intensidade axial a qual depende de $\bar{z}$ uma vez que w depende de $\bar{z}$ de acordo com a Equação (36).Onde escrevemos o parâmetro adimensional $\rho = r/w$. Para tratar o que ocorre quando a amostra se aproxima da região focal, é útil recorrer à expressão para o campo elétrico de um feixe

gaussiano dado pela Equação (34), onde podemos reescrevê-la inserindo a fase adicional não-linear

$$\underbrace{\varepsilon(r,z)=\varepsilon_0(z)\frac{w_0}{w(z)}\exp[-\frac{r^2}{w(z)^2}]}_{amplitude}\times\underbrace{\exp[-\frac{ikr^2}{2R(z)}-i\tan^{-1}(z/z_c)-i\Delta\phi(r,z)]}_{fase} \quad (41)$$

Deve-se perceber que a fase está relacionada com o raio de curvatura, sendo que antes do foco, $R(z)<0$, depois do foco $R(z)>0$ e exatamente no foco $R(z)\to\infty$. Considerando o caso em que $n_2 > 0$, onde a lente induzida é convergente, à medida em que a amostra se aproxima do plano focal do feixe incidente, o efeito não-linear torna mais forte, ou seja, a fase não-linear adicional tende a aumentar a curvatura da frente de onda do feixe gaussiano como mostrado na Figura 9 e conseqüentemente, o efeito de lente induzida na amostra. Com isso, em $z < 0$ o feixe focaliza antes do plano $z = 0$, tornando-se mais expandido na posição do diafragma. Portanto, a transmitância medida tende a diminuir.

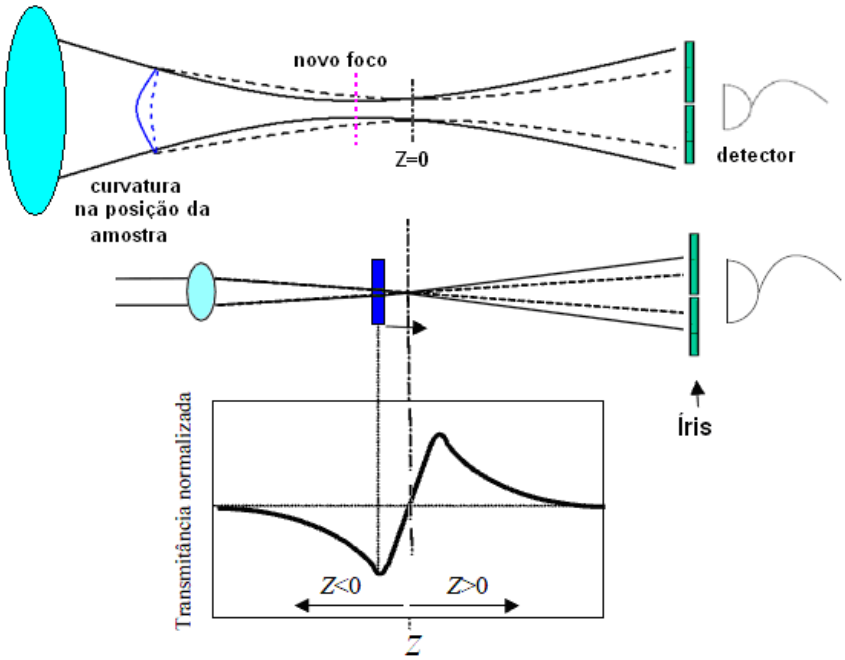

Figura 9 - Experimento Z-scan com $n_2 > 0$ quando a amostra se situa antes do foco.

Por outro lado, após o foco ($z > 0$) a fase adicional não-linear tende a "achatar" a frente de onda, $R(z)$, onde o feixe que sai da amostra parece um feixe que propagou de uma cintura mais larga do que a cintura dada pela propagação linear; esse feixe conseqüentemente diverge menos ($\theta \approx \lambda / \pi w_o$) assim mais energia passa pela abertura no campo distante.

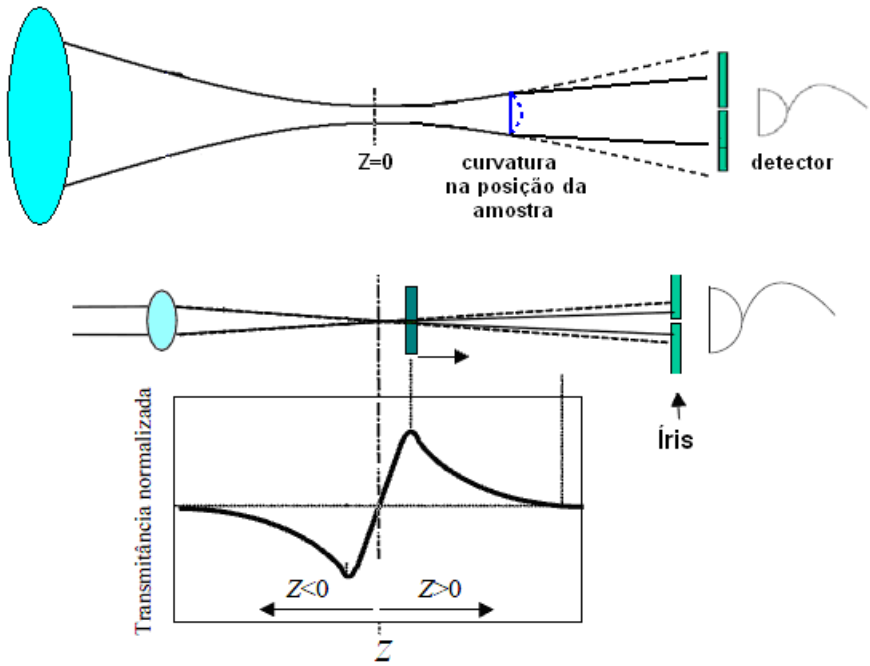

Figura 10 - Experimento Z-scan com $n_2 > 0$ quando a amostra se situa depois do foco.

Esta análise qualitativa permite inferir que a transmitância como função de z apresente um mínimo em $z < 0$ e um máximo em $z > 0$. Isso não é novidade quando se considera apenas o feixe gaussiano, um mínimo para R(z) ocorre em $z = \pm z_c$, onde $R_{\min} = 2z_c$; como estamos considerando alterações em R(z), o pico e o vale são esperados, porém, uma análise quantitativa deve ser feita a fim de saber em quais posições em z estão localizados. Exatamente no foco temos que $R(z) \to \infty$, então não haverá alterações quanto à curvatura da frente de onda e o sinal da transmitância normalizada é *1*.

Repetindo o argumento anterior para o caso de um meio com n_2 negativo, podemos verificar que o comportamento será exatamente oposto daquele do caso $n2 > 0$; ou seja, para $n2 < 0$, o meio se comporta como uma lente divergente e as posições do máximo e do mínimo da transmitância estão invertidas em relação ao caso anterior. Está, portanto demonstrado que a técnica de varredura-z é sensível à variação de índice de refração do meio e, ainda mais, ao sinal do coeficiente n_2.

Embora a técnica Z-scan permita determinar com simplicidade e relativa precisão o valor e o sinal de n_2, não é possível determinar a origem física que deu origem a ele. Como foi analisado na Seção (2.1.3), existem muitos processos físicos que levam ao surgimento do índice de refração não-linear, porém, cada qual em um tempo de resposta característico. Com isso, se o experimento for resolvido temporalmente, é possível distinguir dentre os vários fenômenos qual é o causador da distorção de fase que se está medindo.

Para o caso de absorvedores saturáveis lentos com altas não-linearidades como alguns cristais dopados (rubi, por exemplo) pode-se determinar o tempo de resposta de n_2 pelo acompanhamento da evolução da auto-modulação devida a efeitos populacionais (Seção 2.1.4). O mesmo ocorre para n_2 causado por efeito térmico, onde não é necessário conseguir uma alta taxa de modulação da luz, podendo ser realizada por choppers, por exemplo. Assim como os detectores não precisam ser tão rápidos (> 200ns). Esses experimentos foram feitos nesse trabalho e serão mostrados posteriormente.

Em casos de não-linearidade proveniente de processos ultra-rápidos (distorção da nuvem eletrônica, por exemplo), devem-se utilizar lasers com pulsos ultracurtos com altas intensidades [41,42].

4.2 Diversas considerações

Para realização correta do experimento z-scan, condições experimentais devem ser cuidadosamente controladas. A seguir, discutiremos o impacto de alguns parâmetros experimentais. Porém, parâmetros como fator de abertura no plano do detector ou a questão do campo distante serão discutidos no Capítulo 5.

4.2.1 Amostras finas

Em geral, estudos Z-scan são realizados com “amostras finas”. A validade das análises de amostras finas requer que o comprimento da amostra L seja muito menor do que o parâmetro Rayleigh z_c, o qual dá uma medida da escala de distância sobre a qual o perfil do feixe muda. É preciso lembrar que à medida que o feixe gaussiano se propaga sua cintura w e o raio de curvatura R variam ao longo da amostra de acordo com as equações (36) e (37). Por isso a condição $L << z_c$ deve ser satisfeita para que tais variações possam ser desprezadas.

Na presença de refração não-linear, o perfil do feixe pode mudar em uma escala de distância mais curta, onde o requerimento $L << z_c / |\Delta\Phi_0|$ se torna necessário quando $\Delta\Phi_0$ é maior do que 1.

4.2.2 Efeitos de saturação

O modelo teórico desenvolvido para z-scan apresentado, só é válido para perfil de fase gaussiano. No caso de um meio que apresente não-linearidade saturável (Seção (2.1.4)), o perfil de índice de refração induzido deixa de ser gaussiano e passa a apresentar um achatamento no centro, (Figura 11), fazendo com que a lente induzida focaliza numa posição diferente daquela relativa à lente não saturada, levando a erros nas medidas. Para meios desse tipo, a variação de índice de refração em função da intensidade incidente é dada a partir da Equação (19) como:

$$\Delta n(r) = \frac{n_2 I(r)}{1 + I(r)/I_S} \tag{42}$$

No caso em que a intensidade incidente é muito menor do que a intensidade de saturação, ou seja, $I << I_S$, a variação de índice de refração induzida é gaussiana e tende a mesma forma do perfil de intensidade do laser.

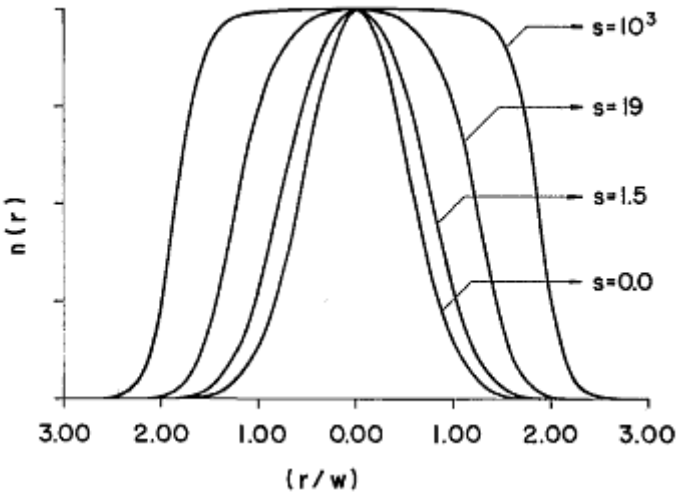

Figura 11 – Perfil do índice de refração n(r). Aqui considerou-se o parâmetro de saturação s=I/Is, sendo que para s=0 possui perfil gaussiano. Figura retirada da referência 38.

A partir de simulações numéricas, Oliveira *et al* [43] conseguiram obter expressões aproximadas que corrigem a transmitância devido à saturação. O resultado encontrado para "fenda fechada" com um feixe no campo distante é dado por

$$\Delta T_{pv} \approx \frac{0.406(1-S)^{0,25(1+I/I_S)^{(1-S)}}\,\Delta\Phi_0}{(1+I/I_S)^{0,525}} \tag{43}$$

onde $\Delta\Phi_0 = (2\pi/\lambda)L_{ef}\, n_2^{'} I_0$ é dado como no caso não saturado e S é a transmitância linear na íris.

4.2.3 Perfil espacial do feixe laser

O conhecimento do perfil do feixe laser é particularmente importante. Especialmente para medidas de índice de refração não-linear usando a técnica Z-scan, a qual se baseia em medir e analisar distorções induzidas no perfil espacial do feixe. Efeitos com feixes não-gaussianos têm sido analisados por Hermann[44], enquanto Mian[45] e Wicksted [46] têm medido a não-linearidade de vidros silicatos usando um feixe aproximadamente gaussiano elíptico.

Como discutido na Seção (3.2), o perfil espacial do feixe laser que não é necessariamente gaussiano pode ser caracterizado em termos do valor de M^2. O valor de M^2 é efetivamente a razão da divergência do feixe pela divergência de um feixe gaussiano que possui o mesmo raio de cintura. Para um feixe gaussiano $M^2 = 1$ e para todos outros perfis $M^2 > 1$ em um meio linear. Uma proposta para medição de M^2 usando a própria técnica Z-scan foi feita por Agnesi [47].

4.2.4 Efeitos de Etalon

Em amostras que não possuem películas anti-refletoras, podem surgir problemas relacionados com a formação de etalons Fabry-Perot de baixa finesse [48]. A transmissão de um etalon é descrita pela famosa função de Airy $T_{FP} = 1/1 + F\,sen^2(\phi/2)$,onde ϕ é um deslocamento de fase ($\phi = 4\pi n_0 L/\lambda$), e F é o chamado coeficiente de finesse, que relaciona a refletância da superfície $F = 4R/(1-R)^2$

Para luz se movendo de um índice de refração n_i para n_0, a refletância, quando a incidência é normal à superfície, é dada por $R = (n_0 - n_i / n_0 + n_i)^2$

Quando parâmetros tais como comprimento da amostra ou o índice de refração do meio variam, então existe uma mudança na transmissão T_{FP}. Por exemplo, em amostras líquidas, devido ao aquecimento causado pela incidência do laser, o caminho óptico (n_0L) é alterado ocasionando uma variação indesejável na transmissão. Efeitos de reflexão em meios auto-focalizadores têm sido examinados por Sutherland [49]. Assim, para medidas confiáveis de Z-scan, é recomendado que as superfícies da amostra seja coberta com uma película de anti-reflexo (para amostra com índice de refração realmente alto) . Mas em muitos casos, uma simples inclinação da amostra em relação ao feixe incidente é suficiente para evitar a realimentação do feixe.

4.3 Extensões da técnica z-scan

Diversas extensões da técnica Z-scan tem sido propostas a fim de aumentar suas aplicabilidades. Podemos citar Z-scan eclipsante (EZ-scan)[50] em que o centro do feixe é bloqueado no campo distante por um disco circular fazendo com que aumente a sensibilidade do experimento convencional por um largo fator. Também podemos citar técnicas Z-scan por reflexão[51] em que o feixe refletido por uma amostra é projetado em uma abertura na frente do detector.

Essas técnicas estão fora do escopo deste texto, porém, trataremos a seguir uma extensão mais detalhadamente, a chamada técnica Z-scan de duas cores ou Z-scan com dois feixes.

4.3.1 Z-scan com duas cores

A utilização de um feixe de prova para experimentar os efeitos não-lineares causados pela incidência de outro feixe (o chamado feixe de excitação) é empregada para dedução de informações que não são acessíveis quando se utiliza a geometria de um único feixe. Existem muitos trabalhos em que foi utilizado o esquema de bombeio e prova. A mais significante aplicação disso está relacionada com a dinâmica ultra-rápida de fenômenos ópticos não-

lineares. Outra significante aplicação está relacionada com a técnica CPO (do inglês *Coherent Population Oscilations*) para o estudo da propagação de luz lenta e ultra rápida em cristais[52] . A geometria básica utilizada é mostrada na Figura 11, onde os feixes de excitação e prova se propagam colinearmente. Depois de passarem pela amostra, o feixe de prova é então separado e analisado. Devido ao fato dos feixes se propagarem colinearmente, somente estaremos aptos a separá-los se o comprimento de onda ou a polarização deles for diferente.

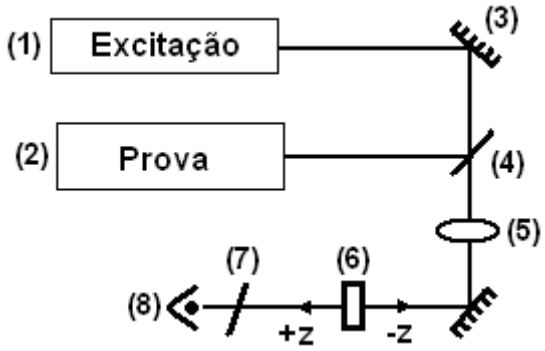

Figura 12 – Aparato experimental utilizado nas medidas de Z-scan com dois feixes. (1) laser de excitação,(2) laser de prova, (3) espelhos,(4) divisor de feixes, (5) lentes (6) amostra, (7) filtro para o feixe de excitação,(8) fotodiodo.

Esse esquema é conhecido como Z-scan de duas cores[12-13,53] e pode ser usado para medir n_2 induzido em comprimentos de onda que não bombeiam eficientemente o nível excitado de um material (feixe de prova), utilizando para isso um laser de excitação em comprimento de onda diferente, como foi feito nesse trabalho para um cristal de rubi. Nesse caso o índice de refração não-linear é chamado n_2 não-degenerado, devido ao fato de se utilizar comprimentos de onda diferentes para excitar e provar o efeito. A análise, no entanto, naturalmente se torna um pouco mais complicada do que o Z-scan convencional, visto que, além da dependência dos parâmetros já discutidos para geometria de feixe único, também depende de parâmetros novos como a geometria de ambos os feixes (como a razão das cinturas dos feixes de prova e excitação, por exemplo) e uma possível separação focal devido a aberração cromática das lentes[12,53].

5 Resultados teóricos e discussões

5.1 IDFK em Z-scan

Sheik-Bahae[1] utilizou o método de decomposição gaussiana (DG) introduzido por Weaire *et al* [3] para quantificar a transmitância normalizada no campo distante em função da distância percorrida pela amostra. O método DG consiste em decompor o campo elétrico no plano de saída da amostra em uma somatória de feixes gaussianos utilizando uma expansão em série de Taylor do termo de fase não-linear $e^{i\Delta\phi(r,z)}$.

Nesse trabalho, aplicamos a integral de difração de Fresnel-Kirchhoff para descrever quantitativamente o experimento de Z-scan, onde analisamos não somente o caso da técnica convencional que é feita no campo distante considerando apenas o centro do feixe, mas também fizemos considerações pouco mais abrangentes. Simulações utilizando a IDFK através do programa Wolfram Mathematica 7 foram feitas para analisar os experimentos de varredura *z* no campo próximo e no campo distante para feixe único e duplo. Para isso, consideramos um feixe gaussiano com campo elétrico $\varepsilon(r,z)$ (Equação 34) incidindo em uma amostra fina tipo Kerr, como mostrado na Figura 13. Na saída da amostra o campo é dado por $\varepsilon'(r,z) = \varepsilon(r,z)e^{i\Delta\phi(r,z)}$, onde desprezamos a absorção linear. Nesse caso, queremos resolver o seguinte problema: dada a amplitude do campo $\varepsilon'(r,z)$, no plano na saída da amostra, como calcular a amplitude do campo no plano de observação $\varepsilon_a(r_2,z)$? Isto pode ser feito simplesmente inserindo $\varepsilon'(r,z)$ dentro do integrando das equações (31) e (32), que definem a medida no campo próximo ou no campo distante.

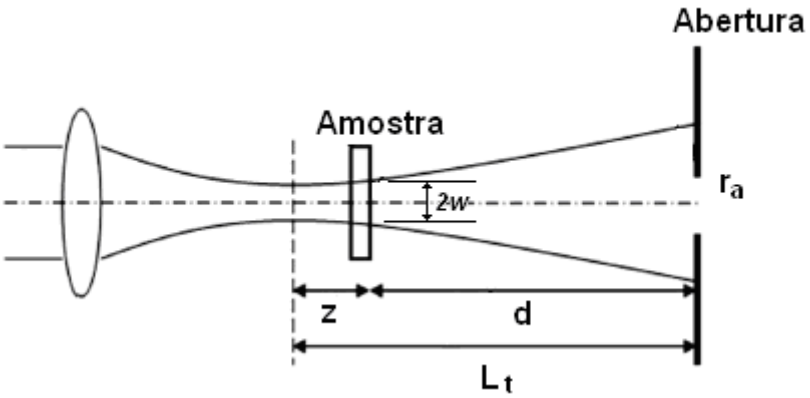

Figura 13 – Feixe gaussiano incidindo na amostra situada a uma distância z da cintura do feixe e d do plano da abertura (detector).

Supomos que este feixe gaussiano incide na amostra a uma distância *z* da origem (que definimos sendo o ponto z = 0 onde se situa a cintura do feixe gaussiano), com uma cintura *w*, tal como mostra a Figura 13.

Utilizando a aproximação de Fresnel, temos que a amplitude complexa do campo elétrico no plano do detector, ou seja, $\varepsilon_\alpha(r_2,z)$, pode ser obtida em função do campo elétrico na saída da amostra, ou seja, em função de $\varepsilon'(r,z) = \varepsilon(r,z)e^{i\Delta\phi(r,z)}$. Escrevendo em coordenadas cilíndricas (Apêndice C) a fim de aproveitar a simetria do problema e usando $\rho = r/w$ temos:

$$\varepsilon_\alpha(r_2) = \frac{ik}{d}e^{-i\xi}\int_o^\infty e^{-ikr^2/2d}\varepsilon'(r,z)J_o(\frac{kr\ r_2}{d})r\ dr = \frac{ik\varepsilon_o\omega_o}{d}e^{-i\xi}\int_o^\infty e^{-\rho^2}e^{-i(\gamma\rho^2+\Delta\phi)}J_o(\beta\rho)\rho d\rho$$

(44)

onde $k = 2\pi/\lambda$ é o módulo do vetor de onda, r_2 a coordenada da abertura no plano do detector, $\xi = kd\left(1 + r_2^2/2d^2\right)$. O parâmetro γ depende de z e é dado por:

$$\gamma(z) = \frac{kw(z)^{\ 2}}{2}\left(\frac{1}{d} + \frac{1}{R(z)}\right) \tag{45}$$

Esse termo geralmente é aproximado no caso de campo distante desprezando o fator $1/d$. Assim foi feito por Sheik-Bahae *et al* [1] no artigo introdutório sobre Z-scan. Em (45), $R(z)$ é o raio de curvatura do feixe em *z*. Considerando as equações para a cintura do feixe *w(z)* (Equação (34)) e para o raio de curvatura *R(z)* (Equação (35)), podemos escrever:

$$\gamma(z) = \left(1 + \bar{z}^2\right)/\bar{d} + \bar{z} \tag{46}$$

Em que $\bar{z} = z/z_c$. Outro parâmetro importante na Equação (40) é β, que também depende de z e é dado por:

$$\beta(z) = \frac{kr_2 w(z)}{d} = \beta = 2\rho_2(1 + \bar{z}^2)\sqrt{1 + \bar{d}^2}\Big/\bar{d} \tag{47}$$

onde $\bar{d} = d/z_c$ e $\rho_2 = r_2/w_2$ em que w_2 é o raio do feixe no plano do detector (íris).

A integral de (44) tem solução analítica mais simples apenas no caso particular $\Delta\phi(\rho) = 0$. No entanto, se supormos que $\Delta\phi(\rho)$ é pequeno, pode-se fazer a aproximação $e^{-i\Delta\phi} \approx 1 - i\Delta\phi$, simplificando significativamente os cálculos. Assim, podemos reescrever (44) como

$$\varepsilon_a(\rho_2) = \frac{ikw_0 w(z)}{d}\varepsilon_o e^{-i\xi}\int_o^{\infty} e^{-\rho^2(1+i\gamma)}(1 - i\Delta\phi(\bar{z})e^{-2\rho^2})J_o(\beta\rho\ )\rho d\rho \tag{48}$$

Desta maneira, através de (48) podemos obter resultados analíticos para a transmitância em função da distância percorrida pela amostra. A aproximação é feita considerando $|\Delta\phi(\rho)| < \pi$ [1]. Resultados numéricos para $|\Delta\phi(\rho)| > \pi$, utilizando a teoria de difração, foram obtidos por Yao *el al* [9] e analiticamente por Samad *el al* [2], Kwak [5] e Hermann[6], analisando a assimetria das curvas de Z-scan.

5.1.1 Feixe único no campo distante

A consideração de campo distante está relacionada com o número de Fresnel, onde $N_F << 1$ (Seção (3.1)). Quando consideramos feixe gaussiano incidindo na amostra, a abertura 2*a* da Equação (31) é dada agora pelo diâmetro da cintura do feixe $2w_0$, com isso, o número de Fresnel pode ser escrito como $N_F = 4w_0^2/\lambda d = 4z_C/\pi d$, assim, a condição para campo distante se dá quando $d >> z_C$. Fazendo essa aproximação nas equações (46) e (47), temos que $\gamma = \bar{z}$ e $\beta \approx 2\rho_2(1+\bar{z}^2)$. Com esse resultado, a Equação (48) pode ser reescrita como:

$$\varepsilon_a(\rho_2) = \frac{ikw_0}{d}\varepsilon_o e^{-i\xi}\int_o^\infty e^{-\rho^2(1+i\bar{z})}(1-i\Delta\phi)J_o(\beta\rho)\rho d\rho \tag{49}$$

Essa integral pode ser decomposta em dois termos:

$$\varepsilon_a(\rho_2) = \frac{ikw_0}{d}\varepsilon_o e^{-i\xi}(H+\delta H) \tag{50a}$$

com

$$H = \int_o^\infty e^{-\rho^2(1+i\bar{z})} J_o(\beta\rho)\rho d\rho = \frac{e^{\frac{\beta^2}{4(1+i\bar{z})}}}{2(1+i\bar{z})} \tag{50b}$$

$$\delta H = i\int_o^\infty e^{-\rho^2(1+i\bar{z})} \Delta\phi(\rho) J_o(\beta\rho)\rho d\rho \tag{50c}$$

Considerando o caso geral $\Delta\phi(\rho) \neq 0$, queremos calcular a forma do perfil de intensidade no campo distante $I_a \propto |\varepsilon_a(\rho_2)|^2$ dada por:

$$|\varepsilon_a(\rho_2)|^2. \propto |H + \delta H|^2 \sim |H|^2 + H.\delta H^* + H^*.\delta H \tag{51}$$

onde a aproximação acima é feita considerando-se que $\Delta\phi$ é pequeno, $\delta H << H$ logo, podemos desprezar o termo $|\delta H|^2$. Além disso, experimentalmente é conveniente trabalhar-se com a transmitância normalizada ao caso $\Delta\phi = 0$, que é dada por $T = |H + \delta H|^2/|H|^2$, a qual pode ser expressa como:

$$T = 1 + 2.\mathrm{Re}\{\delta H/H\} \tag{52}$$

onde Re{} significa a parte real do argumento. A Equação (52) é uma expressão que pode ser usada para considerar a análise estritamente em um único ponto, em geral é mais conveniente analisar o que ocorre no eixo, ou seja, em $r_2 = 0$.

A resolução da integral em (50c) é dada por:

$$\delta H = i\Delta\phi_0(\bar{z})\int_o^\infty e^{-\rho^2(3+i\bar{z})} J_o(\beta\rho)\rho d\rho = i\Delta\phi_0(\bar{z})\frac{e^{\left[-\frac{\beta^2}{4(3+i\bar{z})}\right]}}{2(3+i\bar{z})} \tag{53}$$

O termo δH representa um feixe gaussiano assim como o termo H, porém sua amplitude é proporcional a $i\,\Delta\phi_o$ (logo está defasado de π/2 do campo H) tendo raio de curvatura e cintura diferentes das do campo H. Conhecendo-se a parte real da razão entre δH e H, conseguimos a transmitância T (Equação (52)), ou a forma da curva Z-scan no campo axial ($r_2=0$); assim como foi feito por Sheik-Bahae[1]. Note que neste caso tem-se β = 0 nas equações (50b) e (53), resultando:

$$T(\bar{z},\Delta\Phi_o) = 1 + \frac{4\bar{z}\Delta\Phi_o}{(\bar{z}^2+9)(\bar{z}^2+1)} \tag{54}$$

A expressão (54) tem a forma característica mostrada na Figura 8 com dois extremos, um máximo (posição de pico) e um mínimo (posição de vale) dados na posição $z = \pm\, 0.859z_c$, de tal forma que se substituirmos isso em (54) a separação entre o pico e o vale fica:

$$\Delta z_{pv} \sim 1.718 z_c \tag{55}$$

O parâmetro ΔT_{pv} é definido como a diferença entre a transmitância normalizada do pico e do vale: $T_p - T_v$. Para uma dada ordem de não-linearidade, a relação desta quantidade com $|\Delta\Phi_0|$ pode ser considerada universal, pois é independente do comprimento de onda do laser incidente, da geometria (caso campo distante) e do sinal da não-linearidade. Portanto, para o caso em que a análise é feita no campo distante e no eixo ($r_2 = 0$), temos:

$$\Delta T_{pv} \approx 0.406|\Delta\Phi_0| \tag{56}$$

É preciso observar que experimentalmente não medimos apenas o ponto $r_2 = 0$, mas usamos um orifício circular de raio r_a, (Figura 13) logo a potência medida no detector é a integral do perfil de intensidade em toda a área do orifício:

$$P_{med} = \int_0^{r_a} \left|\varepsilon(r_2, \Delta\phi(\rho, \bar{z}))\right|^2 2\pi r_2 dr_2 \tag{57}$$

onde $\left|\varepsilon(r_2, \Delta\phi(\rho, \bar{z}))\right|$ é dado pela Equação (51).

Sendo w_2 o valor da cintura do feixe no regime linear no plano da abertura na posição $z = L_t$ (Figura 13) a transmissão linear da abertura é dada por $S = 1 - \exp\left(-2\, r_a^2 / w_2^2\right)$. Nesse trabalho, porém, queremos determinar uma expressão que indique a transmissão não-linear em função da abertura no plano do detector. Para obtermos a transmitância normalizada, precisamos dividir a Equação (57) pela transmissão linear, ou seja, quando, $\Delta\phi(\rho, \bar{z}) = 0$:

$$T(\rho, z) = \frac{\int_0^{r_a} \left|\varepsilon(r_2, \Delta\phi(\rho, \bar{z}))\right|^2 2\pi r_2 dr_2}{\int_0^{r_a} \left|\varepsilon(r_2, \Delta\phi(\rho, \bar{z}) = 0)\right|^2 2\pi r_2 dr_2} \tag{58}$$

Resolvendo a expressão (58), conseguimos obter um resultado analítico para transmitância normalizada em função da distância varrida pela amostra normalizada pelo parâmetro confocal ($\bar{z}$) e do raio de abertura no plano do detector normalizada pela cintura do feixe nessa posição ($\rho_2 = r_2 / w_2$):

$$T(\bar{z}, \rho_2) = 1 + \frac{Exp\left[\frac{-2\rho_2^2(-3-2\bar{z}^2+\bar{z}^4)}{(9+\bar{z}^2)}\right]\Delta\Phi_0\left(-1+Coth[\rho_2^2(1+\bar{z}^2)]\right)sen\left[\frac{8\rho_2^2\bar{z}(1+\bar{z}^2)}{(9+\bar{z}^2)}\right]}{2(1+\bar{z}^2)}$$

(59)

Se fizermos a aproximação para ρ_2 muito pequeno, considerando $e^{-\rho_2^2} \approx 1-\rho_2{}^2$, $Coth[\rho_2{}^2] \approx 1/\rho_2{}^2$ e $sen[\rho_2{}^2] \approx \rho_2{}^2$ teremos:

$$T(\bar{z},\rho_2) = 1 + \frac{4\bar{z}(9+\bar{z}^2 - 4\rho_2^2(3+4\bar{z}^2+\bar{z}^4))\Delta\Phi_0}{(1+\bar{z}^2)(9+\bar{z}^2)^2}$$

Como ρ_2 é pequeno, recuperamos a Equação (54).

Usando (59) para a transmitância normalizada, fizemos gráficos em função de ρ_2 e conseqüentemente em função da transmissão linear $S = 1-\exp\left(-2\rho_2^2\right)$. Os gráficos são mostrados na Figura 14.

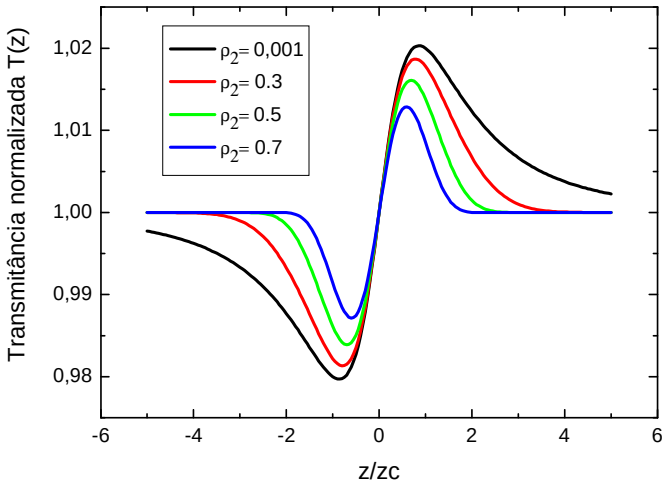

Figura 14 – Curvas da transmitância normalizada T(z) em função do raio de abertura no plano do detector (ρ_2) para campo distante usando $\Delta\Phi_0 = 0{,}1$ .Simulações feita através da Equação (59).

A partir desses gráficos, medimos os valores de ΔT_{pv} para diferentes aberturas. Determinando ΔT_{pv} para essas curvas relacionamos com o parâmetro *S* (Figura 16) e a melhor curva para ajuste dos dados é dada por

$$\Delta T_{p\text{-}v} \sim 0.406\,(1\text{-}S)^{0.475}\,\Delta\Phi_o \qquad (60)$$

Para aberturas maiores do que zero, verificou-se que o coeficiente linear *0,406* de (56) decresce. Sheik-Bahae *et al* [1] observaram que para $S = 0.5$ ele torna ≈ 0.34 e em $S = 0.7$ reduz para ≈ 0.29. Baseado em um ajuste numérico, eles obtiveram a relação a seguir usada para incluir tais variações:

$$\Delta T_{p\text{-}v} \sim 0.406\,(1\text{-}S)^{0.25}\,\Delta\Phi_o \qquad (61)$$

Chapple *et al* [11] afirmam que a relação (61) pode ser válida apenas para *S<0.2*, sendo que para valores acima desse não funciona muito bem. A Figura 14 (retirada de referência 11) mostra a relação entre ΔT_{pv} normalizado pelo valor em S=0, em função de S para diferentes aproximações (inclusive (61)), sendo que a linha cheia corresponde a cálculos numéricos.

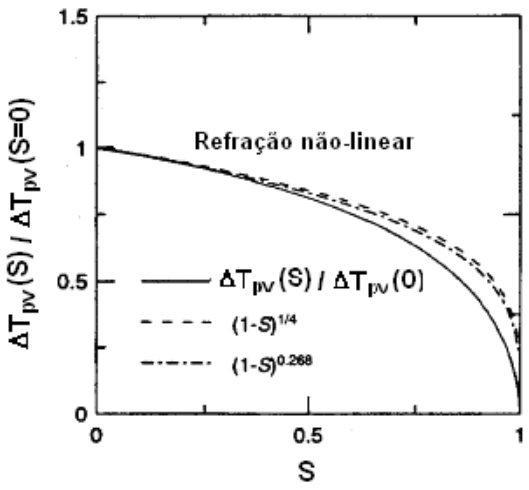

Figura 15 – ΔT_{pv} em função de S para várias aproximações. Figura retirada da referência 11.

As expressões (60) e (61) apresentam uma diferença quanto ao expoente. A comparação pode ser mais bem visualizada através da Figura 16, onde vemos similaridade com os resultados numéricos obtidos por Chapple *et al*.

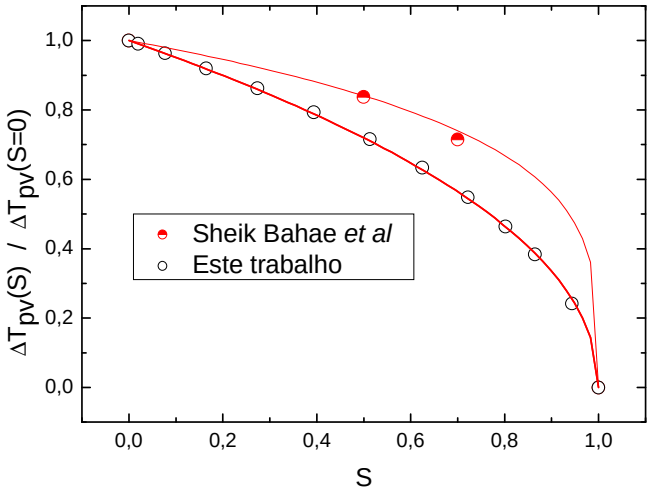

Figura 16 – ΔT_{pv} em função de S normalizado para o caso S=0. A Figura faz uma comparação entre este trabalho e da referência 1.

Também, quando a abertura é variada, pode ser observado que a distância entre o pico e vale das curvas de Z-scan, ΔZ_{pv}, é diminuído na medida em que o raio da íris aumenta. Essa observação não foi levada em conta por Sheik-Bahae, embora esta variação altere bastante o valor do z_c obtido de experimentos Z-scan. Por sua vez, um erro na determinação desse parâmetro ocasiona erros na determinação de n_2. O gráfico mostrado na Figura 17 relaciona ΔZ_{pv} com a transmissão linear S. O melhor ajuste dos dados pode ser realizado pela Equação a seguir

$$\Delta z_{pv} = 1{,}718(1-S)^{a(1-bS)} z_c \tag{62}$$

onde $a \cong 0{,}58 \pm 0{,}05$ e $b \cong 0{,}56 \pm 0{,}05$

Tanto a última Equação quanto as equações (60) e (61) podem retornar aos casos das equações (55) e (56) quando *S=0*, ou seja, considerando a análise apenas axial. Também, quando *S=1* o sinal é nulo.

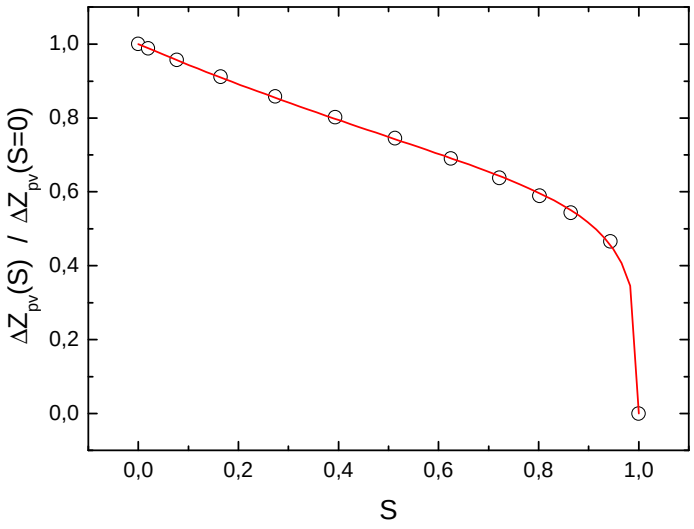

Figura 17 – ΔZ_{pv} em função da abertura da íris no campo distante normalizado para o caso S=0.

Ajustando a curva experimental de *T(z)* através da Equação (54) obtém-se $\Delta\Phi_0$ e z_c em *S=0*. Em geral, se corrige o valor de $\Delta\Phi_0$ para a abertura utilizada usando a Equação (61), deduzida por Sheik-Bahae *et al* [1] enquanto a correção para z_c é desprezada. Então se usa a Equação (40c) para calcular n_2 onde o valor de w_0^2 pode ser obtido a partir do próprio z_c medido. Usando as equações (55) , (61) e (40c) para *S = 0,5* podemos escrever:

$$n_2 \approx \left(\frac{0{,}1357\lambda^2}{L_{ef}}\right)\left(\frac{\Delta z_{pv} \times \Delta T_{pv}}{P}\right) \tag{63}$$

onde *P* é a potência do feixe e L_{ef} é o comprimento efetivo da amostra.

Nesse trabalho, no entanto, como já apresentado, obtemos as expressões (60) para ΔT_{pv} que difere de (61) na dependência da abertura S. Assim como a expressão (62) que leva

em conta o fator da abertura para ΔZ_{pv}. Considerando isso, podemos escrever para n_2, em $S=0,5$:

$$n_2 \approx \left(\frac{0,2118\lambda^2}{L_{ef}}\right)\left(\frac{\Delta z_{pv} \times \Delta T_{pv}}{P}\right) \tag{64}$$

O qual é maior ~ 36% do que n_2 obtido pela Equação (63).

5.1.2 Feixe único no campo próximo

A consideração de campo próximo está relacionada com o número de Fresnel, onde nesse caso N_F não é muito pequeno. Sendo $N_F = 4w_0^2/\lambda d = 4z_C/\pi d$, nesse caso temos que d é da ordem de z_c, com isso, nenhuma aproximação pode ser feita quanto aos parâmetros γ e β. Assim, teremos a chamada difração de Fresnel em que a integral em (48) representa a IDFK para esse caso. Utilizando a mesma metodologia de resolução para esse tipo de integral, obtemos que o resultado para a transmitância normalizada em função do raio da abertura r_2, da distância d da amostra até o detector e da distância percorrida pela amostra no eixo z normalizada pelo parâmetro confocal z_c em um único ponto no plano do detector é dado por:

$$T(\bar{z}, L, r_2) = 1 + \frac{2\Delta\Phi_0 e^{\left[\frac{\beta^2}{4}\left(\frac{1}{(1+\gamma^2)} - \frac{3}{(9+\gamma^2)}\right)\right]}}{(1+\bar{z}^2)(9+\gamma^2)}\left\{2\gamma\cos\left[\frac{2\beta^2\gamma}{(1+\gamma^2)(9+\gamma^2)}\right] - (3+\gamma^2)sen\left[\frac{2\beta^2\gamma}{(1+\gamma^2)(9+\gamma^2)}\right]\right\}$$

(65)

onde γ e β são dados respectivamente pelas equações (46) e (47).

Se analisarmos apenas o campo axial ($r_2=0$), tem-se que $\beta = 0$, logo:

$$T(\bar{z}, \Delta\Phi_o, r_2 = 0) = 1 + \frac{4\gamma\Delta\Phi_o}{(\gamma^2 + 9)(\bar{z}^2 + 1)} \tag{66}$$

Neste ponto é importante verificar que a Equação (66) não é simétrica em relação a $z = 0$, pois o parâmetro γ varia de maneira não mais linear com *z*, ou seja, a função $T(z)$ não é mais uma função par, como no caso de campo distante. No entanto, se fizermos com que $\bar{d} \approx \bar{z}$, ou seja, no caso em que aproximamos muito o detector da amostra, então o parâmetro γ volta a ser linear com *z*, ou mais especificamente, $\gamma \approx 2\bar{z} + 1/\bar{d}$. Com isso, a Equação (66) volta a ser par, tomando forma aproximadamente simétrica novamente.

Como foi feito na Seção (5.1.1), para obter o resultado de uma medida real, temos que integrar o campo elétrico até a abertura da íris r_a. Resolvendo a Equação (58), conseguimos obter um resultado analítico para transmitância normalizada em função do raio de abertura no plano do detector r_2 e da distância do foco do feixe de excitação até o detector $\bar{L}_t$ (Figura 13).

$$T(\bar{z}, \rho_2, \gamma, \bar{L}_t) = 1 + \frac{Exp\left[\frac{-2\rho_2^2(1+(L_t-\bar{z})^2)(1+\bar{z}^2)^2(3-\gamma^2)}{(L_t-\bar{z})^2(1+\gamma^2)(9+\gamma^2)}\right]\Delta\Phi_0\left(-1+Coth[\frac{\rho_2^2(1+(L_t-\bar{z})^2)(1+\bar{z}^2)^2}{(L_t-\bar{z})^2(1+\gamma^2)}]\right)}{2(1+\bar{z}^2)} \times$$

$$\times sen\left[\frac{8\rho_2^2(1+(L_t-\bar{z})^2)(1+\bar{z}^2)^2\gamma}{(L_t-\bar{z})^2(1+\gamma^2)(9+\gamma^2)}\right] \tag{67}$$

onde $\rho_2 = r_2/w_2$, $\overline{L}_t = \overline{d} + \overline{z} = L_t/z_c$, $\overline{z} = z/z_c$, γ é dado pela Equação (46) e $\Delta\Phi_0$ dado pela Equação (40c), o que permite a determinação de n_2.

Se fizermos $\overline{d} = \overline{L}_t - \overline{z}$ muito grande (então $\overline{d} \approx \overline{L}_t$) teremos novamente $\gamma = \overline{z}$. Neste caso, substituindo em (67) e fazendo as manipulações algébricas necessárias, recuperamos a transmitância de feixe único para o caso do campo distante, Equação (59). Ou seja, a Equação (67) é uma forma mais geral da Equação (59).

É extremamente importante ressaltar que a Equação (67) não tem sentido físico se considerarmos que o detector se move conjuntamente com a amostra, pois nesse caso o raio do feixe no plano do detector irá variar para cada posição da amostra e conseqüentemente ρ_2 não será fixo. Assim, para medidas no campo próximo considerando a abertura, deve-se sempre considerar que o detector se mantém parado no experimento, por isso a Equação (67) está limitada pela condição $\overline{L}_t \leq \overline{z}$ em experimentos Z-scan. Problema como esse não ocorre se a análise é feita apenas no eixo, pois $\rho_2 = 0$.

A Figura 18 mostra a transmitância normalizada em função da distância *d* da amostra ao detector variando desde $50z_c$ a $0{,}5z_c$. As simulações foram realizadas utilizando $\Delta\Phi_0 = 0.1$, sendo a análise feita apenas no eixo utilizando a Equação (66), em que consideramos que o detector se move conjuntamente com a amostra. A curva dispersiva e simétrica do sinal Z-scan convencional (feixe único no campo distante) é alterada na medida em que o detector é aproximado da amostra, enquanto que distâncias maiores do que $50z_c$ não alteram, significativamente, o formato do sinal; idealmente isso significa que, se o detector fosse colocado no infinito, a diferença entre as curvas seria desprezível. Assim, pode ser afirmado que, nesta situação, estamos no campo distante.

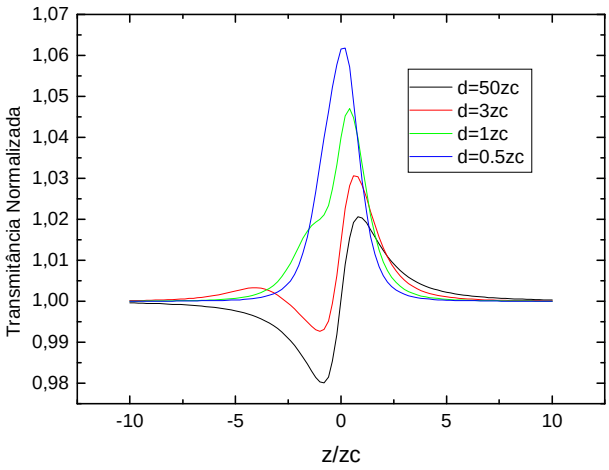

Figura 18 – Sinal da transmitância normalizada em função da distância d da amostra ao detector para $\Delta\Phi_0 = 0.1$. *Simulações feitas usando a Equação (66).*

Entre aproximadamente $7z_c$ e $0{,}5z_c$, o sinal assume forma assimétrica. Podemos inferir este intervalo como uma transição entre o sinal dispersivo convencional e um sinal onde um único máximo (posição do pico) é encontrado em torno de $\bar{z} = 0$ (como em $d = 0.5z_c$ na Figura 18). Para estes valores, $\Delta T_{p-v} \approx 0.406\Delta\Phi_0$ em $d = 50z_c$, sendo que a mesma análise para a diferença entre a transmitância do pico e do vale não pode ser feita no intervalo em que o sinal é assimétrico.

A Figura 19(a) mostra simulações ainda através da Equação (66) para a transmitância em relação a $\bar{z}$, onde d varia de $0{,}5z_c$ a $0{,}05z_c$. Nesse intervalo, o sinal possui apenas um pico, assumindo forma simétrica novamente. Agora, podemos fazer a análise tomando a magnitude da Transmitância no pico (T_p). Como mostrado pela Figura 19(b) observa-se que existe um valor máximo para T_p em torno de $d = 0.33z_c$ e o sinal começa a diminuir na medida em que aproximamos mais o detector. Somente para esta distância, o pico se encontra exatamente na posição *z = 0*. Para distância acima ou abaixo de $0.33z_c$, a posição do pico (Z_p) foge de *z = 0*.

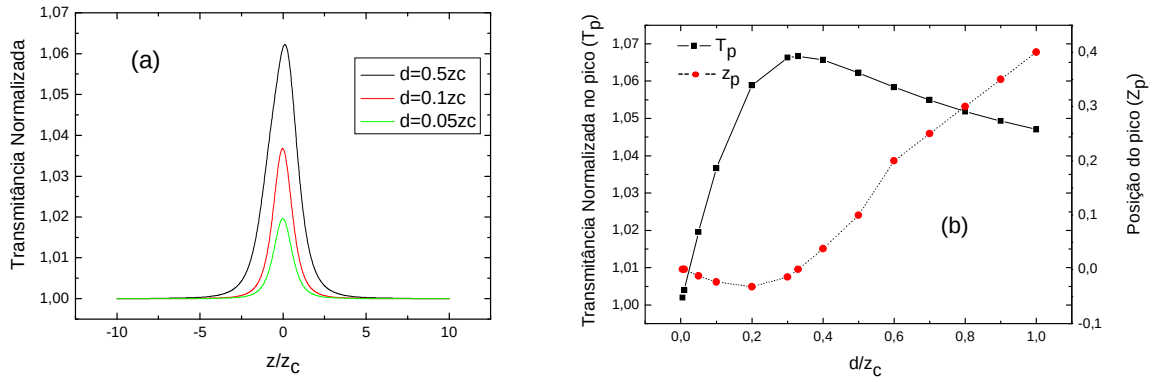

Figura 19 – (a)Sinal da transmitância normalizada em função da distância d da amostra ao detector para $\Delta\Phi_0 = 0.1$. *Simulações feitas usando a Equação (63).(b)variação da transmitância do pico em função da distância d/zc assim como a variação da posição do pico em relação a z=0.*

Fizemos uma análise com relação ao raio de abertura no plano do detector, ou seja, $\rho_2 = r_2 / w_2$ quando um detector é fixado na posição $L_t = +3z_c$ depois do ponto focal do feixe de excitação. Nesse caso, utilizamos a Equação (67) para as simulações. A Figura 20 mostra que o sinal diminui quando o raio da abertura é o mesmo da cintura do feixe, ou seja, quando $\rho_2 = 1$. O motivo da transmitância normalizada não ser nula, está relacionado ao fato de que medimos o raio da cintura quando a intensidade cai $1/e^2$ do seu valor inicial, sendo que o sinal refrativo deverá ser nulo apenas quando medirmos toda intensidade do feixe, não considerando o efeito de lente. Isso acontece quando utilizamos uma abertura infinita, devido ao perfil gaussiano da intensidade.

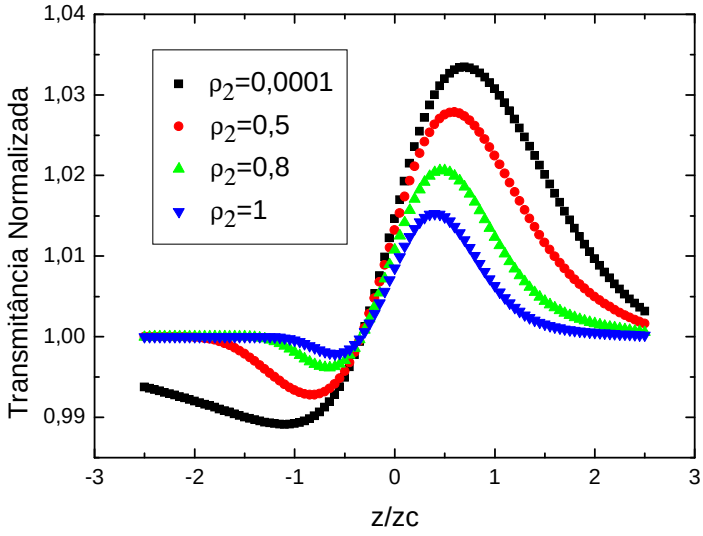

Figura 20 – Sinal da transmitância normalizada em função da abertura para distância fixa L_t=3zc e $\Delta\Phi_0 = 0.1$. *Simulações feitas usando a Equação 64.*

5.1.3 Feixe duplo

No caso do experimento Z-scan com duas cores, introduzido na Seção (4.3.1) , há um feixe para excitar o material (feixe de excitação) enquanto outro feixe prova a não-linearidade induzida (feixe de prova). Nesta Seção, utilizaremos o índice *e* e *p* quando tratarmos de feixe de excitação ou de prova, respectivamente. O perfil de intensidade gaussiano do feixe de excitação induz no meio não-linear um perfil de índice de refração também gaussiano $\Delta n(r,\bar{z}) = n_2 I_e(r,\bar{z})$, onde $I_e(r,\bar{z}) \propto \left|\varepsilon_e(r,\bar{z})\right|^2$. Logo o perfil de fase $\Delta\phi(r,\bar{z})$ fica dado por:

$$\Delta\phi(r,\bar{z}) = \Delta\phi_0(\bar{z})\exp\left[-2\left(r^2/w_e^2\right)\right] \tag{68}$$

onde w_e é o raio do feixe de excitação.

Os parâmetros confocais para os feixes de prova e excitação são dados respectivamente por $z_{cp} = \pi w_{0p}^2 / \lambda_p$ e $z_{ce} = \pi w_{0e}^2 / \lambda_e$. Definindo o quadrado da razão entre as cinturas dos feixes por

$$m_0 = \frac{w_{0p}^2}{w_{0e}^2} = \frac{1}{\varsigma} \frac{z_{cp}}{z_{ce}} \tag{69}$$

onde $\varsigma = \lambda_e / \lambda_p$ é a razão entre os comprimentos de onda.

De forma mais geral, queremos definir o quadrado da razão entre os raios dos feixes em qualquer posição z, considerando que as cinturas dos feixes de prova e excitação não se localizam no mesmo local, há um deslocamento entre as cinturas dado por a_0 como pode ser visto pela Figura 21.

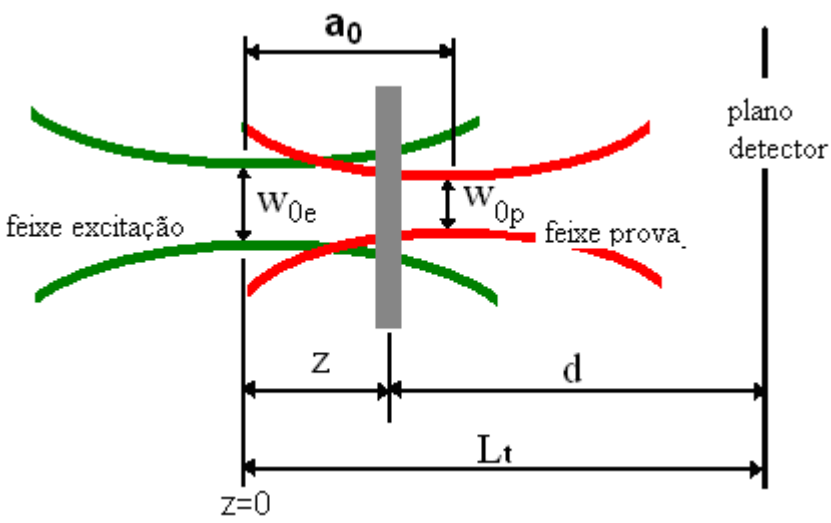

Figura 21 – Esquema indicando um experimento com dois feixes em que a posição das cinturas não são coincidentes.

Para o feixe de excitação, usando a Equação (36) temos que $w_e^2(\bar{z}) = w_{0e}^2\left(1+(m_0\bar{z}\xi)^2\right)$ onde $\bar{z} = z/z_{cp}$ e quando $z=0$, temos que $w_e = w_{0e}$. O mesmo não ocorre para o feixe gaussiano de prova, em que a cintura está deslocada de $z=0$. Assim podemos escrever:

$$w_p^2(\bar{z}) = w_{0p}^2\left(1+(\bar{z}-\bar{a}_0)^2\right) \tag{70}$$

onde $\bar{a}_0 = a_0/z_{cp}$. Portanto, somente quando $z = a_0$, teremos $w_p = w_{0p}$. Assim, temos que o quadrado da razão entre os raios dois feixe de prova e excitação é dado por:

$$m(\bar{z}) = \left(w_p(\bar{z}) \big/ w_e(\bar{z}) \right)^2 = \frac{m_0\left(1+(\bar{z}-\bar{a}_0)^2\right)}{1+\left(m_0\bar{z}\zeta\right)^2} \tag{71}$$

onde $\bar{z} = z/z_{cp}$.

Voltando em (68), podemos escrever que a variação de fase induzida pelo feixe de excitação é:

$$\Delta\phi(\rho,\bar{z}) = \Delta\phi_0(\bar{z})\exp\left[-2m(\bar{z})\rho^2\right] \tag{72a}$$

$$\Delta\phi_0(\bar{z}) = \frac{\Delta\Phi_0}{(1+\left(m_0\bar{z}\zeta\right)^2)} \tag{72b}$$

e

$$\Delta\Phi_0 = k_e L_{ef} n_2\left(2P_e/\pi w_{0e}^2\right) \tag{72c}$$

onde $\rho = r/w_p$ no plano da amostra. Com isso o que fizemos foi inserir na diferença de fase gerada pelo feixe de excitação os parâmetros geométricos do feixe de prova, então, medidas das distorções geradas no feixe de prova fornecerão as não-linearidades induzidas.

A seguir, mostraremos os resultados obtidos para a transmitância normalizada do feixe de prova num experimento de duas cores.

Considerando o caso geral em que o detector está no campo próximo, tal como feito na Seção (5.1.2), nenhuma aproximação é feita para os parâmetros γ e β que são dados pelas equações (46) e (47) respectivamente, sendo o campo elétrico da luz do feixe de prova gaussiano, conforme a Equação (34). Usando as equações (72) para diferença de fase induzida e ainda considerando que isto seja pequeno, ou seja, $\Delta\phi_0 < 1$, podemos escrever a IDFK para o feixe de prova, de acordo com (48), como sendo:

$$\varepsilon_a(\rho_2) = \frac{ikw_0 w}{d}\varepsilon_o e^{-i\xi}\int_o^{\infty} e^{-\rho^2(1+i\gamma)}(1 - i\Delta\phi(\bar{z})e^{-2m(\bar{z})\rho^2})J_o(\beta\rho)\rho\, d\rho \qquad (73)$$

A resolução da Equação (73) segue exatamente os mesmos passos feitos na Seção (5.1.2) para um único feixe. De fato, se compararmos as equações (73) e (48) vemos que a única diferença é o termo *m(z)*, contudo isso faz grande diferença no resultado obtido.

Conseguimos obter um resultado analítico para a transmitância normalizada em função de r_2, da distância da amostra ao detector *d* e da distância *z* normalizada pelo parâmetro confocal z_c em um único ponto no plano do detector:

$$T(\bar{z}, d, r_2) = 1 + \frac{2\Delta\Phi_0 Exp\left[\frac{\beta^2}{4}\left(\frac{1}{(1+\gamma^2)} - \frac{1+2m(\bar{z})}{\left((1+2m(\bar{z}))^2+\gamma^2\right)}\right)\right]}{(1+(\zeta m_0\bar{z})^2)\left((1+2m(\bar{z}))^2+\gamma^2\right)}\left\{\begin{array}{l} 2m(\bar{z})\gamma\cos\left[\frac{m(\bar{z})(m(\bar{z})+1)\beta^2\gamma}{(1+\gamma^2)\left((1+2m(\bar{z}))^2+\gamma^2\right)}\right] - \\ (1+2m(\bar{z})+\gamma^2)sen\left[\frac{m(\bar{z})(m(\bar{z})+1)\beta^2\gamma}{(1+\gamma^2)\left((1+2m(\bar{z}))^2+\gamma^2\right)}\right]\end{array}\right\} \qquad (74)$$

onde o termo r_2 está inserido no fator β, $\varsigma = \lambda_e / \lambda_p$ e $m(\bar{z})$ é dado pela Equação (71). A Equação (74) é a transmitância normalizada em apenas um único ponto no plano do detector, assim, fazendo (β=*0*) em (74) conseguimos a transmitância apenas no eixo:

$$T(\bar{z}, d, r_2 = 0) = 1 + \frac{4m(\bar{z})\gamma\Delta\Phi_0}{(1+(\xi m_0 \bar{z})^2)\left((1+2m(\bar{z}))^2 + \gamma^2\right)} \tag{75}$$

Resolvendo a Equação (58) (como feito nas seções (5.1.1) e (5.1.2)) conseguimos obter um resultado analítico para transmitância normalizada para toda abertura da íris, em função de r_2, $\bar{z}$, $\bar{d}$, γ, ζ e m_0:

$$T(\bar{z}, \rho_2, \gamma, \bar{d}, m_0) = 1 + \frac{Exp\left[\frac{2m\rho_2^2(1+\bar{d}^2)(1+\bar{z}^2)^2(1+2m-\gamma^2)}{\bar{d}^2(1+\gamma^2)((1+2m)^2+\gamma^2)}\right]\Delta\Phi_0\left(-1+Coth[\frac{\rho_2^2(1+\bar{d}^2)(1+\bar{z}^2)^2}{\bar{d}^2(1+\gamma^2)}]\right)\times}{(1+m)(1+(m_0\bar{z}\zeta)^2)}$$

$$\times sen\left[\frac{4\rho_2^2 m(1+m)(1+\bar{d}^2)(1+\bar{z}^2)^2\gamma}{\bar{d}^2(1+\gamma^2)((1+2m)^2+\gamma^2)}\right] \tag{76}$$

onde $m = m(\bar{z})$ é dado pela (71).

Se fizermos $m_0 = 1$, $a_0 = 0$ e $\zeta = 1$, teremos que $m = 1$. Substituindo em (76), voltamos ao caso de feixe único no campo próximo dado pela Equação (67). Novamente, é imprescindível dizer que, para experimentos Z-scan, deve-se considerar $\bar{d} = \bar{L}_t - \bar{z}$ na Equação (76), devido ao fato da transmissão linear variar quando o detector se move conjuntamente com a amostra.

A condição para campo distante se dá quando fazemos as aproximações para $d >> z_C$. De onde obtemos que $\gamma = \bar{z}$ e $\beta \approx 2\rho_2(1+\bar{z}^2)$. Substituindo esses parâmetros em (75) e (76) temos a transmitância normalizada no eixo e para uma abertura, respectivamente, na condição de campo distante:

$$T(\bar{z},\rho_2 = 0) = 1 + \frac{4m(\bar{z})\bar{z}\Delta\Phi_0}{(1+(\zeta m_0\bar{z})^2)\left((1+2m(\bar{z}))^2+\bar{z}^2\right)} \tag{77}$$

$$T(\bar{z},\rho_2,m_0) = 1 + \frac{Exp\left[\dfrac{2m(\bar{z})\rho_2^2(1+\bar{z}^2)(1+2m(\bar{z})-\bar{z}^2)}{((1+2m(\bar{z}))^2+\bar{z}^2)}\right]\Delta\Phi_0\left(-1+Coth[\rho_2^2(1+\bar{z}^2)]\right)\times}{(1+m(\bar{z}))(1+(m_0\bar{z}\zeta)^2)}$$

$$\times sen\left[\frac{4\rho_2^2 m(\bar{z})(1+m(\bar{z}))(1+\bar{z}^2)\bar{z}}{((1+2m(\bar{z}))^2+\bar{z}^2)}\right] \tag{78}$$

A seguir, faremos algumas discussões quanto aos resultados obtidos, procurando analisar as condições experimentais mais relevantes. Cabe ressaltar que o resultado obtido é bastante geral, o que pode ser bastante útil afim de optimizar as condições para se fazer um experimento de dois feixes. Primeiramente, consideraremos a análise no campo distante e na condição em que as cinturas de ambos os feixes se encontram na mesma posição, ou seja, $a_0 = 0$.

A razão entre as cinturas dos feixes dada por $m_0 = w_{0p}^2 \big/ w_{0e}^2$ é um importante fator experimental a considerar em um experimento de dois feixes. A Figura (22) mostra como o sinal varia em função de m_0, onde a análise foi feita considerando o mesmo comprimento de onda de excitação e prova, ou seja $\zeta=1$, para o campo distante (Equação(78)), considerando uma abertura muito pequena no plano do detector. Por análise gráfica, pode-se perceber que

um máximo ocorre por volta de $m_0 \sim 0.7$; enquanto, na medida em que m_0 diminui ou cresce a partir desse valor, o sinal da transmitância tende a anular-se.

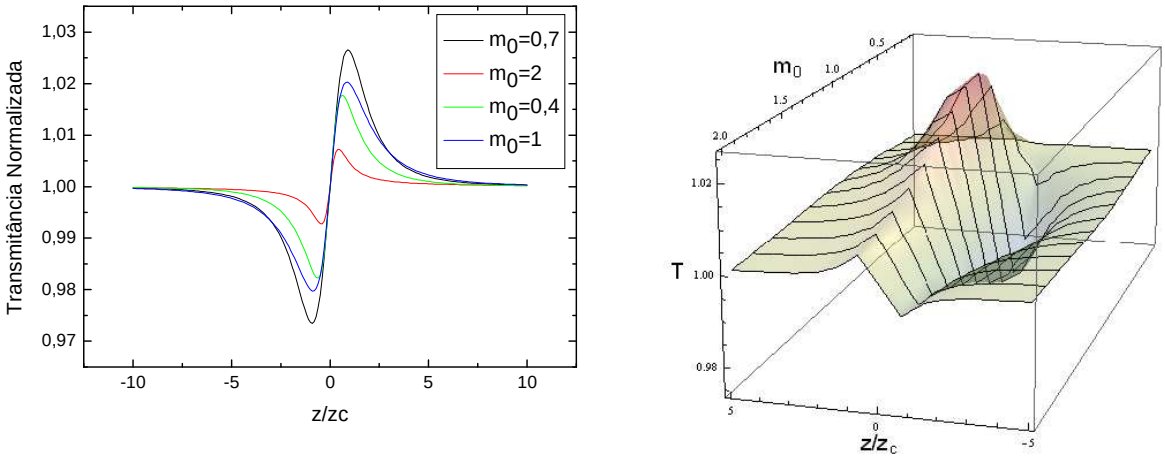

Figura 22 – Simulação do sinal da transmitância normalizada em função de z/zc e m_0. O sinal foi adquirido no campo distante, no eixo, para $\Delta\Phi_0 = 0.1$ *e ζ=1, onde utilizamos a Equação (78).*

Como vemos, a escolha errada de m_0 leva a uma condição que é impossível obter qualquer sinal.

Uma outra análise pode ser realizada a partir da Equação (78) quanto ao raio de abertura no plano do detector. Isso pode ser visto qualitativamente através da Figura 23, onde analisamos que o sinal diminui na medida em que ρ_2 varia de *0,001* até *0,8*.

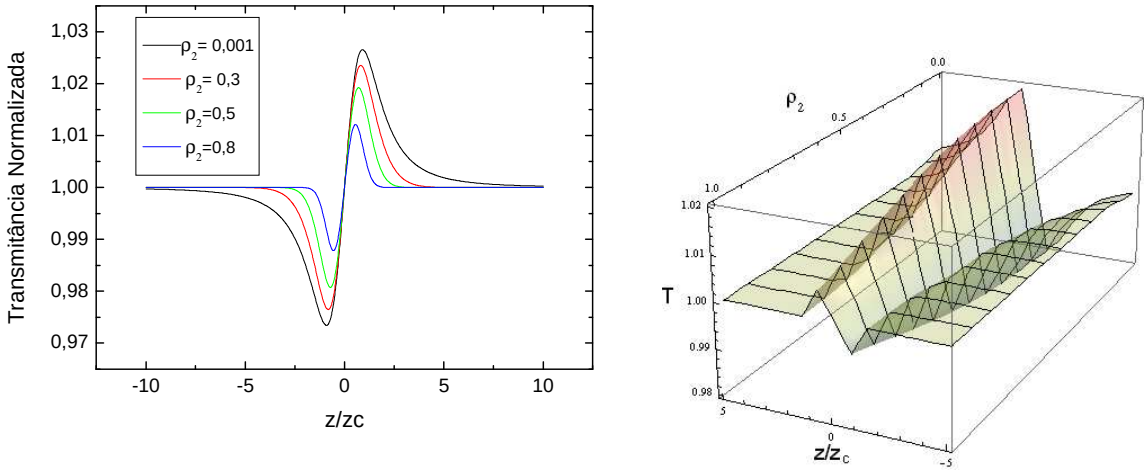

Figura 23 – Simulação do sinal da transmitância normalizada em função de z/zc e ρ_2. O sinal foi adquirido no campo distante para $\Delta\Phi_0 = 0.1$, *m_0 =0,7 e ζ=1, usando a Equação (78).*

Embora em um experimento a razão entre os comprimentos de onda se mantenha constante, é importante um conhecimento preliminar da variação do sinal quando se escolhe os comprimentos de onda dos feixes de prova e excitação. Analisando graficamente a Equação (78), percebemos uma maximização da transmitância em torno de $\zeta \sim 0.8$, isso ocorre, por exemplo, se usarmos um feixe de excitação em torno de *500nm* e um feixe de prova em torno de *600nm*.

A comparação entre o máximo sinal obtido através da utilização de dois feixes (obtido acima) com a transmitância normalizada para um único feixe é mostrada através da Figura 24. Podemos perceber um aumento do sinal em torno de *16%*. O sinal máximo obtido com duas cores também pode ser analisado quanto aos parâmetros ΔT_{pv} e ΔZ_{pv} no campo distante. Sendo obtidas as seguintes relações $\Delta T_{pv} \approx 0{,}56025\Delta\phi_0$ e $\Delta Z_{pv} \approx 1{,}884 z_C$.

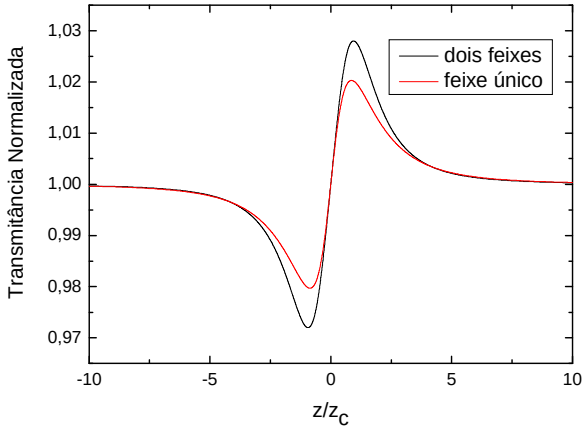

Figura 24 – Comparação do sinal da transmitância normalizada para feixe único e para dois feixes no campo distante e no eixo com $\Delta\Phi_0 = 0.1$, ζ*=0,8 e* m_0 *=0,7 .*

Analisando a transmitância em $z = 0{,}942$ e $z = -0{,}942$, ou seja, no pico e no vale do sinal máximo obtido para campo distante. Variando a_0 para analisarmos sua influência sobre o sinal (Figura 25), vemos que para a_0 positivo, ou seja, quando a cintura do feixe de prova se encontra depois da cintura do feixe de excitação, seguindo a direção de incidência da luz; há um inicial decréscimo do pico enquanto o sinal do vale aumenta. Logo após, o sinal do pico volta a retomar magnitude enquanto o sinal do vale apresenta contínua queda. Isso revela que a curva da transmitância adquire um caráter assimétrico fora de $a_0 = 0$. Para $a_0 < 0$, quando a cintura do feixe de prova se encontra antes da cintura do feixe de excitação, seguindo a

direção de incidência da luz; acontece a mesma situação, porém, invertida para o sinal do pico e do vale.

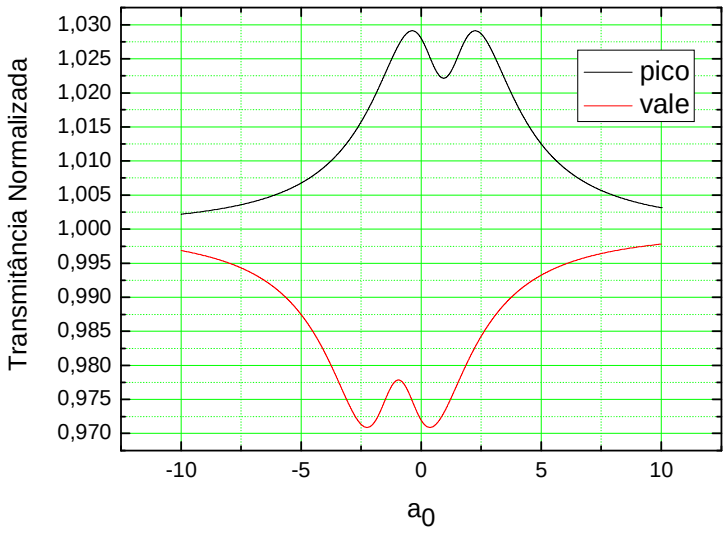

Figura 25 – Sinal da transmitância normalizada para dois feixes no campo distante, no eixo, para $\Delta\Phi_0 = 0.1$, *ξ=0,8 , m_0 =0,7 em função do parâmetro a_0.. O sinal foi tomado na posição de pico do sinal, z=0,942 (linha preta) e em z=-0,942 na posição de vale do sinal (linha vermelha).Simulação feita usando a Equação (78).*

A análise da influência de a_0 no campo próximo para dois feixes não pode ser feita com a mesma simplicidade como no campo distante. Neste caso, a transmitância depende ao menos de quatro parâmetros simultaneamente, incluindo a distância da amostra ao detector.

Mantendo a configuração que maximiza o sinal no campo distante, usando a Equação (76) (com a_0 = 0) podemos fazer simulações quanto ao comportamento do sinal quando a distância *d* da amostra ao detector é variada, ou seja, uma análise para o campo próximo num experimento de dois feixes. A Figura 26 mostra qualitativamente o comportamento do sinal em função da distância *d*, no eixo. Podemos perceber estreita semelhança com o comportamento de apenas um único feixe.

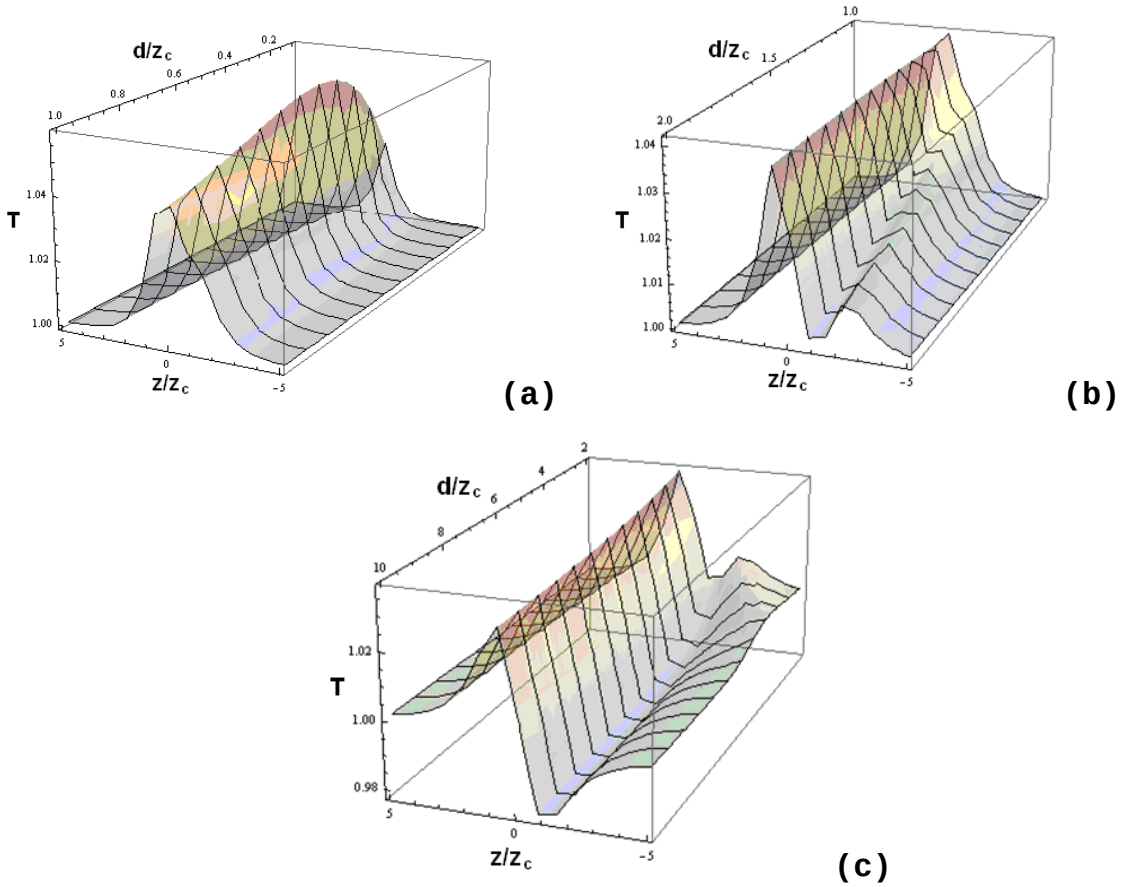

Figura 26 – Sinal da transmitância normalizada para dois feixes no eixo para $\Delta\Phi_0 = 0.1$, *ζ=0,8 e* m_0 *=0,8 . A parte (a) mostra a simulação quando a distância do detector a amostra vai de d/zc=0,1 a 1. A parte (b) toma desde d/zc=1 até 2 enquanto a parte (c) mostra o sinal de d/zc=2 até 10. A partir de d/zc=10 o sinal tende a manter-se inalterado. Simulação feita usando a Equação (76).*

6 MATERIAL E MÉTODOS

A descrição e ideia básica da técnica Z-scan foi feita no Capítulo 4. Neste Capítulo, descreveremos mais detalhadamente o material utilizado, assim como os métodos experimentais empregados em medidas Z-scan realizadas nesse trabalho.

6.1 Z-scan resolvido no tempo

Como dito na Seção (4.1), podemos discriminar a origem física de n_2 se resolvermos a medida Z-scan temporalmente. Nesta Seção, mostraremos o método Z-scan resolvido no tempo para medidas de n_2 proveniente de efeitos populacionais (lentos).

A normalização do sinal de Z-scan da forma proposta por Sheik-Bahae *et al* [1] é susceptível a erros decorrentes de maus polimentos ou falta de paralelismo das superfícies da amostra. Para contornar esse problema em meios com não-linearidade lenta ($\tau > 100$ μs) Oliveira *et al* [54] desenvolveram o método de Z-scan resolvido no tempo, onde são aquisicionados os sinais transmitidos imediatamente após a abertura de um *chopper* (um modulador mecânico que interrompe o feixe de excitação em intervalos regulares de tempo), quando ainda não existem efeitos não-lineares, e antes do seu fechamento, quando os efeitos não-lineares estão presentes. A razão entre estes sinais define a transmitância normalizada. Todo o sinal captado desde a abertura do *chopper* até seu fechamento é chamado sinal transiente. As equações (11) e (19) explicam o sinal transiente mostrando como a não-linearidade evolui no tempo. Na Figura 27 pode ser visto o efeito da não-linearidade sobre o sinal incidente modulado, em diferentes posições da amostra ao longo do feixe.

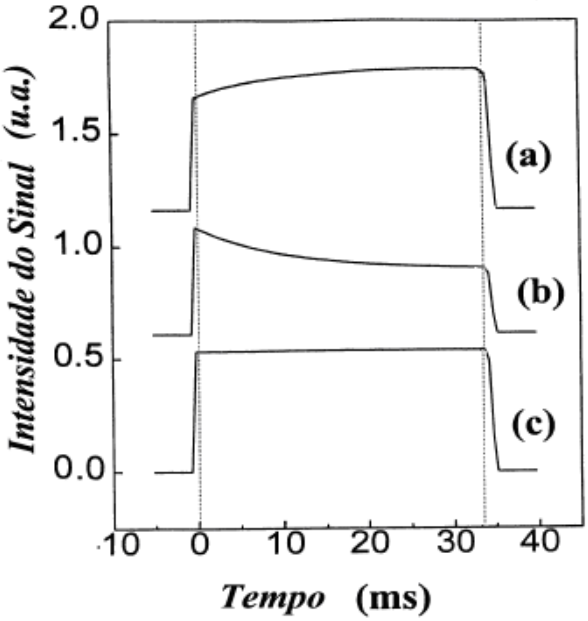

Figura 27 – Evolução temporal do sinal de Z-scan da amostra de $GdAlO_3:Cr^{3+}$ ($n_2>0$). Figura adaptada da referência 54.

Note que no caso (a) a amostra está logo após o foco onde a normalização do sinal detectado é maior que 1, ou seja, o crescimento da não-linearidade faz com que o efeito de lente de população aumente e conseqüentemente aumente a transmitância. Em (b) ela está antes do foco e o sinal é menor do que 1, enquanto que em (c) ela está longe do foco onde a população no estado excitado é desprezível e portanto não há variação do índice de refração não-linear, logo o sinal é ~ 1. É importante notar que o sinal absortivo está presente tanto no sinal de fenda fechada ($S<1$) como no da fenda aberta ($S=1$) para obter uma resposta unicamente devida à refração não-linear devemos normalizar o sinal da fenda fechada pelo sinal da aberta.

6.2 Arranjo experimental da técnica Z-scan resolvida no tempo

As medidas de Z-scan foram realizadas utilizando o aparato experimental mostrado na Figura 28. O laser utilizado para as medidas foi o Innova 300c da Coherent, um laser cujo meio ativo é o argônio, emitindo em várias linhas espectrais como as principais: 457, 476, 488, 496 e 514 nm. O diâmetro na saída do laser é de aproximadamente $2w = 1{,}5mm$, sendo que a cintura do feixe se localiza a ~1,5 m atrás do espelho de saída com diâmetro de $2w = 1{,}4mm$.

Duas lentes foram dispostas com os focos coincidindo com a posição do *chopper*, da forma apresentada na Figura a fim de maximizar a resolução temporal (Apêndice B). A amostra é deslocada ao longo da direção de propagação do feixe laser varrendo a posição focal da última lente (lente 4).

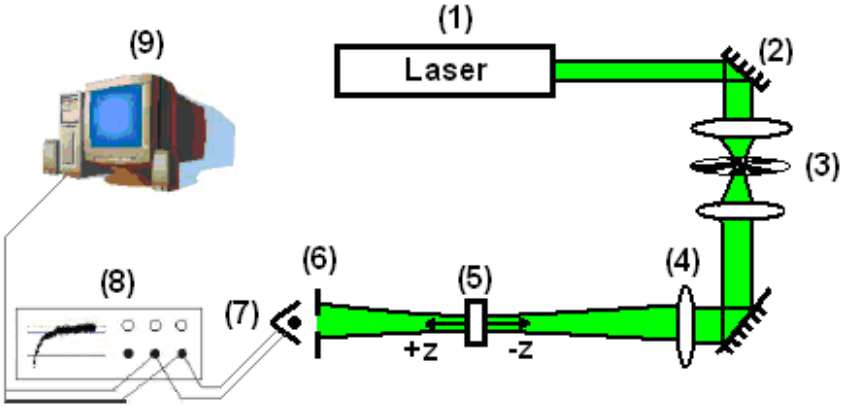

Figura 28 – Aparato experimental utilizado nas medidas de Z-scan com feixe único. (1) laser de excitação,(2) espelhos,(3) chopper,(4) lentes, (5) amostra, (6) íris, (7) fotodiodo, (8) osciloscópio e (9) computador de aquisição.

Os sinais lidos pelo fotodiodo são amplificados e aquisicionados num microcomputador. Os programas para aquisição dos dados foram feitos utilizando o software Labview (National Instruments)[55], uma poderosa ferramenta de aquisição de dados largamente utilizada nos laboratórios. Um programa para funcionamento do experimento Z-

scan resolvido no tempo foi feito. Basicamente, o programa guarda os dados da aquisição das intensidades provenientes dos detectores de luz como também controla o motor de passo que movimenta a amostra. Para que a curva do Z-scan seja traçada é importante que o motor não esteja funcionando no momento da aquisição. O tempo em que o motor de passo se mantém parado é definido por um número de medidas (ou número de pontos) da tensão em um tempo inicial (t_i) e da tensão em um tempo final (t_f) da curva de um transiente do sinal de Z-scan como mostrado na Figura 29.

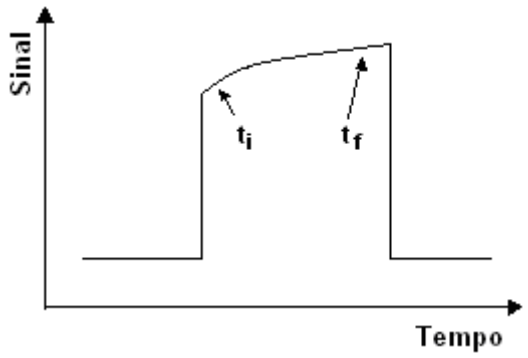

Figura 29 – Detecção dos tempos final e inicial no transiente em uma parada do motor de passo.

O programa então calcula a média das tensões medidas no tempo final (Mt_f) e a média das medidas no tempo inicial (Mt_i), e logo após divide um pelo outro resultando na razão Mt_f/Mti, que representa a Transmitância Normalizada. Por fim o sistema salva os dados em uma tabela possibilitando a construção de um gráfico final da Transmitância Normalizada (Mt_f/Mt_i) pela Distância (*z*) percorrida pela amostra. Para efeito ilustrativo, a Figura 30 mostra curvas Z-scan obtidas para uma amostra de GSGG bombeada em 488 nm com a mesma potência de ~69mW, onde S=0,5. O motor de passo percorreu uma distância de 80 mm, parando 100 vezes (100 pontos) para a realização das medidas. Em cada parada, tomou medidas no tempo inicial (5 μs) e no tempo final (600 μs), fazendo 50 médias em (a) e 100 médias em (b). Pode-se observar que no caso (a), a curva obtida foi um pouco mais ruidosa do que em (b), porém foi imperceptível uma diferença no ajuste de $\Delta\Phi_0$ e z_c. Mesmo quando o número de médias diminui bastante, o erro não é tão acentuado. Por exemplo, para 100 médias numa medida de 100 pontos, o erro relativo que se comete ao calcular $n_2 \propto \Delta\Phi_0 \times z_c$

não chega a 3%, enquanto que se fizermos uma medida com 5 médias para o mesmo número de pontos, o erro relativo chega a 4%.

Os casos mais críticos estão relacionados ao número de pontos, sendo que o erro relativo pode aumentar bastante quando poucos pontos são tomados. Por exemplo, se fizermos a medida anterior com 100 médias, mas com apenas 10 pontos, o erro relativo para n_2 pode chegar a 30%.

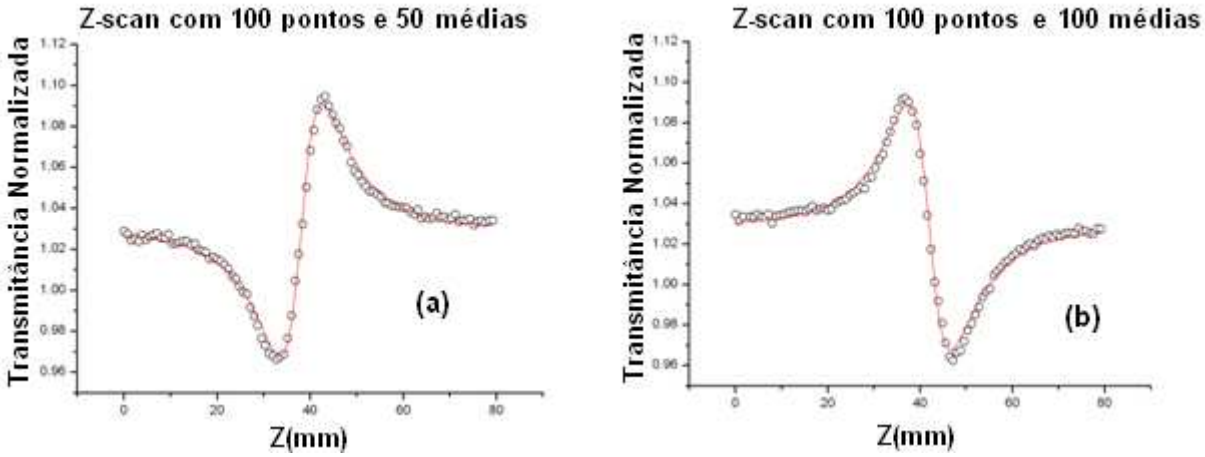

Figura 30 – Z-scan em uma amostra Cr^{3+}:GSGG com a mesma potência em 488nm (a) 50 médias (b) 100 médias. A inversão no sinal em (a) e (b) é devido ao sentido da movimentação do motor em relação ao sentido de incidência da luz.

Assim, um dos grandes trunfos conseguidos a partir do programa é o controle sobre os parâmetros, sendo possível manipular o número de médias realizadas assim como fazer medidas com mais ou menos pontos. Além disso, também é possível ter controle quanto ao tempo inicial e final em que se deseja fazer a medição, possibilitando dessa forma utilizar diversas amostras com diferentes tempos de vida. Para os experimentos feitos nesse trabalho, tomamos sempre 100 pontos e 100 médias, a fim de diminuir os erros.

A resolução temporal do sistema depende da placa de aquisição. A placa utilizada foi da marca National Instruments modelo CB 68LP, possibilitando uma resolução de ~1μs, que para nossos experimentos é relativamente bom, pois a amostra utilizada com menor tempo de vida foi o GSGG com $\tau_0 \approx 115\mu s$. No entanto, medidas utilizando *chopper* como modulador são limitadas temporalmente devido ao tempo finito que a pá leva para cortar o feixe. Assim,

devemos considerar um fator de correção temporal para as medidas Z-scan realizadas (Apêndice B).

7 RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÕES

A fim de testar a viabilidade das simulações feitas, alguns experimentos Z-scan foram realizados em amostras (cristais dopados com Cr^{3+}) que apresentam não-linearidade saturável (Seção 2.1.4), ou seja, efeitos lentos. Com isso, todo material apresentado no Capítulo 6 foi utilizado, assim como o método Z-scan resolvido no tempo.

7.1 Medidas de feixe único no campo distante

Primeiramente mostraremos medidas com feixe único no campo distante considerando o sinal da transmitância normalizada em função da abertura. As medidas foram feitas usando laser de argônio sintonizado em *457nm* com potência de ~ *46mW* incidindo numa amostra de Cr^{3+}:GSGG cuja espessura é de ~*1,24mm* e tempo de vida $\tau_0 \approx 115\mu s$. O esquema da configuração experimental está mostrado na Figura 28. A lente utilizada para focalizar o feixe possui distância focal de ~*17cm* em que foi possível conseguir uma cintura de ~*23*μm medida com um medidor de diâmetro de feixe (Omega meter- Beam Profiler- ModeloWM100-Thorlabs). O detector foi colocado a uma distância de aproximadamente $50z_c$ da amostra, onde podemos dizer que estamos praticamente no campo distante. Para esta amostra e cintura, a potência de saturação é $P_S = \pi w_0^2 I_S / 2 \approx 700mW$, onde $I_S \approx 50KW/cm^2$ é a intensidade de saturação, portanto, estamos longe de ter efeitos de saturação para este experimento.

A modulação do sinal foi feita através de um *chopper* em uma freqüência que permitiu um sinal transiente da ordem de ~*700*μs. Assim, pudemos definir como tempo inicial $t_i = 5\mu s$ e $t_f = 650\mu s$. O motor de passo percorreu uma distância de ~*32mm* parando *100* vezes para realização das medidas (*100* pontos). Em cada parada foi realizado *100* médias. As medidas foram feitas em função da abertura da íris na frente do fotodiodo, a Figura 31 mostra os sinais obtidos para diferentes aberturas. Na verdade, por questão de clareza na ilustração, algumas curvas foram omitidas.

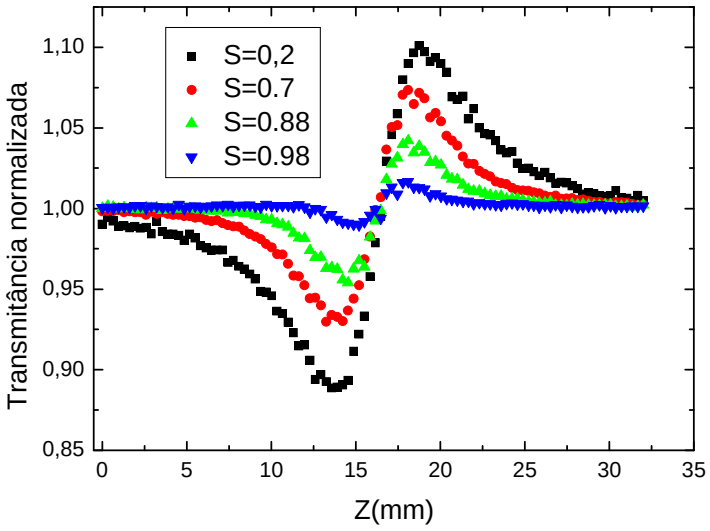

Figura 31 – Sinais obtidos num experimento Z-scan com feixe único no campo distante em função da abertura da íris. Uma amostra de Cr^{3+}:GSGG foi bombeada com laser de argônio em 457nm com potência de ~46mW.

Analisando essas curvas quanto a ΔT_{pv}, ou seja, medindo a transmitância no pico e subtraindo pela transmitância no vale de cada curva, temos o gráfico de ΔT_{pv} em função da abertura, como mostrado na Figura 32.

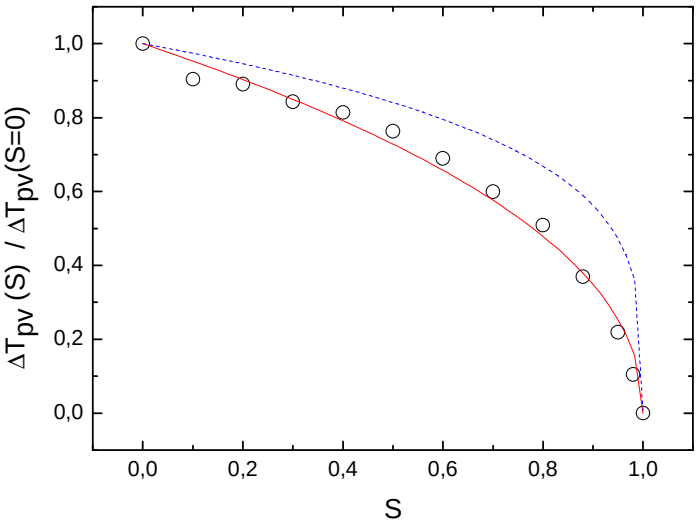

Figura 32 – Pontos experimentais para ΔT_{pv} em função de S, normalizado para o caso S=0. A linha vermelha representa o melhor ajuste dos dados enquanto a linha tracejada é o ajuste usando a Equação (61) dada pela referência 1.

Para ajustar os dados utilizamos uma Equação da forma: $\Delta T_{pv} = 0{,}406\,\Delta\Phi_0(1-S)^c$. A melhor curva forneceu $\Delta\Phi_0 = 0{,}58 \pm 0{,}01$ e $c = 0{,}46 \pm 0{,}03$ sendo representada pela curva vermelha. Assim, pudemos perceber uma grande similaridade quanto ao valor do coeficiente $c = 0{,}475$ calculado neste trabalho (Seção 5.1.1). A curva tracejada representa o ajuste feito utilizando $c = 0{,}25$ para o mesmo valor de $\Delta\Phi_0$. Isso representa o valor obtido por Sheik-Bahae extensivamente utilizado na literatura. Também, pode-se perceber grande semelhança quando se compara esse gráfico com o obtido teoricamente através da Equação (59), mostrado na Figura 16.

A Figura 33 representa os dados obtidos quando se analisa ΔZ_{pv} em função da abertura para as várias curvas medidas, ou seja, tomando-se a posição do pico e subtraindo pela posição de vale do sinal para cada curva. O ajuste mostrado foi feito utilizando a Equação 62 obtida neste trabalho, em que $z_c = (3{,}32 \pm 0{,}05)mm$, o qual está de acordo com $z_c \approx (3{,}6 \pm 0{,}4)mm$ calculado a partir da medição feita para a cintura do feixe gaussiano usando o medidor de diâmetro de feixe.

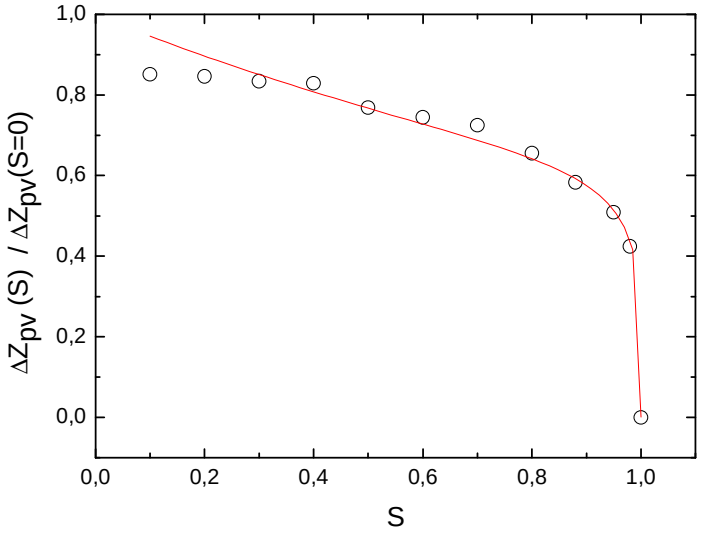

Figura 33 – Pontos experimentais para ΔZ_{pv} em função de S, normalizado para o caso em que S=0. A linha vermelha representa o ajuste feito a partir da Equação 62.

Se fizermos uma medida em *S=0,5*, por exemplo, mediremos z_c ~ 20% menor do que o valor real. Se não corrigirmos isso o erro se propagará nos cálculos para n_2.

7.2 Medidas de feixe único no campo próximo

No campo próximo os experimentos foram feitos com uma amostra de rubi de *1,57mm* de espessura, a qual possui tempo de vida $\tau_0 \approx 3{,}3ms$. Excitando com um feixe laser em *514nm*, a intensidade de saturação para esta amostra é de $I_S \approx 1{,}5\,KW/cm^2$. Com o intuito de obter medidas não saturadas, utilizou-se uma lente com distância focal de aproximadamente 25 cm, então a cintura medida para essa configuração foi de $w_0 \approx 44\mu m$, o que resultou em uma potência de saturação de $P_S \approx 46{,}5mW$. Como os experimentos foram feitos usando *~23mW* o que está próximo a P_S então devemos levar em conta efeitos de saturação.

Primeiramente, realizou-se uma medida no campo distante, ou seja, $d \to \infty$ a fim de se conseguir os valores de $\Delta\Phi_0$ e z_C. A Figura 34 mostra o sinal obtido no campo distante, fazendo o ajuste dos dados, pudemos obter $\Delta\Phi_0 \approx 0{,}208$ e $z_C \approx 9{,}8mm$. Fazendo as correções quanto ao fator de abertura e aos efeitos de saturação, obtemos os valores corrigidos $\Delta\Phi_0 \approx 0{,}293$ e $z_C \approx 11{,}7mm$.

Utilizando a mesma potência de excitação, medidas Z-scan foram feitas em que a distância L_t (do detector até o foco do feixe de excitação, ver Figura 13) é da ordem do parâmetro confocal z_c. A Figura 35 mostra os resultados obtidos para $L_t \approx 2{,}6z_c$ e $L_t \approx 7{,}2z_c$, onde uma íris com raio $r_2 \approx 200\mu m$ foi colocada e deixada parada na frente do fotodiodo (Na verdade é preciso observar que a medição ocorre efetivamente no plano da íris). Os resultados foram ajustados utilizando a Equação (67), em que foi utilizado $\rho_2 = 1{,}63$ para o primeiro caso e $\rho_2 = 0{,}625$ para o segundo. Na Equação (67) devem-se substituir também os valores $\Delta\Phi_0$ e z_c medidos para a amostra no campo distante.

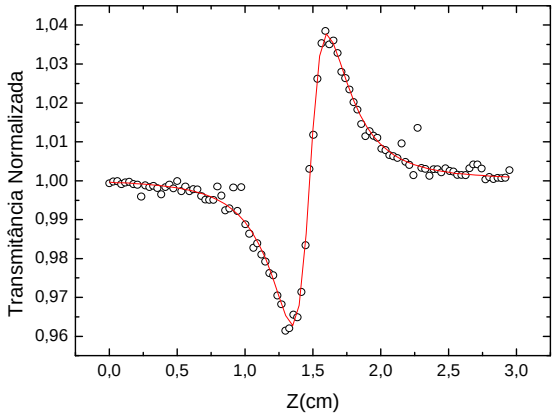

Figura 34 - Sinal Z-scan no campo distante utilizando cristal de rubi em 514nm a fim de colocar a amostra simetricamente em relação ao foco e obter os valores de $\Delta\Phi_0$ *e* z_c *usados nas simulações. O ajuste teórico foi feito usando a Equação (54).*

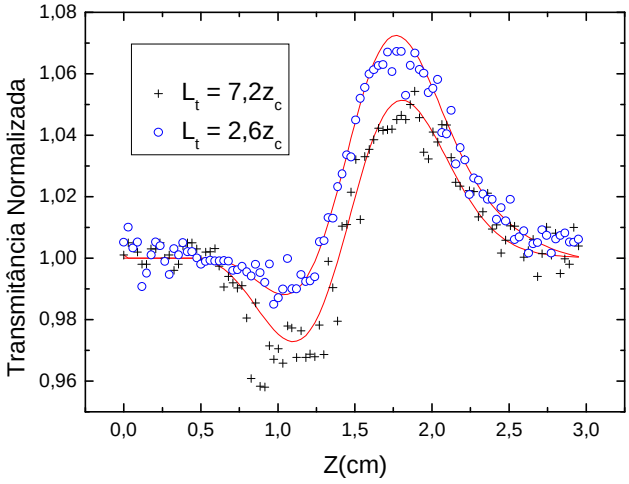

Figura 35 - Sinais Z-scan experimentais no cristal de rubi em 514nm para campo próximo quando L_t*=7,2*z_c *e* L_t*=2,6*z_c*.O ajuste teórico foi feito usando a Equação (67).*

Muitos experimentos não puderam ser realizados devido a limitações físicas e/ou instrumentais, por exemplo, para aproximarmos o detector em distâncias da ordem $L_t \approx 1z_c$, então precisamos de configurações em que o parâmetro confocal seja grande o suficiente para que o detector possa ser colocado sem problemas. Por exemplo, $z_c = 5mm$ necessita colocar o detector em ~*5mm* depois do foco do feixe, fazendo com que seja muito difícil fazer uma varredura se a espessura da amostra for *2mm* por exemplo. Por outro lado, z_c grande implica

em um maior raio da cintura do feixe, fazendo com que a intensidade caia, assim como a não-linearidade induzida, dificultando a medição.

7.3 Experimentos com dois feixes

Medidas de Z-scan utilizando dois feixes são difíceis de fazer devido ao alinhamento extremamente crítico. A lente de população não se difunde por toda a amostra, mas é um advento bem localizado, assim, o laser de prova deve estar apontado exatamente sobre o centro do spot do laser de excitação para se conseguir alguma medição. Além disso, como foi visto pelas simulações, quanto maior for a cintura do feixe de prova em relação ao feixe de excitação, menor será o sinal. Através das simulações (Seção 5.1.3) vimos que a cintura do feixe de prova deve ser da mesma ordem do que a cintura do feixe de excitação ou mais exatamente devemos ter $m_0 \sim 0.7$.

Outro fator preponderante para se conseguir uma medição está relacionado com a distância que a cintura de um feixe está posicionada em relação ao outro, ou seja, a_0. Para valores de a_0 muito distantes de zero, o sinal diminui drasticamente.

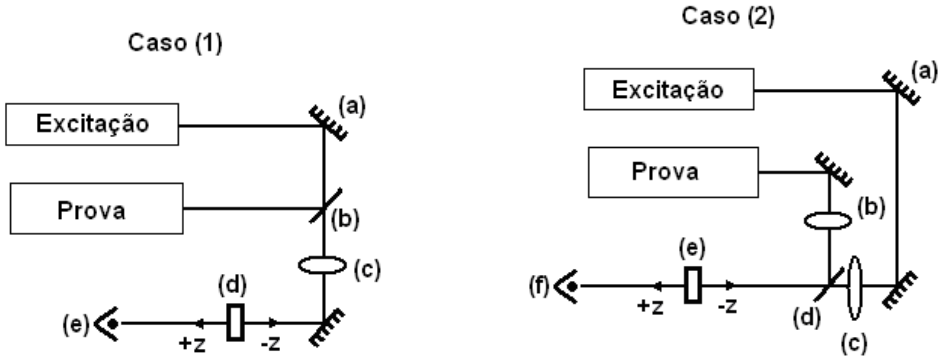

Figura 36 – Configurações experimentais propostas para um experimento de dois feixes. No Caso (1) apenas uma lente focaliza ambos os feixes. No caso (2) lentes diferentes para cada feixe são utilizadas.

Inicialmente, fizemos algumas propostas de experimentos utilizando duas cores que fosse viável quanto à razão sinal-ruído. Para isso, devemos esquematizar um experimento que maximize o sinal da transmitância normalizada. Os esquemas dos experimentos propostos estão mostrados na Figura 36. No caso (1), os feixes de prova e excitação foram focalizados pela mesma lente. Considerando a óptica gaussiana, devido à diferença dos comprimentos de onda, a distância focal e a cintura do feixe depois da lente não serão as mesmas para os dois feixes, ou seja, não teremos controle sobre m_0 e a_0, respectivamente. Também, devido à aberração cromática, a qual é o resultado da dispersão do índice de refração do material da lente com o comprimento de onda, a distância focal será diferente para as duas cores. Por exemplo, se o índice de refração é maior no azul que no vermelho, a refração desvia mais a luz azul para uma lente convexa positiva. Essa aberração intensifica a perda de controle sobre a_0. Quando se utiliza apenas uma lente para ambos os feixes, devemos atentar ainda mais para a questão de alinhamento, pois um desvio mínimo pode ser maximizado pela lente.

O caso (2), representa a situação otimizada, onde cada feixe possui uma lente específica colocada em uma posição propositada. Isso é necessário para conseguirmos a situação em que $m_0=0.7$ e $a_0=0$, ou ao menos, para termos controle a fim de chegarmos à vizinhança desses valores. Assim, baseado nas simulações realizadas, foi possível esquematizar a forma mais viável de se medir o índice de refração não-linear no comprimento de onda do feixe de prova, ou seja, n_2 não-degenerado.

7.3.1 Z-scan com duas cores

Realizamos um experimento Z-scan com dois feixes utilizando uma amostra de rubi de *1,57mm* de espessura, a qual possui tempo de vida $\tau_0 \approx 3{,}3ms$. Um laser de excitação de argônio operando em 514nm com potência *~10mW* (para não atingir o regime saturado) foi usado, enquanto um feixe laser de He-Ne em *~633nm* funcionou como prova, com uma potência de *~500μW*. Assim, temos que a razão entre os comprimentos de onda é $\zeta \approx 0{,}813$.

O esquema mostrado na Figura 37 foi montado, onde foram utilizadas duas lentes (uma para cada feixe) a fim de ter controle sobre os parâmetros m_0 e a_0 (Seção 7.3). A lente para o feixe de prova foi de ~12cm enquanto do feixe de excitação de ~17cm. A diferença das

lentes foi propositada devido ao fato da cintura da luz laser emitida pelo He-Ne ser muito maior do que a cintura do laser de argônio. Mesmo assim, utilizando essas lentes, para o argônio obtivemos $w_{0e} \approx 40\mu m$ e para o He-Ne $w_{0p} \approx 58\mu m$, em que $m_0 \approx 2{,}1$.

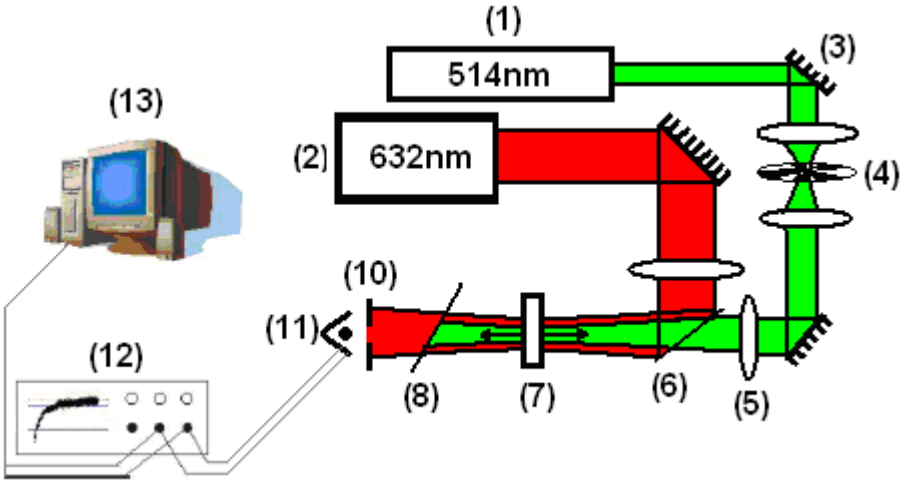

Figura 37 – Aparato experimental utilizado nas medidas de Z-scan com dois feixes. (1) laser de excitação, (2) laser de prova, (3) espelhos, (4) chopper, (5) lentes, (6) divisor de feixes, (7) amostra, (8) filtro para o feixe de excitação,(10) íris, (11) detector, (12) osciloscópio e (13) computador de aquisição.

As lentes foram então dispostas procurando que o parâmetro a_0 não fugisse de *zero*. Para esta configuração, obtivemos $a_0 \approx 1.3cm$, ou seja, a cintura do feixe de prova está a ~ *1.3cm* depois do feixe de excitação, seguindo a direção de incidência da luz.

Um divisor de feixes foi usado para separar os feixes incidentes, a fim de que ambos ficassem colineares. Dessa forma, após passarem pela amostra, um filtro barrava o comprimento de onda do argônio, permitindo que apenas a cor vermelha tivesse acesso à íris. Por sua vez, a íris foi colocada a uma distância de *~108cm* do foco do laser de excitação, em que a abertura foi tal que a transmissão linear fosse S = 0,5.

A Figura 38 mostra o resultado da varredura z obtida, enquanto a linha vermelha representa a simulação através da Equação (76) para dois feixes. Dentro das limitações técnicas e instrumentais, consideramos o resultado satisfatório. Mesmo a razão sinal-ruído sendo baixa, o sinal obtido concordou razoavelmente bem quanto à amplitude do pico e vale, os quais apresentaram uma assimetria, sendo que a medida da “profundidade” do vale é maior do que a “altura” do pico.

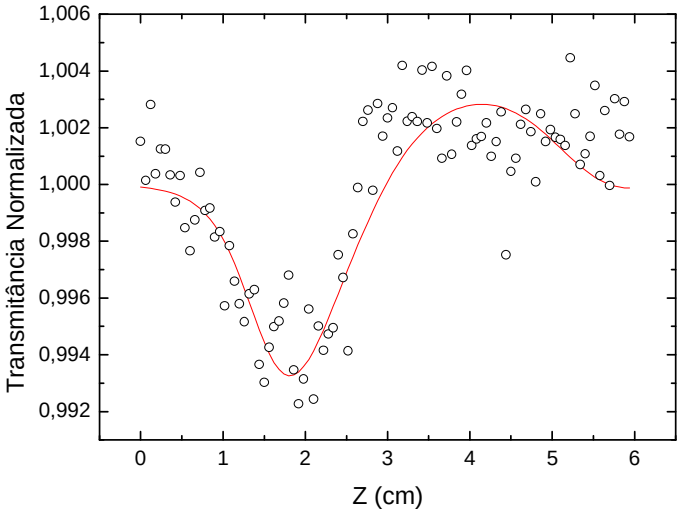

Figura 38 – Z-scan para dois feixes em uma amostra de rubi em que os parâmetros medidos foram: L_t=108 cm, ζ=0,813 , m_0 =2,1, ρ_2=0,5887 , a_0 =1,3cm. Ajuste feito usando a Equação (76).

7.3.2 Proposta Experimental para medição de n_2 não-degenerado.

A realização de uma medida simples e precisa do índice de refração não-linear, não pode ser conseguida fazendo um Z-scan com dois feixes, devido ao alinhamento crítico. No entanto, o alinhamento em um único ponto (em que a amostra fica parada) é de muito maior simplicidade. Pensando nisso, propusemos um método para a medida de n_2 não-degenerado em que a amostra não precisa se locomover.

Primeiramente, devem-se medir os parâmetros que caracterizam a geometria dos dois feixes, ou seja, m_0, a_0 e ζ . Assim como se deve medir a abertura da íris em frente ao detector (S) e a distância que o detector está situado do foco do feixe de excitação (L_t). Utilizando esses valores medidos na Equação para dois feixes (76), podemos simular a curva da transmitância em função da distância z percorrida pela amostra.

Através da curva simulada, podemos ver em quais locais estão os picos e vales, ou seja, as posições em que o sinal é máximo. Assim, desloca-se a amostra até esta posição e toma-se o sinal transiente para várias potências. Utilizando novamente a Equação (76) podemos calcular para cada sinal transiente a diferença de fase induzida. Dessa forma, através

da Equação (42) conseguimos determinar n_2 no comprimento de onda do feixe de prova (como será mostrado a seguir), ou seja, conseguimos fazer uma medida de n_2 não-degenerado.

7.3.3 Medida de n_2 não-degenerado

Para essa medida, aproveitamos a mesma configuração usada na Seção (7.3.1), sendo que este experimento é uma continuação daquele.

Utilizamos um motor de passo para deslocar a amostra até a posição de vale do sinal que está localizada em torno de $z \approx -0.6 z_{Cp} \approx -1cm$, onde z_{Cp} é o parâmetro confocal do feixe de prova. Nesse ponto, tomamos o sinal transiente do feixe de prova em função da potência do feixe de excitação, onde o alinhamento pode ser realizado observando a maximização do sinal no osciloscópio. A Figura 39 mostra o sinal transiente obtido para algumas diferentes potências na posição de vale do sinal.

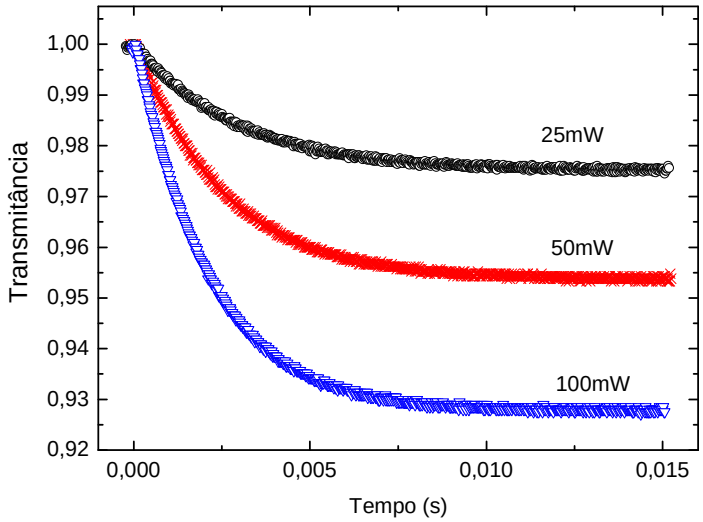

Figura 39 – Sinal transiente do feixe de prova (633nm) para o cristal de rubi excitado em 514nm em diferentes potências. Sinal obtido em d=108 cm, ζ=0,813 , m_0 =2,1, ρ_2=0,5887 , a_0 =1,3cm e z ~ -1cm a partir do foco do feixe de excitação.

A razão entre a transmitância em $t \approx 0$, (em que há apenas transmissão linear) e $t >> \tau$, é a transmitância normalizada ΔT. O sinal transiente, ou seja, a transmitância normalizada ΔT, aumenta na medida em que a potência é alterada, essas alterações levam a mudanças diretamente proporcionais na diferença de fase ($\Delta\Phi_0$) provocada pelo feixe de excitação que pode ser calculada através da Equação (76) para dois feixes, usando os seguintes parâmetros medidos: S = 0,5 (ou $\rho_2 = 0.5887$), $m_0 = 2{,}1$, $\zeta = 0.813$, $\bar{d} = 64{,}7$ e $z \approx -0.6 z_{cp}$, onde a transmitância normalizada é o próprio ΔT do sinal transiente. Assim, para cada potência, calculamos $\Delta\Phi_0$ correspondente. A Figura 40 mostra o gráfico da diferença de fase $\Delta\Phi_0$ calculada contra a intensidade do feixe de excitação, assim como os dados experimentais ΔT.

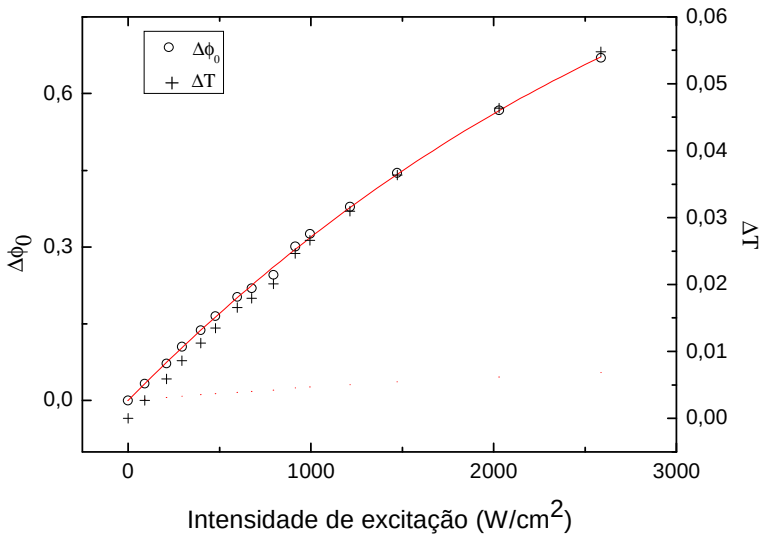

Figura 40 – $\Delta\Phi_0$ calculado a partir dos sinais transientes (ΔT) do feixe de prova (633nm) no cristal de rubi em função da intensidade de excitação (514nm).A linha vermelha representa o ajuste teórico para $\Delta\Phi_0$

Usando a Equação (42) podemos ajustar os dados através de $\Delta\Phi_0 = a \times I/(1 + I/I_S)^c$, onde I é a intensidade de excitação e $I_S \approx 1{,}5\, KW/cm^2$ a intensidade de saturação para esta amostra. Do ajuste encontramos $a = (3{,}90 \pm 0{,}01) \times 10^{-4}$ e $c = (0{,}40 \pm 0{,}02)$. Com isso, conseguimos encontrar o valor de $n_2^{'}$ em $\lambda = 633nm$ para o rubi em bom acordo com o valor encontrado através da técnica de Interferometria não-linear [38]. A

diferença de polarizabilidade $\Delta\alpha$ em $\lambda = 633nm$ também pode ser calculada usando a Equação (23).

Tabela1: Valores de n'$_2$ em 633nm medido através de diferentes técnicas.

$n_2^{'}/A(\times 10^{-8}\, cm^2/W)$	$\Delta\alpha(\times 10^{-25} cm^{-3})$	$A(cm^{-1})$	*Concentração* $(\times 10^{19}\, cm^{-3})$	Técnica	Ref.
1,72	1,62	1,28	1,9	Z-scan duas cores	Este trabalho
1,7	1,6	0,75	1,2	Interferometria	38

8 Conclusões

Estudos quanto à técnica de varredura z foram realizados utilizando um modelo em que um feixe gaussiano incide em uma amostra fina com baixa não-linearidade. Usando a integral de difração de Fresnel-Kirchhoff (IDFK), foram estudados os casos em que o detector se encontra muito distante da amostra ou no campo próximo, isso significa dizer que a distância é muito maior do que o parâmetro confocal do feixe (z_c) ou comparável a ele. Resultados analíticos foram obtidos para a transmitância normalizada em função da distância z percorrida pela amostra, do raio de abertura no plano do detector (ρ_2) e da distância do detector à amostra (d). Esses resultados mostraram que, a influência da abertura em medidas no campo distante afeta de maneira contundente o valor de n_2 obtido, devido, principalmente, ao fato surpreendente de que a distância entre o pico e o vale da curva Z-scan (ΔZ_{pv}) não é constante tal como geralmente suposto. Por exemplo, para abertura linear de S=0,5 (usado na maioria dos experimentos) ΔZ_{pv} é ~26% menor que para S=0. Esse fato altera o cálculo do valor de n_2 obtido a partir de uma medida Z-scan, aumentando seu valor em ~36% . Medidas experimentais comprovaram os resultados teóricos conseguidos.

O mesmo modelo foi utilizado para o estudo da técnica de varredura z com dois feixes, em que resultados analíticos foram obtidos. Esses resultados serviram para otimizar a configuração experimental em um experimento deste tipo. Um resultado para varredura z com dois feixes foi realizado, sendo mostrada a inviabilidade deste tipo de medida, devido ao alinhamento extremamente crítico. Por isso, propusemos um novo método para medição do índice de refração não-linear no comprimento de onda do feixe de prova, baseado nos resultados obtidos. Isso é muito importante para conseguirmos medidas espectrais de n_2, assim como investigar como a diferença de polarizabilidade entre o estado excitado e fundamental do íon varia com a freqüência do feixe de prova $\Delta\alpha(\lambda_p)$ (Pois muitas vezes, o íon não absorve o comprimento de onda de prova, não sendo possível fazer uma medida Z-scan convencional). O objetivo do método proposto é aumentar a confiabilidade deste tipo de medida, ou seja, buscar a configuração que seja menos sensível às incertezas experimentais inerentes. Uma medida foi realizada a partir desse método e o resultado se mostrou consistente quando comparado com uma medida feita utilizando técnica experimental mais complexa. Contudo, como proposta para pesquisas futuras, o método proposto deve ser testado para medidas em diferentes amostras com diferentes comprimentos de onda.

Referências

1 SHEIK-BAHAE, M.; SAID, A.A.; WEI, T.; HAGAN, D.; STRYLAND, E. W. V. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE Journal Quantum Electronics,* v.26, n.4, p.760-769, 1990.

2 SAMAD, R.E.; VIEIRA Jr., N.D. Analytical description of z-scan on-axis intensity. *Journal of Optical Society of America B*, v.15, n.11, p.2742-2747, 1998.

3 WEAIRE, D.; WHERRETT, B.S.; MILLER, A.B.; SMITH, S.D. Effect of low-power nonlinear refraction on laser-beam propagation in InSb. *Optics Letters*, v.4, n.10, p.331-333, 1979.

4 HUGUES, S.; BURZLER, J. M.; SPRUCE, G.;WHERRET, B. S. Fast Fourier transform techniques for efficient simulation of Z-scan measurements. *Journal of Optical Society of America B*, v.12, n.10, p.1888-1893, 1995.

5 KWAK, C.H.; LEE Y.L.; KIM, S.G. Analysis of asymmetric *Z*-scan measurement for large optical nonlinearities in an amorphous As_2S_3 thin film. *Journal of Optical Society of America B*, v.16, n.4, p.600-604, 1999.

6 HERMANN, J.A.; McDUFF, R.G. Analysis of spatial scanning with thick optically nonlinear media. *Journal of Optical Society of America B*, v.10, n.11, p.2056-2064, 1993.

7 TOCI, G.; VANNINI, M.;SALIMBENI, R.; DUBINSKII, M.A.; GIORGETTI, E. First *Z*-scan n_2 measurements on crystal hosts for ultraviolet laser systems. *Applied Physics B*, v.71, p.907-910,2000. doi 10.1007/s003400000445.

8 CHAPPLE, P.B.; STAROMLYNSKA, J.;McDUFF, R.G. Z-scan studies in the thin- and the thick-sample limits. *Journal of Optical Society of America B*, v.11, n.6, p.975-982, 1994.

9 YAO, B.; REN, L.; HOU, X. Z-scan theory based on a diffraction model. *Journal of Optical Society of America B*, v.20, n.6, p.1290-1294, 2003.

10 CHEN, S.Q.;LIU, Z.B.;ZANG, W.P.; TIAN, J.G.; ZHOU, W.J.; SONG, F.; ZHANG, C.P. Study on Z-scan characteristics for a large nonlinear phase shift. *Journal of Optical Society of America B*, v.22, n.9, p.1911-1916, 2005.

11 CHAPPLE, P.B.; STAROMLYNSKA, J.; HERMANN, J.A.; McKAY, T.J.; McDUFF, R.G. Single-Beam Z-scan: Measurement techniques and analysis. *Journal of Nonlinear Optical Physics and Material*, v.6, n.3, p.251-293, 1997.

12 SHEIK-BAHAE, M.; WANG, J.; DESALVO, J.R.; HAGAN, D.J.; STRYLAND, E.W.V. Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color z-scan. *Optics Letters*, v.17, p.258-260, n.4, 1992.

13 MA, H.; GOMES, A.S.L.; DE ARAUJO, C.B. Measurement of nondegenerate optical nonlinearity using a two-color single beam method. *Applied Physics Letters*, v.59, n.21, p.2666-2668, 1991.

14 PARKER, M.R. The Kerr Magneto-optic effect (1876-1976), *Physica B+C*, v.86-88B, n.3, p.1171-1176, 1977.

15 MAIMAN, T.H. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, v.187, n.4736, p.493-494, 1960.

16 FRANKEN, P.A.; HILL, A.E.; PETERS, C.W.; WEINREICH, G. Generation of optical harmonics. *Physical Review Letters*, v.7, n.4, p.118-119, 1961.

17 FLYTZANIS, C.; OUDAR, J.L. *Nonlinear optics:* materials and devices. Berlin: Springer-Verlag, 1986.

18 MILLS, D. L. *Nonlinear optics*. 2nd ed. Berlin: Springer-Verlag, 1998.

19 BOYD, R. W. *Nonlinear optics*. San Diego, CA: Academic, 1992.

20 SHEN, Y. R. *The principles of nonlinear optics*. New York: John Wiley & Sons, 1984.

21 McWANE, P.D. Variable focal length lenses using material with intensity dependent refractive index. *Nature*, v.211, n.5053, p.1081-1082, 1966.

22 COTTER, D.; MANNING,R.J.; BLOW,K.J.; ELLIS,A.D.; KELLY,A.E.; NESSET,D.; PHILLIPSI.D.; POUSTIE,A.J.; ROGERS,D.C. Nonlinear optics for high-speed digital information processing. *Science*, v.286, n.5444, p.1523–1528, 1999.

23 FELDMAN, A.; HOROWITZ, D.;WAXLER, M.R. Mechanisms for self-focusing in optical glasses. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, v.QE-9, n.11, p.1054-1061, 1973.

24 RIEDEL, E. P.; BALDWIN G.D. Theory of dynamic optical distortion in isotropic laser materials. *Journal of Applied Physics*, vol.38, n.7, p.2720-2725, 1967.

25 RIEDEL, E. P.; BALDWIN G.D. Measurements of dynamic optical distortion in Nd-doped glass laser rods. *Journal of Applied Physics*, vol.38, n.7, p.2726-2738, 1967.

26 POWELL, R.C.; PAYNE, S.A.; CHASE, L.L.; WILKE, G.D. Four-wave mixing of Nd^{3+}-doped crystals and glasses. *Physical Review B*, v.41, n.13b, p.8593-8602, 1990.

27 LIMA, S.M.; JIAO, H.; NUNES, L.A.O.; CATUNDA, T. Nonlinear refraction spectroscopy in resonance with laser lines in solids. *Optics Letters*, v.27, n.10, p. 845- 847, 2002.

28 PILLA, V.; INPINNISI, P.R.; CATUNDA, T**.** Measurement of saturation intensities in ion doped solids by transient nonlinear refraction. *Applied Physics Letters*, v.70, n.7, p.817-819, 1997.

29 SIEGMAN, A.E. *Lasers.* Palo Alto, CA-USA: University Science Book, 1986.

30 SHEPPARD, C.J.R.; TOROK, P. Dependence of fresnel number on aperture stop position. *Journal of Optical Society of America A*, v.15, n.12, p.3016-3019, 1998.

31 BAPTISTA, M.S. Métodos analíticos ultra-sensíveis: lente térmica e técnicas correlatas. *Química Nova*, v.22, n.4, p.565-573, 1999.

32 ALDA, J. Laser and Gaussian beam propagation and transformation. Disponível em: <http://www.ucm.es/info/euoptica/org/pagper/jalda/docs/libr/laserandgaussian_eoe_03.pdf>. Acesso em: 05 de Maio de 2010.

33 PILLA, V. *Medidas de intensidades de saturação por refração não-linear transiente*. Dissertação (Mestrado). Instituto de física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 1996.

34 ANDRADE, A.A.;CATUNDA, T.;LEBULLENGER, R.;HERNANDES, A.C.;BAESSO, M.L. Time-resolved study of thermal and electronic nonlinearities in Nd3+ doped fluoride glasses. *Electronics Letters*, v.34, n.1, p.117-119, 1998.

35 SAID, A.A.; SHEIK-BAHAE, M.; HAGAN, D.J.; WEI, T.H. WANG, J.; YOUNG, J.; VANSTRYLAND, E.W. Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe. *Journal of Optical Society of America B*, v.9, n.3, p.405-414, 1992.

36 WEI, T.H.; HUANG, T.H.; LIN, M.S. Signs of nonlinear refraction in chloroaluminum phthalocyanine solution. *Applied Physics Letters*, v.72, n.3, p.2505-2507, 1998.

37 ZHOU, J.; PARK, N.; VAHALA, K.J.; NEWKIRK, M.A.; MILLER, B.I. Four-wave mixing wavelength conversion efficiency in semiconductor traveling-wave amplifiers measured to 65 nm of wavelength shift. *IEEE Photonics Technology Letters*, v.6, n.8, p.984-987, 1994.

38 CATUNDA, T.; CURY, L.A. Transverse self-phase modulation in ruby and $GdAl0_3$: Cr^{+3} crystals. *Journal of Optical Society of America B*, v.7, n.8, p.1445-1455, 1990.

39 BAE, Y.; SONG, J.J.;KIM, Y.B. Photoacoustic study of two-photon absorption in hexagonal ZnS. *Journal of Applied Physics*, v.53, n.4, p.615-619, 1982.

40 MAKER, P.D.; TERHUNE, R.W. Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electric field strength. *Physical Review*, v.137, n.3A, p.A801-A818, 1965.

41 SULLIVAN, A.; WHITE, W.E.; CHU, K.C.; HERITAGE, J.P.; DELONG, K.W.; TREBINO, R. Quantitative investigation of optical phase measuring techniques for ultrashort pulse lasers. *Journal of Optical Society of America B*, v.13, n.9, p.1965-1978, 1996.

42 TSUDA, S.; BRITO CRUZ, C.H. Femtosecond dynamics of the AC stark effect in semiconductor doped glass. *Applied Physics Letters*, v.68, n.2, p.1093-1095, 1996.

43 OLIVEIRA, L.C.; CATUNDA, T.; ZÍLIO, S.C. Saturation effects in z-scan measurements. *Japanese Journal of Applied Physics*, v.35, n.5A, p.2649-2652, 1996.

44 HERMANN, J.A.; WILSON, P.J. Factors affecting optical limiting and scanning with thin nonlinear samples. *International Journal of Nonlinear Optical Physics*, v.2, n.2, p.613-629, 1993.

45 MIAN, S.M.; TABERI, B.; WICKSTED, J.P. Effects of beam ellipticity on Z-scan measurements. *Journal of Optical Society of America B*, v.13, n.5, p.856-863, 1996.

46 MIAN, S.M.; WICKSTED, J.P. Measurement of optical nonlinearities using an elliptic Gaussian beam. *Journal of Applied Physics*, v.77, n.10, p.5434-5436, 1995.

47 AGNESI, A.; REALI, G.C.; TOMASELLI, A. Beam quality measurement of laser pulses by nonlinear optical techniques. *Optics Letters*, v.17, n.24, p.1764-1766, 1992.

48 ZÍLIO, S.C. *Óptica moderna*: fundamentos e aplicações. São Carlos: Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 2009.

49 SUTHERLAND, R.L. Effects of multiple internal sample reflections on nonlinear refractive Z-scan measurements. *Applied Optics*, v.33, n.24, p.5575-5584, 1994.

50 XIA, T.; HAGAN, D.J.; SHEIK-BAHAE, M.; VAN STRYLAND, E.W. Eclipsing z-scan measurement of λ/104 wave-front distortion. *Optics Letters*, v.19, n.5, p.317-319, 1994.

51 PETROV, D.V.; GOMES, A.S.L.; DE ARAÚJO, C.B. Reflection z-scan technique for measurements of optical properties of surfaces. *Applied Physics Letters*, v.65, n.9, p.1067-1069, 1994.

52 BIGELOW, M.S.; LEPESHKIN, N.N.; BOYD, R.W. Superluminal and slow light propagation in a room-temperature solid. *Science*, v.301, n.5630, p.200-202, 2003.

53 WANG, J.; SHEIK-BAHAE, M.; SAID, A.A.; HAGAN, D.J.; STRYLAND, E.W.V. Time-resolved Z-scan measurements of optical nonlinearities. *Journal of Optical Society of America B*, v.11, n.6, p.1009-1017, 1994.

54 OLIVEIRA, L.C.; ZÍLIO, S.C. Single-beam Z-scan measurements of slow absorbers. *Applied Physics Letters*, v.65, n.17, p. 2121 – 2123, 1994.

55 NATIONAL INSTRUMENTS CORPORATION. *Labview fundamentals*. Disponível em:<http://www.ni.com/pdf/manuals/374029a.pdf>. Acesso em: 08 de Abril de 2010.

Apêndice A

IDFK em coordenadas cilíndricas

A IDFK para o campo próximo, ou seja, na aproximação de Fresnel em coordenadas cartesianas pode ser dada através da Equação (29). Enquanto a IDFK na aproximação de Fraunhofer pela Equação (30). Nos problemas em que existe simetria cilíndrica ou circular, onde a amplitude do campo incidente em S (Figura 3) é dada por $\varepsilon_\sigma(x_1, y_1) = \varepsilon_\sigma(r_1)$ com $r_1^2 = x_1^2 + y_1^2$ e em A é dado por $\varepsilon(x_2, y_2) = \varepsilon(r_2)$ com $r_2^2 = x_2^2 + y_2^2$, devemos utilizar as equações acima em coordenadas cilíndricas.

As coordenadas cartesianas se relacionam com as coordenadas cilíndricas através de:

$$x_1 = r_1 \cos\varphi \quad \rightarrow \quad x_1^2 = r_1^2 \cos^2\varphi \quad \rightarrow \quad dx_1 = \cos\varphi dr_1 - r_1 sen\varphi d\varphi$$

$$y_1 = r_1 sen\varphi \quad \rightarrow \quad y_1^2 = r_1^2 sen^2\varphi \quad \rightarrow \quad dy_1 = sen\varphi dr_1 - r_1 \cos\varphi d\varphi$$

$$x_2 = r_2 \cos\theta$$

$$y_2 = r_2 sen\theta$$

$$x_1^2 + y_1^2 = r_1^2 \cos^2\varphi + r_1^2 sen^2\varphi = r_1^2\left(\cos^2\varphi + sen^2\varphi\right) = r_1^2$$

$$x_2^2 + y_2^2 = r_2^2 \cos^2\theta + r_2^2 sen^2\theta = r_2^2\left(\cos^2\theta + sen^2\theta\right) = r_2^2$$

$$x_1 x_2 + y_1 y_2 = r_1 \cos\varphi r_2 \cos\theta + r_1 sen\varphi r_2 sen\theta = r_1 r_2\left(\cos\varphi\cos\theta + sen\varphi sen\theta\right) = r_1 r_2 \cos(\varphi - \theta)$$

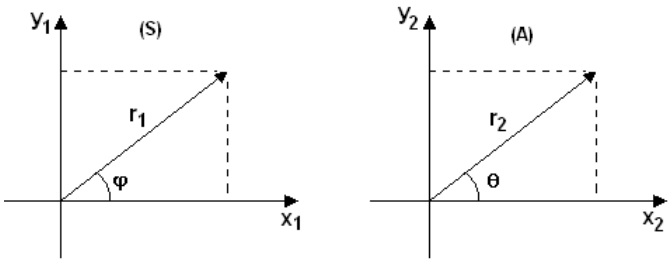

Figura A.1 - Sistema de coordenadas no plano de entrada (S) e no plano do detector (A).

A Equação (29) torna-se:

$$\varepsilon\ (r_2,\theta) = \frac{i}{\lambda L} e^{-i\xi} \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} e^{-ikL\left(\frac{r_1^2}{2L^2} - \frac{r_1 r_2 \cos(\varphi-\theta)}{L^2}\right)} \varepsilon_\sigma(r_1,\varphi) r_1 dr_1 d\varphi$$

assim, podemos reescrever o campo como:

$$\varepsilon\ (r_2,\theta) = \frac{i}{\lambda L} e^{-i\xi} \int_0^{\infty} \left[\int_0^{2\pi} Exp\left[ikL\left(\frac{r_1 r_2 \cos(\varphi-\theta)}{L^2} \right) \right] d\varphi \right] e^{-ik\frac{r_1^2}{2L}} \varepsilon_\sigma(r_1,\varphi) r_1 dr_1$$

Fazendo a seguintes substituições $u = kr_1 r_2 / L$ e $v = \varphi - \theta$ na integral temos:

$$\Lambda = \left(\int_0^{2\pi} Exp[-iu\cos v] \right) dv$$

que corresponde à função de Bessel de ordem zero, $J_0(u)$, multiplicada por 2π

$$J_0(u) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{-iu\cos v} dv$$

Com isso temos $\Lambda = 2\pi J_0(u)$ e a equação (29) pode ser reescrita em coordenadas cilíndricas como:

$$\varepsilon_\sigma(r_2) = \frac{ik}{L} e^{-i\xi} \int_0^{\infty} e^{-ik\frac{r_1^2}{2L}} J_0\left(\frac{kr_1 r_2}{L} \right) \varepsilon(r_1) r_1 dr_1$$

Se o interesse estiver no campo distante, (aproximação de Fraunhofer) devemos utilizar a Equação (30), que ao se usar as transformações para coordenadas cilíndricas pode ser escrita como:

$$\varepsilon_\sigma(r_2) = \frac{ik}{L} e^{-i\xi} \int_0^{\infty} J_0\left(\frac{kr_1 r_2}{L} \right) \varepsilon(r_1) r_1 dr_1$$

Apêndice B

Fator de correção temporal

Medidas utilizando chopper como modulador estão limitadas temporalmente devido ao tempo finito que a pá leva para cortar o feixe. Como mostrado na Figura B.1 quanto maior o diâmetro do feixe mais arredondado ficará o sinal da modulação.

O tempo que a pá do chopper leva para cortar totalmente a luz é dado por $t_{ch} = v/2w$, onde w é o diâmetro do feixe laser e v é a velocidade linear da rotação (velocidade angular ω), sendo *R* a distância entre o centro de rotação até ao centro do feixe. Se o chopper possui n aberturas, então a freqüência do sinal é $f = 2\pi n/\omega$.Assim temos que $t_{ch} = nw/\pi R f$.

Na maioria dos nossos experimentos usamos o chopper com *n = 6* e *R = 45 mm*. Na saída do laser, $w = 750\mu m$ e usando uma freqüência de *826Hz* (o valor mais alto disponível o laboratório) então $t_{ch} = 39\mu s$. O que representa uma resolução temporal muito baixa em relação a experimentos onde se utiliza amostras com tempo de vida curto, como GSGG, por exemplo, onde $\tau_0 \approx 115\mu s$. A condição para se obter um bom sinal é $t_{ch} << \tau$.

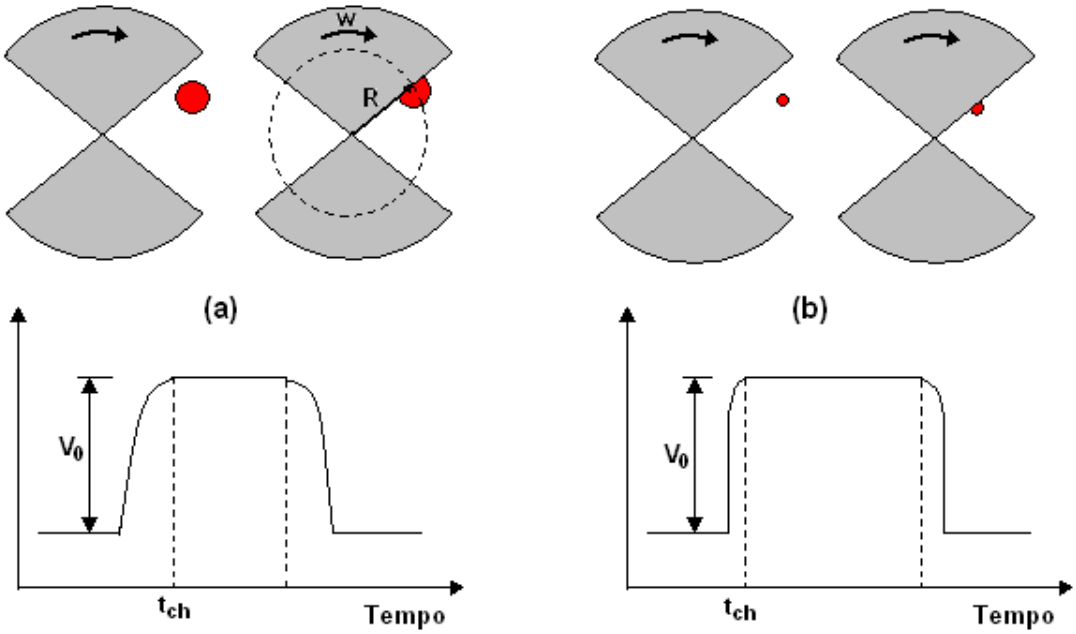

Figura B.1 –Figura demonstrando como o sinal da modulação é alterado. Em (a) o feixe possui uma cintura maior e o arredondamento no sinal é mais acentuado do que em (b) devido ao tempo que a pá do chopper leva para barrá-lo completamente.

Como t_{ch} e w são grandezas proporcionais, se diminuirmos a cintura do feixe na região em que o chopper o corta, então conseguiremos uma diminuição no tempo de chaveamento t_{ch}. Por exemplo, se tivermos uma lente que focaliza o feixe com $w \approx 20\mu m$, 37 vezes menor do que o valor da saída, então teremos $t_{ch} = 1\mu s$.

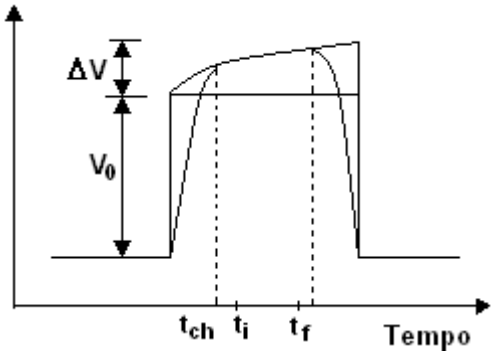

Figura B.2 – Sinal transiente de uma medida Z-scan, em que o sinal é alterado pelo tempo de chaveamento do chopper, os tempos final e inicial para a medida devem ser tomados levando em conta esta consideração.

Consideraremos agora o cálculo da amplitude ΔV do sinal quando a medida é feita entre as linhas tracejadas da Figura B.2, nos tempos t_i e t_f. Supondo-se que o sinal é uma exponencial crescente com a amplitude ΔV e tempo τ, temos:

$$V(t_f) = V_0 + \Delta V\left(1 - Exp\left[-\frac{t_f}{\tau}\right]\right)$$

$$V(t_f) = V_0 + \Delta V\left(1 - Exp\left[-\frac{t_i}{\tau}\right]\right)$$

Como, em Z-scan $\Delta V << V_0$, temos

$$\frac{V(t_f)}{V(t_i)} \approx 1 + \frac{\Delta V}{V_0} - \frac{\Delta V}{V_0} Exp\left[-\frac{t_f}{\tau}\right] - \frac{\Delta V}{V_0} + \frac{\Delta V}{V_0} Exp\left[-\frac{t_i}{\tau}\right] - \ldots$$

assim

$$\frac{\Delta V}{V_0} \approx \frac{V(t_f)/V(t_i) - 1}{Exp\left[-t_f/\tau\right] - Exp\left[-t_i/\tau\right]}$$

onde

$$V(t_f)/V(t_i) - 1 = \Delta T$$

Com isso, o fator de correção temporal pode ser dado por:

$$C_t = \left(Exp\left[-t_f/\tau\right] - Exp\left[-t_i/\tau\right]\right)^{-1}$$