UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Escola de Engenharia de São Carlos

Instituto de Física de São Carlos

Instituto de Química de São Carlos

**ESTUDO DE EFEITOS DE SATURAÇÃO NO
ÍNDICE DE REFRAÇÃO NÃO-LINEAR DE
SÓLIDOS DOPADOS.**

Eik Tenório

USP/IFSC/SBI

8-2-001261

Dissertação apresentada ao Programa de
Pós-Graduação em Ciência e Engenharia
de Materiais, para a obtenção do título de
Mestre em Ciência e Engenharia de
Materiais.

Orientador: Prof. Dr. Tomaz Catunda

São Carlos
1999

Tenório, Eik

Estudo de efeitos de saturação no índice de refração não-linear de sólidos dopados / Eik Tenório - São Carlos, 1999.

93 p

Dissertação (Mestrado) - EESC/IFSC/IQSC - USP, São Carlos, 1999.

Orientador: Prof. Dr. Tomaz Catunda

1. Índice de refração não-linear. 2. Sólidos Dopados.

I. Título

Ciência e Engenharia de Materiais

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Escola de Engenharia de São Carlos

Instituto de Física de São Carlos

Instituto de Química de São Carlos

CAIXA POSTAL - 369

CEP 13560-970 - São Carlos/SP - Brasil

Tel/Fax: (016) 273-9777

E-mail: erica@if.sc.usp.br

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA DISSERTAÇÃO DE MESTRADO DE **EIK TENORIO**, APRESENTADA A ÁREA INTERUNIDADES EM CIÊNCIA E ENGENHARIA DE MATERIAIS, DA EESC-IFSC-IQSC, UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 09/2/1999.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. TOMAZ CATUNDA (*Orientador*) (FFI-IFSC-USP)

Prof. Dr. SÉRGIO CARLOS ZÍLIO (FCM-IFSC-USP)

Prof. Dr. MAURO LUCIANO BAESSO (UEMaringá)

"Aquele que sabe muito sobre os outros pode ser instruído, mas aquele que se compreende é mais inteligente. Aquele que controla os outros pode ser forte, mas aquele que se domina é ainda mais poderoso."

Lao-Tseu, Tao Te-King

"Para cada esforço disciplinado há múltiplas recompensas."

Jim Rohn

A meus pais pelo amor,
carinho, incentivo e
sacrifício.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Tomaz Catunda pela orientação, apoio, incentivo, amizade e compreensão durante o desenvolvimento de todo trabalho.

Ao Prof. José Leonil Duarte pelo apoio e amizade durante a graduação, como também a todos àqueles que contribuíram para a minha formação acadêmica.

Aos amigos Acácio A. C. Andrade, Sandro M. Lima, Juraci Sampaio, Edson Pecoraro, Luiz Fernando Zonetti, Andrea Camargo e Viviane Pilla pela amizade, incentivo e discussões sobre resultados.

A Patrício R. Impinnisi pelas discussões sobre a parte teórica.

Ao técnico do laboratório André Romero pela colaboração na parte técnica e computacional.

Ao amigo Marcelo Ferreira da Silva pela amizade, dedicação e sinceridade.

Ao amigo André Paschoal pela amizade e transporte.

A minha família que sempre me apoiou desde o início de minha carreira.

A secretária Cláudia Tofaneli pelos serviços prestados como secretária do grupo de Espectroscopia de Sólidos.

Aos funcionários da biblioteca do IFSC pela simpatia e gentileza no atendimento.

A todos os outros funcionários do Instituto de Física que, de uma maneira geral, contribuíram direta ou indiretamente para a realização deste trabalho.

A todos os amigos (teóricos e experimentais) que porventura não tiveram seus nomes mencionados neste trabalho.

Agradecimentos especiais a FAPESP pelo suporte financeiro.

ÍNDICE

ÍNDICE.....	I
LISTA DE FIGURAS	III
LISTA DE TABELAS.....	VI
RESUMO	VII
ABSTRACT.....	VIII
<u>CAPÍTULO 1: INTRODUÇÃO</u>	1
<u>CAPÍTULO 2: CONCEITOS BÁSICOS.....</u>	5
2.1. INTRODUÇÃO À ÓTICA NÃO-LINEAR	6
2.2. NÃO-LINEARIDADE ÓTICA	8
2.3. EQUAÇÕES DE MAXWELL	9
2.4. PROPAGAÇÃO DE FEIXES GAUSSIANOS	11
2.5. AUTOFOCALIZAÇÃO E AUTODEFOCALIZAÇÃO.....	13
2.6. A INTEGRAL DE DIFRAÇÃO DE FRESNEL-KIRCHHOFF	14
2.7. PROPAGAÇÃO DE UM FEIXE GAUSSIANO.....	18
2.8. AUTOMODULAÇÃO TRANSVERSAL DE FASE	21
2.9. MEIOS COM NÃO-LINEARIDADE SATURÁVEL	26
<u>CAPÍTULO 3: TRATAMENTO TEÓRICO DA TÉCNICA Z-SCAN.....</u>	29
3.1. CÁLCULO DE Z-SCAN ATRAVÉS DA INTEGRAL DE DIFRAÇÃO.....	30

3.2. CASO PARTICULAR: CÁLCULO DA INTENSIDADE RADIAL $I(R_f=0)$...	31
3.3. EFEITO DA ABERTURA	35
3.4. Z-SCAN NO CASO DE NÃO LINEARIDADE SATURÁVEL	39
3.5. SIMULAÇÕES E ANÁLISE DE VARREDURA Z.....	40
3.5.1. CASO DE UMA ABERTURA NULA ($R_A=0$).....	40
3.5.2. CASO DE UMA ABERTURA FINITA	43
3.5.3. CASO TRANSIENTE	45
<u>CAPÍTULO 4: MEDIDAS E RESULTADOS EXPERIMENTAIS</u>	49
4.1. CARACTERÍSTICAS ESPECTROSCÓPICAS DO RUBI ($Al_2O_3:Cr^{+3}$).....	50
4.1.1. ESTRUTURA CRISTALINA DO RUBI ($Al_2O_3:Cr^{+3}$)	50
4.1.2. DIAGRAMA DE ENERGIA	52
4.2. EQUAÇÕES DE TAXA	53
4.3. RESULTADOS EXPERIMENTAIS EM RUBI ($Al_2O_3:Cr^{+3}$)	58
4.3.1. MONTAGEM EXPERIMENTAL	58
4.3.2. MEDIDAS NO RUBI EM $\lambda = 514.5$ NM	61
4.3.3. EFEITO DE ALARGAMENTO DA FUNÇÃO ΔZ_{PV} EM MEDIDAS DE Z-SCAN	65
4.3.4. MEDIDAS Z-SCAN TRANSIENTES	66
4.3.5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	73
<u>CAPÍTULO 5: CONCLUSÃO</u>.....	78
<u>CAPÍTULO 6: REFERÊNCIAS</u>.....	81
<u>APÊNDICES</u>.....	87
<u>APÊNDICE A</u>	88
<u>APÊNDICE B</u>	92

Lista de Figuras

- Figura 2. 1:** *Parâmetros de um feixe gaussiano. Temos, à direita, a distribuição de amplitude do campo que corresponde a segunda frente de onda apresentada, com o raio do feixe indicado. As frentes de onda esféricas são dadas por $R(z)$ e à esquerda vemos as linhas de propagação do raio do feixe em que $w(z=0) = w_0$.* 12
- Figura 2. 2:** *Efeitos de autofocalização e autodefocalização. Podemos observar a representação do perfil gaussiano de intensidade I e o caminho óptico ($n_0 l$) de um meio de espessura l . Nas figuras central e à direita estão o caminho óptico quando o feixe está sobre o meio e as deformações sofridas pelo feixe nos casos $n_2 < 0$ e $n_2 > 0$, respectivamente.* 14
- Figura 2. 3:** *Geometria da Difração de Kirchhoff-Fraunhofer.* 16
- Figura 2. 4:-** *Propagação de um feixe gaussiano.* 18
- Figura 2. 5:** *A figura representa a propagação de um feixe gaussiano através de uma amostra de espessura L . Neste caso temos uma amostra (cristal, vidro, etc.) que será o agente causador do efeito de Automodulação Transversal de Fase, em que a linha pontilhada representa o efeito que a amostra causa no perfil de intensidade do feixe quando a amostra está deslocada à frente do foco.* 21
- Figura 2. 6:** *Perfis de intensidade para valores fixos de x ($\pm 0.83, \pm 2.3$) com $\Delta\phi$ variando de 0 a 12, em que $\rho_1 \equiv r_1/w_1$. Todas as curvas estão normalizadas ao valor do ponto de máximo para $\Delta\Phi_0 = 0$.* 25
- Figura 2. 7:** *Perfil de índice de refração $\Delta n(r)$ num meio não-linear saturável para diferentes valores de $s = I/I_s$ [CAC 90].* 26
- Figura 2. 8:** *Perfil de intensidade para um valor fixo de x ($\pm 0.83, \pm 2.3$) com $\Delta\Phi_0$ variando de 0 a 12, em que $\rho_1 \equiv r_1/w_1$. Todas as curvas estão normalizadas ao valor de $\Delta\Phi_0 = 0$.* 27
- Figura 2. 9:** *Simulações teóricas de um limitador óptico [KLF86]. Neste caso podemos estudar a intensidade em função da potência de um laser. Para baixos valores de potência há uma relação praticamente linear com a intensidade (ampliação no alto da figura). Temos para esta simulação um valor de $\Delta\phi$ variando de 0 a 50, em que $\Delta\phi$ é a fase não linear e um estudo do caso envolvendo diferentes valores de saturação, ou seja o parâmetro s varia de 0 a 3.* 28

<i>Figura 3. 1:</i> Traço característico da técnica Z-scan com $n_2 > 0$ (linha pontilhada) e $n_2 < 0$ (linha cheia).	34
<i>Figura 3. 2:</i> Diagrama do experimento Z-scan e curva $\Delta T \times z$.	36
<i>Figura 3. 3:</i> Função $\Delta T(\Delta\Phi_0, r_a, x)$ e raio de abertura r_a entre 0 e 0.5887 ($\Delta\Phi_0=0.1$).	37
<i>Figura 3. 4:</i> Simulações de curvas de varredura-Z para s_0 variando de 1 a 5, no caso de uma abertura nula ($S=0$). Nesta simulação consideramos uma fase não-linear $\Delta\Phi_0 = 0.23$.	41
<i>Figura 3. 5:</i> Simulação da variação de transmitância pico-vale em função de s_0 no caso de abertura $S=0$. Os valores destacados (0.525, 0.575 e 0.631) mostram uma comparação entre as teorias da literatura.	42
<i>Figura 3. 6:</i> Alargamento de ΔZ_{pv} em função de s_0 .	43
<i>Figura 3. 7:</i> Simulações de curvas Z-scan para o caso de abertura $S = 0.5$ e s_0 variando de 1 a 5 e um perfil de fase $\Delta\Phi_0 = 0.23$.	44
<i>Figura 3. 8:</i> Comparação entre as previsões das duas teorias. A curva sólida representa nossa previsão teórica e a curva pontilhada a de Oliveira et al.	45
<i>Figura 3. 9:</i> Simulação da evolução temporal para o efeito transiente (em ponto de vale - $x = -0.86$) no caso de uma abertura finita ($S = 0.5$) em que a ampliação no alto da figura mostra o desvio do comportamento exponencial. Neste efeito estudamos o valor de $s(x)$ variando de 1 até 5. Em b) a figura está em escala logarítmica.	47
<i>Figura 3. 10:</i> Ajuste linear dos dados da Figura 3.9. Através do fit podemos determinar o fator de correção da saturação previsto teoricamente.	48
<i>Figura 3. 11:</i> Simulação da variação de transmitância em ponto de vale ($x=-0.86$) em função da intensidade. Os valores destacados (0.560, 0.631 e 0.525) mostram uma comparação entre as teorias da literatura, em que 0.560 é o fator indicado por nossos cálculos.	48
<i>Figura 4. 1:-</i> Estrutura cristalina da alumina.	50
<i>Figura 4. 2:</i> Espectro de absorção de uma amostra de rubi medido com um espectrofotômetro dispersivo Cary 17 à temperatura ambiente. Esta amostra possui	

<i>espessura de 3.1 mm e um coeficiente de absorção linear $A_0 = 0.73 \text{ cm}^{-1}$ na linha de 514.5 nm do laser de Ar^+.</i>	51
<i>Figura 4. 3: Diagrama simplificado dos níveis de energia do rubi.</i>	52
<i>Figura 4. 4: - Medida de tempo de vida em cristal de rubi ($\lambda = 514,5 \text{ nm}$). O cristal possui espessura de 1,3 mm .Obtivemos um tempo de $3,84(\pm 0.01) \text{ ms}$. Nesta amostra temos uma concentração de $1.1 \cdot 10^{19} \text{ ions Cr}^{+3}/\text{cm}^3$. À direita temos a fluorescência do material em escala logarítmica.</i>	52
<i>Figura 4. 5: Diagrama de Energia de um Sistema de 3 Níveis.</i>	53
<i>Figura 4. 6: - Aparato experimental utilizado para as medidas de varredura-Z do cristal em função do tempo. Nesta figura L1 e L2 são lentes convergentes de distâncias focais $f = 10 \text{ cm}$, L3 uma lente convergente de distância focal $f = 10 \text{ cm}$, L4 e L5 lentes convergentes de distâncias focais $f = 4 \text{ cm}$. D1 e D2 são detetores, Ch o chopper e SA o sistema de aquisição de dados do experimento contendo um microcomputador (PC), um amplificador de sinal, um osciloscópio e um conversor analógico digital. Com este arranjo podemos realizar duas aquisições simultaneamente.</i>	58
<i>Figura 4. 7: Evolução temporal do sinal Z-scan resolvido no tempo ($n_2 > 0$), colocada em (a) $z = -0.86 z_0$, (b) $z = 7 z_0$ e (c) $z = 0.86 z_0$.</i>	60
<i>Figura 4. 8: Curva de Z-scan em rubi, $\lambda=514.5 \text{ nm}$, $S=0.5$ (círculos - O) e $S=1.0$ (quadrados - □)</i>	62
<i>Figura 4. 9: Curva Z-scan em rubi, $\lambda=514.5 \text{ nm}$, $S=1.0$.</i>	63
<i>Figura 4. 10: a) Medida Z-scan para $S=0.5$ em regime de baixa intensidade ($I \leq 2.5I_S$).</i>	64
<i>Figura 4. 11: Alargamento da função ΔZ_{pv} em função da saturação para valores de s_0 variando de 0 a 5 para uma abertura da íris equivalente a $S=0.5$. Os círculos (O) representam as separações pico-vale para o rubi em 514.5 nm, a linha pontilhada corresponde ao ajuste teórico e os quadrados (□) correspondem às simulações numéricas.</i>	65
<i>Figura 4. 12: Medida Z-scan transiente do cristal de rubi em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ usando o potência do laser em $P=67 \text{ mW}$. Esta medida foi obtida em ponto de vale ($z = -0.86$</i>	

z_0), em que obtivemos um valor de $\tau_0 = 0.86 (\pm 0.005)$ ms. À direita temos a mesma medida observada em escala logarítmica.	66
<u>Figura 4. 13:</u> a) Medidas Z-scan ($\lambda=514.5$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.	68
<u>Figura 4. 14:</u> a) Medidas Z-scan ($\lambda=501.7$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.	69
<u>Figura 4. 15:</u> a) Medidas Z-scan ($\lambda=488$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.	70
<u>Figura 4. 16:</u> a) Medidas Z-scan ($\lambda=476.5$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.	71
<u>Figura 4. 17:</u> a) Medidas Z-scan ($\lambda=457.9$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.	72
<u>Figura 4. 18:</u> Eficiência quântica (η) em função da absorção (A).	77

Lista de Tabelas

<u>Tabela 1:</u> Valores de z_0 para os respectivos comprimentos de onda medidos experimentalmente através das curvas Z-scan ($T \times z$).	73
<u>Tabela 2:</u> Valores do coeficiente de absorção A no cristal de rubi, em que A_c corresponde as medidas obtidas no espectrofotômetro Cary 17 e A é o valor da absorção normalizado ao valor de A em 514.5 nm.	75
<u>Tabela 3:</u> Valores do coeficiente de absorção A no cristal de rubi obtidos por Liao e Bloom [LIB78].	76
<u>Tabela 4:</u> Valores de τ_0 , I_s obtidos das medidas de Z-scan do cristal 1.	76
<u>Tabela 5:</u> Valores de n_2' e $\Delta\alpha$ obtidos das curvas experimentais Z-scan transientes.	76

RESUMO

Neste trabalho investigamos o índice de refração não-linear n_2 , intensidade de saturação I_s , tempo de vida τ_0 e diferença de polarizabilidade $\Delta\alpha$ em absorvedores saturáveis dopados com Cr^{+3} usando a técnica Z-scan transiente. Utilizamos um modelo teórico baseado no formalismo da integral de difração de Kirchhoff para estudar o comportamento estacionário e transiente, além de observar, através de simulações numéricas, a evolução temporal do sinal observado experimentalmente. O modelo teórico foi estendido ao comportamento transiente, em que utilizamos parâmetros experimentais para realizar as simulações.

No trabalho experimental medimos o cristal de rubi e calculamos os valores de I_s , n_2 , τ_0 e $\Delta\alpha$ para cinco linhas do laser de Ar^+ através da técnica de Z-scan.

ABSTRACT

In this work we have investigated nonlinear refractive index n_2 , saturation intensity I_s , lifetime response τ_0 , and polarizability difference $\Delta\alpha$ in saturable Cr^{+3} doped absorbers employing the time resolved Z-scan technique by nonlinear refraction transient. We have developed a theoretical model, based on the Kirchhoff diffraction integral formalism to study the transient and stationary behavior, and besides, we have observed, from numerical simulations, the time signal evolution of the experimentally observed signal. The theoretical model was extended to transient behavior, where we have used experimental parameters to numerical simulations employing the theoretical model.

In the experimental work we have measured the ruby crystal and we calculated the values I_s , n_2 , τ_0 and $\Delta\alpha$ for the five lines from an Ar^+ laser employing the Z-scan technique.

Capítulo 1: Introdução

Os trabalhos relativos a n_2 [CAT89, CAC90, CCC91, OLI95, PGZ91] em cristais dopados com íons cromo (Cr^{+3}) mostram o quanto estes materiais, conhecidos como absorvedores saturáveis, têm sido largamente estudados. Por fazerem parte, estes, de uma larga classe de materiais cujas propriedades ópticas não-lineares saturam com a intensidade da luz, observou-se o interesse em estudar os efeitos das intensidades de saturação (I_s) nesses materiais [OLI94, OCZ96]. Aplicando um formalismo baseado na integral de difração de Kirchhoff calculamos numericamente um fator de correção para os valores de intensidades de saturação obtidas experimentalmente. Com este modelo pudemos investigar desde os efeitos de Automodulação Transversal de Fase [CAC90] e suas aplicações [KLF86] até as mais diversas situações da técnica Z-scan conhecidas na literatura. Primeiramente, reproduzimos todos os casos já estudados na literatura (em que obtivemos excelente acordo) e, consecutivamente, estendemos o modelo ao caso transiente, que até então não era encontrado na literatura. Assim, tendo comprovada a validade de nosso modelo teórico, estudamos os efeitos da saturação num meio não-linear (cristal) por refração não-linear transiente[PIL96]. Logo, tivemos a motivação de escolher o cristal de rubi para realizar a análise experimental por ser este bastante conhecido na literatura e com valores de n_2 bastante explorados por várias técnicas[ESS73, LIB78, MAN80], simplificando a comparação dos resultados.

A partir do modelo desenvolvido pudemos verificar o efeito da abertura, através de simulações numéricas, previsto por Sheik-Bahae et al [SSS89] e calculado numericamente por Oliveira et al [OLI95]. Nossos resultados confirmam os previstos teoricamente permitindo que nosso modelo possa ser generalizado para qualquer caso da técnica Z-scan.

Os cálculos numéricos realizados, utilizando o modelo teórico desenvolvido, para estudar a refração não-linear transiente são inéditos. Através deles comprovou-se, ainda, a eficiência desse modelo quando aplicado a quaisquer situação envolvendo a técnica de varredura-Z.

As observações experimentais dos efeitos de saturação foram realizadas num cristal de rubi através do uso da técnica Z-scan resolvida no tempo e também por uma de suas variantes (Z-scan transiente). Aplicamos essa técnica ao cristal para cinco linhas (501.7, 514.5, 488, 476,5 e 457,9 nm) do laser de Ar⁺.

Os valores obtidos experimentalmente com a técnica Z-scan para o cristal de rubi também são inéditos, com exceção da linha em 514.5 nm.

A dissertação encontra-se dividida nos seguintes itens:

Capítulo 1 - Introdução.

Motivação do trabalho como complementação da literatura.

Capítulo 2 - Conceitos básicos.

Discussão sobre óptica não-linear, efeitos de autofocalização, automodulação transversal de fase, simulações envolvendo aplicações desse fenômeno e propagação de feixes gaussianos, necessários a compreensão deste trabalho.

Capítulo 3 - Tratamento Teórico da Técnica Z-scan.

Apresentação, discussão e resultados acerca da teoria básica sobre a técnica Z-scan. Demonstramos a aplicação da integral de difração de Kirchhoff para estudar a técnica de Varredura-Z e mostramos as simulações numéricas da teoria aplicada na investigação experimental de um cristal de rubi.

Capítulo 4 - Medidas e Resultados Experimentais.

Apresentamos os resultados experimentais obtidos com a técnica Z-scan resolvida no tempo, através da análise da evolução temporal do sinal, para o cristal de rubi e discutimos os resultados para vários comprimentos de onda.

Capítulo 5 - Conclusões.

Analizamos os resultados teóricos e experimentais e comparamos os resultados com os da literatura comprovando a validade do método aplicado.

Capítulo 6 - Referências

Destacamos os principais trabalhos pesquisados para realização deste trabalho.

Capítulo 2: Conceitos Básicos

2.1. Introdução à Ótica Não-linear

Na Ótica Linear é bastante conhecido que as propriedades óticas da matéria variam com a frequência (ou comprimento de onda) da luz mas não com sua intensidade. Assim, pode-se dizer que o objeto de estudo da Ótica não-linear é a variação destas propriedades com a intensidade da luz. No entanto, este campo de pesquisa só ganhou impulso com o aparecimento do Laser, fonte de luz coerente e com alta intensidade. As fontes clássicas de luz (fontes térmicas) usadas até então tinham intensidade muito baixa, de tal maneira que o campo elétrico da luz E era muito menor que o campo elétrico atômico E_a ($E_a = e/a_0^2 \approx 2 \times 10^7$ esu, em que a_0 é o raio de Bohr do átomo de hidrogênio). No limite $E / E_a \rightarrow 0$ a suscetibilidade elétrica $\chi(E)$ é praticamente independente de E , por isso em geral podemos expandir $\chi(E)$ numa série de potências de E .

$$\chi(E) = \chi^{(1)} + \chi^{(2)} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} + \dots, \quad (1)$$

desta maneira a polarização induzida no material $P = \chi(\vec{E}) \vec{E}$ fica:

$$P(E) = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (2)$$

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 . Desta maneira podemos estimar a ordem de grandeza dos fatores em (1), normalizando em relação a $\chi^{(1)} - 1$ temos:

$$\chi^{(2)} E \sim \frac{E}{E_a} \therefore \chi^{(2)} \sim \frac{1}{E_a} \sim 5 \times 10^{-8} \text{ esu}, \quad (3)$$

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

$$\chi^{(3)} \sim \frac{1}{E_a^2} \sim 3 \times 10^{-15} \text{ esu}. \quad (4)$$

Em muitos meios não lineares $\chi^{(2)} = 0$ por razões de simetria (isto acontece em meios com simetria de inversão). Nestes casos em que $\chi^{(2)} = 0$ e $\chi^{(3)} \neq 0$, a Eq.(1) indica uma susceptibilidade que aumenta linearmente com E^2 ou linearmente com a intensidade da luz. Isto é equivalente a uma variação no índice de refração do material por isso é conveniente definir um índice de refração não-linear dado por:

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (5)$$

em que n_2 é proporcional a $\chi^{(3)}$ de acordo com [BOY92]:

$$n_2 \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \right) = \frac{0.0395}{n_0^2} \chi^{(3)} (\text{esu}), \quad (6)$$

logo a estimativa em (4) nos dá $n_2 \sim 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$, que é um valor típico de n_2 no visível para vidros óticos.

A inclusão dos termos não lineares nas equações de Maxwell dá origem a uma série de novos fenômenos. As equações de Maxwell (e a equação de onda) passam a ser não-lineares o que significa que o princípio de superposição não é mais

válido. Na ótica linear as ondas se propagam independentemente uma da outra enquanto que na ótica não-linear há interação e troca de energia entre elas (via meio não-linear) gerando os efeitos não lineares.

2.2. Não-linearidade Ótica

A razão pela qual a polarização desempenha um papel fundamental na ótica não-linear é que uma polarização oscilando no tempo é um termo de fonte do campo eletromagnético (ou seja luz) oscilando e portanto gerando radiação na frequência desta oscilação. Os termos $\chi^{(n)}$ em (1) e (2) dependem da frequência de cada um dos campos e do tipo de processo não linear que ocorre. Na verdade $\chi^{(n)}$ é um tensor de ordem n cujos elementos dependem da direção e frequência dos n campos incidentes no meio $E_1, E_2, \dots E_n$ que interagem gerando um campo E_{n+1} (é um processo de ordem n). Neste trabalho estamos particularmente interessados em processos $\chi^{(3)}$ degenerados (ou seja envolvendo campos de mesma frequência) o que equivale a n_2 , um índice de refração que depende da intensidade da luz como na Eq. (5). Um destes processos, e bastante estudado, é o conhecido como mistura de quatro ondas[LIB78] em que é gerado um campo $E_4 \propto \chi^{(3)}E_1E_2E_3$.

Neste trabalho a intensidade de saturação dos materiais utilizados são tipicamente $I_s \sim 10^3 \text{ W/cm}^2$ e índices de refração não-linear n_2 entre 10^{-11} - $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$. Usando lasers contínuos é fácil obter intensidades $\sim I_s$. Por exemplo, com 1 W de potência focalizado num raio de $18\mu\text{m}$ obtém-se $\sim 10^5 \text{ W/cm}^2$.

2.3. Equações de Maxwell

Classicamente, podemos descrever um campo eletromagnético por dois vetores de campo: o vetor campo elétrico E e o vetor campo magnético H . Ambos estão diretamente relacionados através dos vetores deslocamento elétrico D e indução magnética B , no caso de meio material. No SI essa relação é descrita por:

$$D = \epsilon_0 E + P, \quad (7)$$

$$B = \mu_0 H + M, \quad (8)$$

em que P e M correspondem ao vetor polarização elétrica e ao vetor polarização magnética, respectivamente. As constantes ϵ_0 e μ_0 são, respectivamente, a permeabilidade e permissividade do vácuo.

As equações de Maxwell, no SI, são dadas por:

$$\nabla \cdot D = \rho, \quad (\text{Lei de Gauss}) \quad (9)$$

$$\nabla \cdot B = 0, \quad (\text{Ausência de pólos magnéticos individuais}) \quad (10)$$

$$\nabla \times H = \frac{\partial D}{\partial t} + J, \quad (\text{Lei de Faraday}) \quad (11)$$

$$\nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t}, \quad (\text{Lei de Ampère-Maxwell}) \quad (12)$$

em que J é a densidade de corrente elétrica e ρ é a densidade de carga elétrica.

Para meios homogêneos, não-magnéticos, não condutores e sem cargas livres, e com o uso das equações (11) e (12) obtém-se:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial B}{\partial t} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (13)$$

Observando que o termo de polarização (P) é totalmente descrito por:

$$P = P_L + P_{NL},$$

em que

$$P_L = \epsilon_0 \chi^{(1)} E \quad \text{e} \quad \epsilon_0 \mu_0 = 1/c^2$$

Rescrevendo a equação (13), esta se torna:

$$\nabla^2 E - \left(\frac{n_0^2}{c^2} \right) \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}, \quad (14),$$

em que $n_0^2 = 1 + \chi$ é o índice de refração.

A equação acima descreve a equação de onda de um campo eletromagnético. Através desta equação pode-se compreender a propagação de um feixe gaussiano (é uma das soluções possíveis desta equação). Entretanto, a solução mais simples da equação para um meio linear ($P_{NL}=0$) é uma onda plana, mas esse tipo de onda não existe na natureza pois seria necessário uma quantidade de energia infinita. Para algumas situações físicas ela se torna uma boa aproximação, como por exemplo no caso em que o diâmetro do feixe de luz é muito maior que o comprimento de onda (λ) da luz incidente.

2.4. Propagação de feixes gaussianos

A partir dessa seção estaremos tratando restritamente da solução da equação de onda (14) no caso em que o campo do laser possui um perfil gaussiano [YAR91] de modo TEM₀₀ dada por:

$$E(\vec{r}, t) = \epsilon(r, z) e^{-i(kz - \omega t)}, \quad (15.a)$$

em que

$$\epsilon(r, z) = A(z) \exp \left\{ -i \left[\frac{kr^2}{2R(z)} - \eta(z) \right] - \frac{r^2}{w^2(z)} \right\}, \quad (15.b)$$

$$A(z) = A_0 \frac{w_0}{w(z)}, \quad (15.c)$$

$$w^2(z) = w_0^2 \left(1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right), \quad (15.d)$$

$$z_0 = \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda} \right), \quad (15.e)$$

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_0}{z} \right)^2 \right), \quad (15.f)$$

$$\eta(z) = \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_0} \right), \quad (15.g)$$

em que z_0 é chamado parâmetro confocal (também citado na literatura como parâmetro de Rayleigh) e w_0 é a cintura do feixe no ponto de máxima intensidade axial (em que o raio de curvatura é infinito).

A equação (15) representa um feixe gaussiano em que, w_0 é a cintura do feixe em $z = 0$, R o raio de curvatura da frente de onda, k o vetor de onda e r a coordenada polar do plano transversal a direção de propagação z .

Para distâncias muito grandes a partir do foco do feixe, sua cintura varia praticamente de modo linear com a distância, definindo um ângulo de divergência do feixe ($\theta_{div} = \arctan(\lambda/\pi w_0)$). Na região compreendida entre $-z_0$ e z_0 o diâmetro do feixe (potência) é praticamente constante. Em $z = z_0$ a frente de onda atinge sua curvatura máxima (menor raio de curvatura), em que seu raio de curvatura vale $R = \sqrt{2} w_0$. Na Figura 2.1 estão representados os parâmetros [YAR91] apresentados.

Figura 2. 1: Parâmetros de um feixe gaussiano. Temos, à direita, a distribuição de amplitude do campo que corresponde a segunda frente de onda apresentada, com o raio do feixe indicado. As frentes de onda esféricas são dadas por $R(z)$ e à esquerda vemos as linhas de propagação do raio do feixe em que $w(z=0) = w_0$.

2.5. Autofocalização e autodefocalização

Efeitos em que ocorre uma alteração da forma do feixe de luz devido a variação do índice de refração induzida pela luz são ditos efeito de autofocalização ou autodefocalização. Por possuir a parte central mais intensa, o feixe de luz provoca um perfil de índice de refração com valor maior em seu centro em relação às suas extremidades. Este fato implica em uma diferença de caminho óptico fazendo com que o meio se comporte como uma lente convergente focalizando o feixe.

Para melhor compreendermos esse fenômeno é preciso considerar-se a difração do feixe de luz, conjuntamente com o efeito “lente” gerado pelo meio não-linear. O efeito de difração do feixe de luz tende a compensar o efeito de autofocalização podendo suprimi-lo em campos suficientemente intensos. Este fenômeno é denominado de “self-trapping” (auto-aprisionamento)[SVO12].

O efeito de autodefocalização ocorre devido a combinação de um valor negativo do índice de refração não-linear e um feixe que possui intensidade maior no seu centro, como por exemplo o feixe gaussiano. Assim, o meio se comporta como uma lente divergente, pois o índice de refração é menor relativo às extremidades. Uma discussão bem detalhada e um tratamento mais rigoroso sobre esse assunto pode ser encontrado na referência [SVO12]. A Figura 2.2 pode dar uma idéia aproximada pela representação destes dois efeitos.

Figura 2. 2: Efeitos de autofocalização e autodefocalização. Podemos observar a representação do perfil gaussiano de intensidade I e o caminho óptico ($n_0 l$) de um meio de espessura l . Nas figuras central e à direita estão o caminho óptico quando o feixe está sobre o meio e as deformações sofridas pelo feixe nos casos $n_2 < 0$ e $n_2 > 0$, respectivamente.

2.6. A Integral de Difração de Fresnel-Kirchhoff

Nesta seção vamos fazer um estudo sobre a integral de difração de Kirchhoff e sua aplicação no estudo do fenômeno de Automodulação Transversal de Fase. Esse fenômeno é muito importante para nós, pois é o ponto de partida para os casos em que serão estudados no tratamento teórico da técnica Z-scan, a serem tratados no próximo capítulo.

A integral de difração de Kirchhoff [CAC89] é bastante aplicada em ótica linear na resolução dos problemas de difração e aplicações práticas (projeto de sistemas óticos, etc.). Logo, resolvemos adequá-la de uma forma conveniente ao nosso interesse em calcular a propagação de um feixe gaussiano, de maneira aproximada, para o campo distante. Também pode ser usada para descrever os fenômenos de Modulação Transversal de Fase [CAC90] (usado no tratamento teórico da técnica Z-scan) e em

casos de não-linearidades saturáveis e transientes, em que os dois últimos casos citados serão tratados com maior rigor no próximo capítulo.

Inicialmente, consideremos a difração de uma onda plana monocromática, propagando-se na direção dada pelo versor $\hat{\mathbf{n}}$ e difratada por um orifício finito E num plano opaco infinito α (Figura. 2.3). Supomos que o orifício seja plano, em que (x_o, y_o) sejam as coordenadas do orifício E no plano α e (x_l, y_l) as coordenadas no plano de observação α , a uma distância d do orifício. A amplitude complexa do campo ϵ_a num ponto P_l do plano de observação é dada pela soma do campo ϵ_α devido a todos os pontos P_o do plano do orifício. Matematicamente, esta idéia é expressa pela integral de Kirchhoff, dada por:

$$E_a(x_l, y_l) = \frac{i}{\lambda} \iint_E \frac{e^{-ikd_{0l}}}{d_{0l}} \cos(\mathbf{n} \cdot \mathbf{d}_{0l}) \epsilon_\alpha(x_o, y_o) dx_o dy_o, \quad (16)$$

em que λ é o comprimento de onda da luz. Para resolver a integral acima faz-se várias aproximações que são válidas se a distância d é muito maior que a máxima dimensão linear da abertura E . Logo, $r \ll d$ (em que $r^2 = x_o^2 + y_o^2$), ou seja, as aproximações são válidas para pequenos ângulos.

Figura 2. 3: Geometria da Difração de Kirchhoff-Fraunhofer.

Um exemplo ilustrativo do processo de difração de Fresnel para uma abertura circular de raio a está descrito no Apêndice A.

Neste trabalho não estamos interessados em estudar figuras de difração, mas desejamos resolver a seguinte questão: dada a amplitude do campo $\epsilon_\alpha(x_0, y_0)$, num determinado plano α , como podemos calcular a amplitude do campo no plano de observação no campo distante $\epsilon_a(x_1, y_1)$? Podemos resolver esse problema simplesmente inserindo $\epsilon_\alpha(x_0, y_0)$ dentro do integrando da Eq. (16).

Estamos interessados em estudar problemas com simetria cilíndrica devido a simetria radial de um feixe de laser no modo TEM_{00} . Portanto, a amplitude do campo incidente $\epsilon_\alpha(r) = \epsilon_\alpha(x_0, y_0)$ no plano de observação também terá simetria cilíndrica $\epsilon_a(r_1) = \epsilon_a(x_1, y_1)$, com $r_1^2 = x_1^2 + y_1^2$. Neste caso, no Apêndice A mostramos que na aproximação de Fresnel a Eq. (A-9) fica:

$$\varepsilon_a(r_1) = \frac{ik}{d} e^{-ik\left(d + \frac{r_1^2}{2d}\right)} \int_0^\infty e^{-\frac{ikr^2}{2d}} \varepsilon_\alpha(r) J_0\left(\frac{kr r_1}{d}\right) r dr, \quad (17)$$

em que $k=2\pi/\lambda$ é o módulo do vetor de onda.

Neste trabalho estamos interessados no caso em que o campo incidente é um feixe gaussiano de modo TEM_{00} em que a amplitude no plano α é dada pela Eq (15). Inserindo uma nova variável adimensional $x = z/z_0$ (coordenada normalizada pela distância confocal z_0), podemos rescrever a Eq. (15-b) da seguinte maneira:

$$\varepsilon_\alpha(r, x) = A_0 \frac{w_0}{w_\alpha(x)} \exp\left[-\frac{r^2}{w_\alpha^2(x)} - i\frac{kr^2}{2R_\alpha(x)} - i\tan^{-1}(x)\right], \quad (18-a)$$

com

$$w_\alpha^2(x) = w_0^2 (1 + x^2), \quad (18-b)$$

e

$$R_\alpha(x) = (z_0/x)(x^2+1), \quad (18-c)$$

em que $z_0 = \pi w_0^2/\lambda$ é a chamada distância confocal do feixe, R é o raio de curvatura do feixe e w o raio do feixe gaussiano. A distância z , entre a cintura do feixe e o plano α , se encontra agora em termos da nova variável adimensional x .

Supomos um feixe gaussiano com cintura em $z = 0$. Mostraremos na próxima seção que podemos calcular a amplitude do campo distante $\varepsilon_a(z=d)$ a partir da amplitude do campo próximo a origem em z_a :

2.7. Propagação de um feixe gaussiano

A propagação de um feixe gaussiano (Figura 2.4) pode também ser resolvida pela integral de difração Fresnel-Kirchhoff. No caso do modo TEM_{00} a amplitude do campo tem simetria radial (vide Apêndice A), ou seja, $\varepsilon(r, \varphi) = \varepsilon(r)$ e consequentemente $\varepsilon_a(r_1, \varphi_1) = \varepsilon_a(r_1)$ (no plano a), é conveniente usar coordenadas cilíndricas. A integral de difração fica então dada por (A-8):

$$\varepsilon_a(r_1) = C \int_0^\infty e^{-\frac{ikr^2}{2d}} \varepsilon_\alpha(r) J_0\left(\frac{krr_1}{d}\right) r dr, \quad (19)$$

em que $C = \frac{ik}{d} e^{-ik\left(d + \frac{r_1^2}{2d}\right)}$.

Figura 2. 4:- Propagação de um feixe gaussiano.

Consideremos, agora, que o feixe incidente seja um feixe gaussiano TEM_{00} . Neste caso a amplitude $\varepsilon(r)$ será dada por:

$$\varepsilon_{\alpha}(r, x) = A_o \frac{w_o}{w_{\alpha}(x)} \exp\left[-\frac{r^2}{w_{\alpha}^2(x)} - i \frac{kr^2}{2R_{\alpha}(x)} + i \tan^{-1}(x)\right]. \quad (20)$$

Então, a integral de difração de Fresnel - Kirchhoff pode ser escrita como:

$$\varepsilon_a(r_1) = C \int_0^{\infty} e^{-\frac{ikr^2}{2d}} \varepsilon_{\alpha}(r, x) J_0\left(\frac{kr r_1}{d}\right) r dr. \quad (21)$$

Integral de Fraunhofer

Considerando o caso em que $kr^2/2d \sim 0$, e assumindo uma nova variável $\rho_o \equiv r/w_{\alpha}$, rescrevemos a amplitude da onda no plano de abertura a como:

$$\varepsilon_a(r_1) = C \int_0^{\infty} e^{-\rho_o^2} J_0(\gamma \rho_o) \rho_o d\rho_o. \quad (22)$$

A integral da Eq. (22) pode ser facilmente resolvida, com solução analítica tabelada em que, nestas condições, obtemos:

$$\int_0^{\infty} e^{-\rho_o^2} J_0(\gamma \rho_o) \rho_o d\rho_o = \frac{e^{\left(\frac{\gamma^2}{4}\right)}}{2}. \quad (23)$$

Agora, assumindo que $\gamma \equiv kw_\alpha r_1/d$, $k = 2z_0/\omega_0^2$ (em que $z_0 = \pi w_0^2 \hat{n}/\lambda$ e $\lambda = 2\pi n/k$) e $x_1 \equiv (z+d)/z_0 \approx d/z_0$ pode ser mostrado que a amplitude da onda finalmente é dada por:

$$\varepsilon_a(r_1) = \frac{ik}{2d} w_\alpha^2(x) A_o \frac{w_o}{w_\alpha(x)} e^{-ikd} e^{-i\frac{kr_1^2}{2d}} e^{-\frac{\eta^2}{x_1^2 w_0^2}}, \quad (24)$$

$$\varepsilon_a(r_1) = \frac{ik}{2d} A_o w_o w_\alpha(x) e^{-ikd} e^{-i\frac{kr_1^2}{2R_a}} e^{-\frac{\eta^2}{w_a^2}}, \quad (25)$$

em que A_o , R_a e w_a são a amplitude, raio de curvatura e raio do feixe gaussiano no plano a , respectivamente, com $R_a = d$ e $w_a = d^2 w_0^2$.

Comparando a última expressão com a Eq. (20) podemos ver que esta última é um feixe gaussiano, ou seja, a Eq. (25) é um feixe gaussiano na aproximação da Eq. (20) para $x \gg 1$, em que pode-se mostrar que:

$$w_a^2(x) = w_0^2 \{1 + x^2\} \Rightarrow w_a^2(d) = w_0^2 x^2$$

e

$$R_a(x) = (z_0/x) \{1 + x^2\} \Rightarrow R_a(d) = (z_0/x) x^2 = z_0 x = d \quad (z \gg z_0).$$

2.8. Automodulação Transversal de Fase

Ao se propagar através de um meio não-linear de espessura L , um feixe gaussiano induz uma variação de fase $\Delta\phi(r)$, devido a variação transversal no índice de refração $\Delta n(r)$. O deslocamento de fase citado pode ser determinado por:

$$\Delta\phi(r) = k \int_0^L \Delta n(r, z) dz . \quad (26)$$

Esta modulação transversal de fase resulta no aparecimento de anéis no padrão da luz transmitida quando $\Delta\phi_0 \sim 2\pi$ (ou $\Delta\phi_0 > 2\pi$), sendo o número destes aproximadamente igual a $\Delta\phi_0/2\pi$ ($N = \Delta\phi_0/2\pi$). A interferência dos vários raios com diferentes fases que constituem o feixe é a responsável pelo aparecimento destes anéis.

Figura 2. 5: A figura representa a propagação de um feixe gaussiano através de uma amostra de espessura L . Neste caso temos uma amostra (cristal, vidro, etc.) que será o agente causador do efeito de Automodulação Transversal de Fase, em que a linha pontilhada representa o efeito que a amostra causa no perfil de intensidade do feixe quando a amostra está deslocada à frente do foco.

Supomos, então, que um feixe gaussiano incide numa amostra a uma distância z da origem (no ponto $z = 0$, ver Figura 2.5), em que a intensidade axial do feixe é máxima. Podemos supor, ainda, que a amostra é ópticamente fina de tal forma que, sendo $\varepsilon(r)$ o campo incidente na saída da amostra o campo é dado por $\varepsilon'(r) = \varepsilon(r)e^{-i\Delta\phi}$, esta é a aproximação feita na Modulação Transversal de Fase em que $\Delta\phi(r) = \Delta n(r)kL$ é a variação de fase provocada pelo perfil de índice de refração $\Delta n(r)$ induzido pelo laser. É importante ressaltar que nesta aproximação de que a amostra é fina despreza-se a variação da cintura w e raio de curvatura R que variam ao longo da amostra de acordo com as Eqs. (18-b) e (18-c). A aproximação feita é válida somente no caso em que a amostra é fina o suficiente para que estas variações possam ser desprezadas, ou seja, devemos ter $L \ll z_0$. Também é preciso mencionar que R e w também podem variar em consequência do efeito de autofocalização (que pode ocorrer devido a n_2 ou ao efeito térmico[ATC98]). Para que isto não ocorra devemos ter $P \ll P_{cr}$, em que P é a potência do feixe e P_{cr} a potência crítica de autofocalização.

Na saída da amostra, o campo é dado por $\varepsilon'(r) = \varepsilon(r) e^{-i\Delta\phi}$, ou seja, $\Delta\phi = \Delta\phi(r) = \Delta n(r)kL$ é uma variação de fase provocada pelo perfil de índice de refração $\Delta n(r)$ induzido pelo laser. No caso de um feixe gaussiano, colocando $\varepsilon'(r)$ no lugar de $\varepsilon(r)$ na Eq.(17), o campo no plano de observação fica dado por:

$$\varepsilon_a(r_1) = C \int_0^\infty e^{-i(\phi_D + \Delta\phi)} e^{-\frac{r^2}{w_a^2}} J_0\left(\frac{kr r_1}{d}\right) r dr, \quad (27-a)$$

em que

$$C = \frac{ik}{d} \varepsilon_0 w_\alpha^2 e^{-i \left[k \left(2d + \frac{r_1^2}{2d} \right) - \tan^{-1}(x) \right]}$$

$$\Delta\phi(r) = \Delta n(r) k L, \quad (27-b)$$

e

$$\phi_D = kr^2 \left(\frac{1}{2d} + \frac{1}{2R_\alpha} \right) = \frac{kr^2}{2d} + x \rho_o^2 \quad (27-c)$$

Utilizando a variável adimensional $\rho_o \equiv r/w_\alpha$ e das Eqs. (27-c) e (18-c) obtemos $kr^2/2R_\alpha = x\rho_o^2$. Logo a Eq. (27-a), na aproximação de Fraunhofer ($kr^2/2d \sim 0$), fica dada por:

$$\varepsilon_a(r_1) = C \int_0^\infty e^{-\rho_o^2(1+ix)} e^{-i\Delta\phi} J_o(\gamma\rho_o) \rho_o d\rho_o \quad (28)$$

em que $\gamma \equiv kw_\alpha(x)r_1/d$, $\Delta\phi(\rho_o) = \Delta\phi_o(x)\exp(-2\rho_o^2)$, $\Delta\phi_o(x) = \frac{\Delta\Phi_o}{(1+x^2)}$ e

$$\Delta\Phi_o(x=0) = kn_2 L^2 P / \pi w_o^2.$$

Convém comentar a validade da aproximação de Fraunhofer:

$$\frac{kr^2}{2d^2} = \frac{k w_a^2}{2d^2} \rho_o^2 \ll 1 \quad (29)$$

Nota-se que devido ao termo exponencial $\exp(-\rho_o^2)$ o integrando da Eq. (28) tende a zero se $\rho_o \gg 1$. Logo, a condição da Eq.(28) fica:

$$d \gg \frac{k w_a^2}{2} \quad (30)$$

Por exemplo, com $k = 10^5 \text{ cm}^{-1}$ e $w_a = 50 \text{ }\mu\text{m}$ é preciso ter $d \gg 1.25 \text{ cm}$. Nos nossos experimentos usamos $d \approx 1 \text{ m}$.

Estamos interessados em estudar o perfil de intensidade I no plano a , em que $I \propto |\epsilon_a(r_1)|^2$. Podemos ver na Figura. 2.6 um dos principais efeitos causados pela Automodulação Transversal de Fase que é o aparecimento de anéis no perfil de intensidade quando simulamos numericamente $I \propto |\epsilon_a(r_1)|^2$.

O aparecimento destes anéis já foram estudados em vidros (devido ao efeito térmico [ATC98]), cristais líquidos [KLF86] cristais dopados com Cr^{+3} [CAT89] e diversos meios não-lineares [CAC90].

Figura 2. 6: Perfis de intensidade para valores fixos de x ($\pm 0.83, \pm 2.3$) com $\Delta\phi$ variando de 0 a 12, em que $\rho_1 \equiv r_1/w_1$. Todas as curvas estão normalizadas ao valor do ponto de máximo para $\Delta\Phi_0 = 0$.

2.9. Meios com não-linearidade saturável

Em qualquer meio não-linear a expansão $n = n_0 + n_2 I$ é válida dentro de um determinado regime de intensidades que varia muito conforme o mecanismo responsável pelo efeito.

Em altas intensidades, a maioria dos meios pode ser descrita por um efeito de saturação dado por:

$$n = n_0 + n_2 \frac{I}{1 + I/I_s} \quad (31)$$

em que I_s pode variar várias ordens de grandeza ($10^{-3} - 10^{12} \text{ W/cm}^2$) dependendo do meio. Neste caso o perfil de índice de refração não é gaussiano tal como mostra a Figura. 2.7.

Figura 2. 7: Perfil de índice de refração $\Delta n(r)$ num meio não-linear saturável para diferentes valores de $s = I/I_s$ [CAC 90].

Na Figura 2.8 podemos ver algumas dessas simulações no caso do aumento do efeito não-linear quando há a inclusão do parâmetro de saturação $1+s$ ($s=I/I_s$) em $\Delta\phi(\rho_o)$ e alterando, portanto, o perfil de fase de acordo com $\Delta\phi(\rho_o)=\Delta\phi_o(x)\exp(-2\rho_o^2)/(1+s)$. Maiores discussões sobre esses cálculos serão fornecidos no próximo capítulo. Devemos mencionar que a razão $s = I/I_s$, aqui definida, será definida convenientemente nos próximos capítulos.

Figura 2. 8: Perfil de intensidade para um valor fixo de x (± 0.83 , ± 2.3) com $\Delta\Phi_o$ variando de 0 a 12, em que $\rho_1 \equiv r_1/w_1$. Todas as curvas estão normalizadas ao valor de $\Delta\Phi_o = 0$.

O efeito de saturação da não-linearidade deve ser levado em conta para se explicar a formação de anéis e distorções no feixe do laser no campo distante [CAC90].

Na Figura 2.8 ilustramos uma aplicação do efeito de Automodulação Transversal de Fase: o limitador ótico. Este dispositivo tem aplicação direta em meios que visam proteger os olhos das altas intensidades do laser. O dispositivo deve ter alta transmitância a baixa intensidade (potência incidente baixa) e baixa transmitância a alta intensidade (potência incidente alta). A ampliação no alto da Figura 2.9 mostra essa relação para o caso de baixa intensidade. Por exemplo, podemos observar que para $\Delta\Phi_0 \approx 5$ (na posição $x=0$) temos um valor máximo de intensidade I (~ 1), portanto temos um fator de limitação da ordem de 50 vezes (em $\Delta\Phi_0 \approx 50$). Maiores detalhes sobre esse estudo podem ser obtidos da ref. [KLF86].

Figura 2. 9: Simulações teóricas de um limitador óptico [KLF86]. Neste caso podemos estudar a intensidade em função da potência de um laser. Para baixos valores de potência há uma relação praticamente linear com a intensidade (ampliação no alto da figura). Temos para esta simulação um valor de $\Delta\phi$ variando de 0 a 50, em que $\Delta\phi$ é a fase não linear e um estudo do caso envolvendo diferentes valores de saturação, ou seja o parâmetro s varia de 0 a 3.

Capítulo 3: Tratamento teórico
da técnica Z-scan

3.1. Cálculo de Z-scan através da integral de difração

Em geral, no caso Z-scan consideramos que o efeito não-linear é muito pequeno, então podemos aproximar $e^{(-i\Delta\phi)} \sim 1 - i\Delta\phi$, em que $\Delta\phi$ é a modulação de fase (Eq. 27-b). Novamente considerando o caso $kr^2/2d \sim 0$ (condição de difração de Fraunhofer) para $\Delta\phi \ll 1$ a Eq. (28) fica:

$$\epsilon_a = C \int_0^\infty e^{-\rho_o^2(1+ix)} (1 - i\Delta\phi(\rho_o)) J_o(\gamma\rho_o) \rho_o d\rho_o \quad (32)$$

A integral (32) pode ser dividida em dois termos:

$$\epsilon_a(r_1, x) = C (\mu + \delta\mu), \quad (33.a)$$

com

$$\mu = \int_0^\infty e^{-\rho_o^2(1+ix)} J_o(\gamma\rho_o) \rho_o d\rho_o = \frac{e^{\left(\frac{\gamma^2}{4(1+ix)}\right)}}{2(1+ix)} \quad (33.b)$$

e

$$\delta\mu = -i \int_0^\infty e^{-\rho_o^2(1+ix)} \Delta\phi(\rho_o) J_o(\gamma\rho_o) \rho_o d\rho_o \quad (33.c)$$

Considerando o caso geral $\Delta\phi(\rho_0) \neq 0$, o objetivo é calcular a forma do perfil de intensidade I_a no campo distante (plano a de abertura), dado por:

$$I_a(r_1) = |\epsilon_a(r_1)|^2 \propto |\mu + \delta\mu|^2 \propto |\mu|^2 + \mu \cdot \delta\mu^* + \mu^* \cdot \delta\mu \quad (34)$$

em que a aproximação $\delta\mu \ll \mu$ é feita considerando-se que $\Delta\phi$ é pequeno, logo podemos desprezar o termo $|\delta\mu|^2$. Experimentalmente, é conveniente trabalhar com transmitância normalizada ao caso $\Delta\phi(\rho_0) = 0$. Esta transmitância é dada por $T = |\mu + \delta\mu|^2 / |\mu|^2$ e de (34) pode ser expressa por:

$$T = 1 + 2 \operatorname{Re}\{\delta\mu/\mu\} \quad (35)$$

em que $\operatorname{Re}\{\arg\}$ significa a parte real do argumento. A equação (35) é uma expressão geral que será usada para descrever os dados experimentais da técnica Z-Scan.

3.2. Caso Particular: cálculo da intensidade radial $I(r_1=0)$

Nesta seção vamos tratar de uma particularização para a técnica Z-scan, em que nos restringimos ao cálculo do campo elétrico e sua intensidade apenas num ponto do plano a de observação: o centro ($r_1=0$).

Consideremos um meio não-linear cujo o índice de refração é dado por $n = n_o + n_2 I$, em que $I = I(r, z)$ é o perfil de intensidade radial do feixe e z é a distância da amostra ao ponto de máxima intensidade axial. O perfil de intensidade gaussiano

induz no meio não-linear um perfil de índice de refração também gaussiano $\Delta n(r,z) = n_2 I(r,z)$, em que $I(r,z) \propto |\varepsilon(r,z)|^2$ o qual é dado pelas Eqs.(18). Tal como nas seções anteriores, é conveniente escrever as coordenadas z e r em termos da variáveis adimensionais $x (z/z_0)$ e $\rho_0 (r/w_\alpha)$. Assim, o perfil de fase $\Delta\phi(\rho_0)$ fica dado por:

$$\Delta\phi(\rho_0) = \Delta\phi_o(x) \exp(-2\rho_0^2) \quad (36.a)$$

com

$$\Delta\phi_o(x) = \frac{\Delta\Phi_o}{(1+x^2)} \quad (36.b)$$

e

$$\Delta\Phi_o = k n_2 L \frac{2P}{\pi w_\alpha^2} \quad (36.c)$$

em que $\Delta\phi_o(x) = k n_2 L (2P/\pi w_\alpha^2)$ e $\Delta\Phi_o = \Delta\phi_o(x=0)$. O termo em parênteses representa a intensidade axial, a qual depende de x porque w possui dependência em x de acordo com $w_\alpha^2 = w_0^2(1+x^2)$. Substituindo (36.a) em (33.c) temos:

$$\delta\mu = -i \frac{\Delta\Phi_o}{(1+x^2)} \int_0^\infty e^{-\rho_o^2(3+ix)} J_o(\gamma\rho_o) \rho_o d\rho_o. \quad (37)$$

Portanto, a Eq. (37) pode ser escrita como:

$$\delta\mu = -i \frac{\Delta\Phi_0}{(1+x^2)} \frac{e^{\left(-\frac{\gamma^2}{4(3+ix)}\right)}}{2(3+ix)} \quad (38)$$

O termo $\delta\mu$ representa também um campo gaussiano, cuja amplitude é proporcional a $i \Delta\phi_0$, logo está defasado de $\pi/2$ do campo μ . Porém, possui raio de curvatura e cintura diferentes das do campo μ [PAF94]. Conhecendo-se μ e $\delta\mu$ temos então o perfil de intensidade $I_a \propto |\epsilon_a(r_1)|^2$.

Inicialmente vamos derivar a expressão para a forma da curva Z-scan e isto pode ser feito analisando-se apenas o campo axial ($r_1 = 0$). Note que neste caso tem-se $\gamma = 0$ e a função $J_0(0) = 1$. Rescrevendo (33-b) e (38) para $\gamma = 0$ temos $\mu = [2(1+ix)^{-1}]$ e $\delta\mu = -i \Delta\phi_0(x)[2(3+ix)^{-1}]$. Logo, usando (36.b) e (35), temos:

$$T(x, \Delta\Phi_0) = 1 + \frac{4x\Delta\Phi_0}{(x^2+9)(x^2+1)} \quad (39)$$

Este resultado é o mesmo que o derivado por Sheik-Bahae [SSS89] usando o método da decomposição gaussiana de Weaire et. al [WWM89].

Figura 3. 1: Traço característico da técnica Z-scan com $n_2 > 0$ (linha pontilhada) e $n_2 < 0$ (linha cheia).

A expressão (39) tem a forma característica mostrada na Figura 3.1 com 2 extremos: um máximo (posição de pico) e um mínimo (posição de vale) dados por $x = \pm 0.858$ ou $z = \pm 0.858z_0$, de tal forma que a separação entre o pico e o vale fica:

$$\Delta z_{p-v} \sim 1.7z_0 \quad (40)$$

O termo L_{eff} representa o comprimento efetivo da amostra que leva em consideração o coeficiente de absorção linear A , dado por $L_{\text{eff}} = 1 - e^{(-AL)}/A$. Este termo é definido a partir da intensidade média ao longo da amostra (assumindo que $L \gg z_0$) pode ser escrita como $I_m = \frac{I}{L} \int_0^L e^{-Az} dz = (1 - e^{-AL})/AL = IL_{\text{eff}}/L$. Logo, para considerar o efeito da absorção linear basta substituir L por L_{eff} .

3.3. Efeito da abertura

Em termos experimentais, não medimos apenas o ponto $r_1 = 0$, mas usamos um orifício circular de raio r_a (íris - Figura. 3.2). Então, a potência medida no detetor é a integral do perfil de intensidade em toda a área do orifício. Para comparar os resultados teóricos com os experimentos é preciso integrar o perfil de intensidade em toda a área do detetor, ou seja, o sinal é dado por:

$$P_{med} = \int_0^{r_a} |\varepsilon_\alpha(r_1)|^2 2\pi r_1 dr_1 \quad (41)$$

Por conveniência, trabalha-se com o sinal normalizado, ou seja, com a variação de transmitância $\Delta T = T - 1$ dada pela Eq. (35). Integrando o sinal normalizado temos:

$$\Delta T(\Delta\Phi_0, r_a) = \int_0^{r_a} 2 \operatorname{Re} \left\{ \delta\mu / \mu \right\} 2\pi r_1 dr_1 \quad (42)$$

No experimento Z-scan translada-se a amostra visando medir a curva ***T versus Z (T x Z)*** ilustrada na Figura.3.1. A amplitude do sinal (T-1) é proporcional a Δn e assim, a partir da curva ***T x Z***, pode-se determinar n_2 e o raio do feixe ω_0 . Sendo ω_1 o valor da cintura do feixe no regime linear no plano da abertura (posição

$z=d$), a transmissão linear da abertura pode ser calculada através da Eq.(41) no caso

$\Delta\Phi_o = 0$ obtendo-se $S(r_a) = 1 - \exp(-2 r_a^2/\omega_1^2)$.

Figura 3. 2: Diagrama do experimento Z-scan e curva $\Delta T \times z$.

A Eq. (42) não possui solução analítica e foi calculada numericamente.

A Figura 3.3 mostra a função $\Delta T(\Delta\Phi_o, r_a)$ com r_a/ω_1 variando entre 0 e 0.5887, o que equivale a S variando entre 0 e 0.5. Como seria esperado, quando tende a zero ($r_1 \rightarrow 0$) obtemos o resultado dado pela equação (39). A Figura. 3.3 mostra que quando a abertura aumenta ΔT diminui e no caso $S = 0.5$ temos $\Delta T_{p-v} = 0.34 \Delta\Phi_o$. Este resultado está de acordo com a expressão empírica obtida por Sheik - Bahae [SSW90]:

$$\Delta T_{p-v} \sim 0.406 (1-S)^{0.25} \Delta\Phi_o \quad (43)$$

Figura 3. 3: Função $\Delta T(\Delta\Phi_o, r_a, x)$ e raio de abertura r_a entre 0 e 0.5887 ($\Delta\Phi_o=0.1$).

A Eq. (43) é uma expressão fundamental para determinar o valor n_2 a partir de uma medida de Z-scan. A partir da curva experimental de $T(z)$ usa-se a variação de transmissão pico-vale ΔT_{pv} para calcular $\Delta\Phi_o$ e o valor de w_o^2 pode ser obtido a partir de z_o (calculado através da Eq.(40)). Finalmente, usando-se a Eq.(36.c), podemos calcular o valor de n_2 .

Na ref. [SSW90] Sheik - Bahae et al. discutem como interpretar as medidas de Z-scan na presença de absorção não linear (n_2'') e meios com não-linearidade χ^5 [PAF94]). Entretanto, estes efeitos não serão discutidos neste trabalho por não serem relevantes nos nossos materiais.

No caso sobre MTF mostrou-se que o efeito de saturação da não-linearidade precisa ser levado em conta para se explicar a formação de anéis e distorções no feixe do laser no campo distante [CAC90]. Os cálculos foram feitos

usando o método de integral de difração. Posteriormente, este método foi aplicado para simular experimentos de Z-scan em meios com não-linearidade saturável [OLI95]. Após várias simulações numéricas Oliveira et al [OCZ96] obtiveram expressões empíricas que permitem obter n_2 diretamente da curva experimental. A primeira destas relações é a seguinte:

$$\Delta T_{pv} \approx 0.406 (1 - S)^{0.25 (1 + I_o/I_s)^{(1-S)}} \frac{|\Delta \Phi_o|}{\left(1 + I_o/I_s\right)^{0.525}} \quad (44)$$

em que $\Delta \Phi_o$, definido em (36.c), é o valor máximo do perfil de fase no caso não saturado. A equação acima pode ser considerada uma extensão da Eq.(43) para o caso de meios saturáveis. A Eq. (34) é aproximadamente válida para $I_o/I_s \leq 2.5$ em que a relação $\Delta Z_{pv} \approx 1.7 z_o$ continua sendo válida.

Obteve-se outra expressão empírica para os experimentos em meios com não-linearidade absorptiva realizados com abertura $S = 1$ (íris totalmente aberta, ou seja $r_a \gg w_1$):

$$T_p - 1 \approx \frac{2\pi}{\lambda} n_2'' L_{\text{eff}} \frac{I_o}{\left(1 + I_o/I_s\right)^{0.76}} \quad (45)$$

em que T_p representa a transmissão normalizada em $z = 0$. Nós decidimos estender o estudo de [OCZ96] para valores mais altos de s e o caso transiente o qual foi estudado apenas experimentalmente [PIL96].

3.4. Z-scan no caso de não linearidade saturável

Os resultados obtidos analiticamente por Sheik-Bahae et. al.[SSS89] são válidos apenas para perfis de fase $\Delta\phi(r)$ gaussianos (Eq. 27-b). Em ótica não-linear é muito importante o caso de não-linearidade saturável, em que o perfil de índice de refração não é gaussiano porque o índice de refração é dado por $n=n_0+n_2I/(1+I/I_s)$, sendo I_s a intensidade de saturação (Eq. 31). Para $I \ll I_s$ o perfil de população do estado excitado é gaussiano, tendo a mesma forma do perfil de intensidade do laser. Consequentemente, o perfil de índice de refração também é gaussiano e a teoria de Sheik-Bahae pode ser aplicada. Entretanto, para $I > I_s$ o perfil de índice de refração deixa de ser gaussiano (Figura 2.7) e consequentemente a teoria de Sheik-Bahae não é válida.

3.5. Simulações e Análise de Varredura Z

3.5.1. Caso de uma abertura nula ($r_s=0$)

Os cálculos descritos anteriormente apenas confirmam os resultados de Sheik-Bahae [SSS89,SSS90]. Nosso objetivo é estender estes cálculos e estudar os efeitos de saturação. Neste caso, de (34-b) e (31):

$$\begin{aligned}
 I &= I_0 \left(\frac{w_0}{w} \right)^2 e^{-2\rho_0^2} = \frac{I_0}{1+x^2} e^{-2\rho_0^2} \\
 \Delta\phi(\rho_0) &= \frac{\Delta\phi_0(x) e^{-2\rho_0^2}}{1+s} = \frac{\Delta\phi_0(x) e^{-2\rho_0^2}}{1 + \frac{I_0}{I_s} \frac{e^{-2\rho_0^2}}{1+x^2}} \\
 \Delta\phi(\rho_0) &= \frac{\Delta\phi_0(x) e^{-2\rho_0^2}}{1 + s(x) e^{-2\rho_0^2}} \quad (46)
 \end{aligned}$$

em que $s(x) = s_0/(1+x^2)$ com o parâmetro de saturação axial no foco dado por $s_0 = I_0/I_s$, e a intensidade radial no foco ($x=0$) dada por $I_0 = 2P/\pi w_0^2$, ou seja, $s(x)$ decresce com x devido ao aumento de $w_\alpha(x)$ de maneira análoga a $\Delta\phi_0(x)$ (Eq. 36-b). Nos cálculos deve-se lembrar que $\rho_0 = r^2/w_\alpha^2$ também varia com x pois $w_\alpha^2 = w_0^2(1+x^2)$.

Neste caso, estudamos primeiramente o caso $r_1=0$ (ponto no centro do eixo ótico), para simplificar os cálculos. No entanto, ao colocarmos o termo de saturação s dentro da Eq.(33.c), a integral deixa de ser analítica.

Decidimos estudar este problema fazendo integrais numéricas usando o software Mathematica. Procedendo dessa maneira, podemos observar na Figura 3.4 os efeitos da saturação na varredura-Z para o caso de uma abertura nula.

Este problema também pode ser estudado expandindo-se o termo $(1 + s(x)\exp(-2\rho_0^2))^{-1}$ numa série de potências (vide Apêndice B). Entretanto, esta solução não é muito útil pois é válida somente para $s < 1$.

Figura 3. 4: Simulações de curvas de varredura-Z para s_0 variando de 1 a 5, no caso de uma abertura nula ($S=0$). Nesta simulação consideramos uma fase não-linear $\Delta\Phi_0 = 0.23$.

Partindo da análise dos dados da Figura. 3.4 acima podemos fazer uma comparação breve entre nosso modelo e o método utilizado por Oliveira et al, no qual este utiliza uma Transformada de Hankel de ordem zero [OLI95] em que o termo $e^{(-i\Delta\phi)}$ da integral de difração não possui nenhuma aproximação. No caso de uma abertura bem pequena, ou nula (caso $r_1 = 0$), nossos cálculos mostram que a Eq. (44) deve ter o expoente do denominador modificado de 0.525 para 0.575. Samad et al [SAM97] também estudaram este problema no caso de abertura nula obtendo um valor de 0.631. Efetuamos cálculos com e sem a aproximação $e^{-i\Delta\phi} \sim 1 - i\Delta\phi$, em que

observamos que o software utilizado para resolver as integrais numéricas realiza mais rapidamente os cálculos quando aplicamos a aproximação. Portanto, por conveniência, realizamos as simulações numéricas utilizando sempre a aproximação citada acima.

Figura 3. 5: Simulação da variação de transmitância pico-vale em função de s_0 no caso de abertura $S=0$. Os valores destacados (0.525, 0.575 e 0.631) mostram uma comparação entre as teorias da literatura.

Figura 3. 6: Alargamento de ΔZ_{pv} em função de s_0 .

Observamos também o alargamento da curva Z-scan para altas intensidades (de $I=1I_s$ a $I=5I_s$), ou seja, como varia ΔZ_{pv} em função de s (ver Figura. 3.6). Este efeito de alargamento é muito importante pois pode levar a erros no valor de n_2 . Normalmente utiliza-se a expressão $\Delta Z_{pv} = 1.7z_0$ para se obter o valor de z_0 . A Figura 3.6 mostra que o efeito de saturação leva a um alargamento da curva Z-scan. Por exemplo, em $s=1$ temos $\Delta Z_{pv} \sim 1.9z_0$, o aumento de 10% em $I_0 = (2P/\pi w_0^2) \propto z_0^{-1}$. Este efeito precisa ser considerado no cálculo de n_2 . $\Rightarrow \Delta Z_{pv} \cong 1.7(1 + 0.2s_0^{0.7})z_0$

3.5.2. Caso de uma abertura finita

Nesta seção estaremos tratando, em particular, do caso de uma abertura finita, que já foi mencionada anteriormente quando estudamos o efeito da abertura (seção 3.3) no perfil de intensidade. Portanto, agora desejamos saber qual o efeito da

abertura em nossos cálculos para o caso em que Oliveira et al [OLI95] usa uma abertura circular (íris ou diafragma) correspondente a $S = 0.5$ e incluindo o efeito de saturação nos cálculos. Para isto tomamos as Eqs. (46) e (33-c) e resolvemos numericamente para diferentes valores de s_0 mantendo o valor de $\Delta\Phi_0$ sempre constante.

A Figura. 3.7 mostra o resultado de simulações numéricas quando estudamos o efeito de uma abertura $S = 0.5$ em nossos cálculos.

Figura 3. 7: Simulações de curvas Z-scan para o caso de abertura $S = 0.5$ e s_0 variando de 1 a 5 e um perfil de fase $\Delta\Phi_0 = 0.23$.

Analogamente ao item anterior fizemos uma análise dos dados numéricos obtidos e comprovamos, mais uma vez, a validade do método que utilizamos. Comparamos nossos resultados com os de Oliveira e obtivemos um fator 0.542 para uma abertura $S = 0.5$. Em relação a teoria de Oliveira, temos uma diferença de apenas

3% do valor obtido por ele. Notamos, então, que o fator varia com a abertura pois para $S=0$ obtivemos 0.575 (Figura 3.5) .

A Figura 3.8 mostra uma comparação das duas teorias, mostrando que nossos resultados diferem muito pouco em relação aos de Oliveira.

Figura 3. 8: Comparação entre as previsões das duas teorias. A curva sólida representa nossa previsão teórica e a curva pontilhada a de Oliveira et al.

3.5.3. Caso transiente

Até o momento estávamos tratando do caso estacionário em que considerávamos $t \gg \tau$ (ref. [SSS89]). A partir de agora faremos o mesmo tipo de análise dos casos anteriores, porém estudaremos o caso em que posicionaremos a amostra num ponto fixo ($x = -0.86$) e simulamos a evolução temporal do sinal por

uma medida de varredura-Z transiente [PIL96]. Neste caso rescrevemos a Eq. (46) colocando o termo transiente:

$$\Delta\phi(\rho_o) = \frac{\Delta\phi_o(x) e^{-2\rho_o^2}}{(1 + s_o e^{-2\rho_o^2})} (1 - e^{-\frac{t}{\tau}}), \text{ em que } \tau^{-1} = \tau_o^{-1} (1 + \frac{I}{I_s}) \text{ e } \tau_o \text{ é o tempo de}$$

resposta do meio não-linear que varia com a intensidade. Deve-se notar que como $I(\rho_o)$ varia radialmente o tempo de resposta não é constante passando a ter uma dependência radial $\tau(\rho_o)$ que precisa ser considerada na integração. A Figura 3.9 mostra simulações de sinais transientes com a amostra na posição de vale ($x=-0.86$) no caso $\Delta\Phi_o=0.1$. Estas curvas foram ajustadas por exponenciais do tipo $A+B\exp(-t/\tau')$.

Notamos que no caso $s_o=2.875$ a curva apresenta um mínimo em $(t/\tau_o) \sim 1$, o que indica um desvio do comportamento exponencial. A Figura 3.10 mostra que o inverso do tempo de resposta τ' aumenta linearmente com a intensidade, ou seja, $\tau'^{-1} = \tau_o^{-1} (1 + c s(x))$ em que $s(x)$ é o parâmetro de saturação axial definido após a Eq. (46) e $c=0.85$. *de onde vem?*

A Figura 3.9 mostra a evolução temporal do sinal (transiente) em escala linear (a) e em escala logarítmica (b), em que para construirmos esta figura subtraímos o último ponto (em que ainda podemos obter um ajuste exponencial, portanto $s_o > 0.575$) do valor $T_v(t)=1$, ou seja teremos $1 - 0.9642$ quando $s_o = 2.875$. O mesmo processo é feito para os outros valores de s_o também originando, portanto, a figura em escala logarítmica. Na seção de resultados experimentais (capítulo 4) repetimos esse mesmo processo para as medidas transientes e de fluorescência.

a)

b)

Figura 3. 9: Simulação da evolução temporal para o efeito transiente (em ponto de vale - $x = -0.86$) no caso de uma abertura finita ($S = 0.5$) em que a ampliação no alto da figura mostra o desvio do comportamento exponencial. Neste efeito estudamos o valor de $s(x)$ variando de 1 até 5. Em b) a figura está em escala logarítmica.

Figura 3. 10: Ajuste linear dos dados da Figura 3.9. Através do fit podemos determinar o fator de correção da saturação previsto teoricamente.

Figura 3. 11: Simulação da variação de transmitância em ponto de vale ($x=0.86$) em função da intensidade. Os valores destacados (0.560, 0.631 e 0.525) mostram uma comparação entre as teorias da literatura, em que 0.560 é o fator indicado por nossos cálculos.

Capítulo 4: Medidas e
Resultados Experimentais

4.1. Características espectroscópicas do Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$)

4.1.1. Estrutura cristalina do Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$)

O íon Cr^{+3} tem a mesma estrutura eletrônica do Ar mais três elétrons na camada de valência externa 3d. Os seus níveis de energia são bem conhecidos tanto no caso do íon livre como para o íon no campo cristalino.

O rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$) é a safira (ver Figura 4.1) dopada com Cr^{+3} , em que os íons Cr^{+3} substituem uma pequena parte dos íons de Al^{+3} . A rede hospedeira possui um célula unitária hexagonal cujo eixo de simetria define o eixo ótico do cristal. Tipicamente, a concentração de Cr é 0.05% em peso o que equivale a $\sim 1.9 \times 10^{19} \text{ Cr}^{+3}/\text{cm}^3$.

Figura 4. 1:- Estrutura cristalina da alumina.

Figura 4. 2: Espectro de absorção de uma amostra de rubi medido com um espectrofotômetro dispersivo Cary 17 à temperatura ambiente. Esta amostra possui espessura de 3.1 mm e um coeficiente de absorção linear $A_0 = 0.73 \text{ cm}^{-1}$ na linha de 514.5 nm do laser de Ar^+ .

O espectro de absorção (vide Figura 4.2) do rubi apresenta duas bandas largas com largura $\sim 1000\text{\AA}$, correspondentes aos estados 4T_2 e 4T_1 em 18000cm^{-1} (555nm) e 25000cm^{-1} (400nm) (Figura 4.3). O rubi apresenta ainda uma forte absorção no ultra violeta correspondente a banda de transferência de carga. Para a emissão laser, através de uma lâmpada de flash, excita-se as bandas 4T_2 e 4T_1 . A partir das bandas os íons decaem não-radiativamente para o duplete 2E com uma taxa de relaxação $\sim 5 \times 10^{-8}$ seg. O duplete 2E é constituído por dois níveis 2A e E separados por 29 cm^{-1} devido a distorção trigonal do campo octaédrico. A partir dos níveis 2E a transição para o estado fundamental ${}^2E \rightarrow {}^4A_2$ (as linhas R) é proibida por spin, por isso apresenta um tempo de vida radiativo bastante longo $\tau_0 \sim 3.8 \text{ ms}$ (milissegundos). As linhas R são linhas de zero-fônon em 694.3nm e 692.5nm por isso são relativamente estreitas ($\Delta\nu \sim 6\text{cm}^{-1}$ a 300K).

A Figura. 4.4. exibe uma medida do tempo de vida de fluorescência desse cristal para confirmar os valores obtidos para o tempo de resposta τ_0 aplicando o mesmo método utilizado por Pilla et al [PIL96].

4.1.2. Diagrama de energia

Figura 4. 3: Diagrama simplificado dos níveis de energia do rubi.

Figura 4. 4: - Medida de tempo de vida em cristal de rubi ($\lambda = 514,5 \text{ nm}$). O cristal possui espessura de 1,3 mm. Obtivemos um tempo de $3,84 (\pm 0,01) \text{ ms}$. Nesta amostra temos uma concentração de $1,1 \cdot 10^{19} \text{ íons Cr}^{3+}/\text{cm}^3$. À direita temos a fluorescência do material em escala logarítmica.

4.2. Equações de taxa

No rubi os íons de Cr^{+3} comportam-se como um sistema de três níveis de energia ilustrado na Figura. 4.5. Supomos que esse sistema é excitado a partir do estado fundamental G para um nível intermediário I o qual decai rapidamente ($\sim \text{ns.}$) para um estado metaestável E_x com tempo de vida τ_o ($\sim \text{ms.}$).

Figura 4. 5: Diagrama de Energia de um Sistema de 3 Níveis.

No caso de cristais dopados com Cr^{+3} (rubí, alexandrita, etc) o estado fundamental é o nível $^4\text{A}_2$, o estado intermediário I é a banda $^4\text{T}_2$ e o estado metaestável E_x é o nível ^2E . O elétron é bombeado do nível G para o intermediário I e decai rapidamente ($\sim \text{ns}$) para o nível E_x , Como esta transição não - radiativa é muito rápida a população do nível I é desprezível e o estado E_x (metaestável) decai radiativamente para o estado fundamental G .

Através das equações de taxa, podemos calcular as populações N_G e N_{Ex} correspondentes aos níveis G e E_x . Sabendo que o tempo de vida do nível intermediário I muito pequeno ($\sim ns$), muito menor que o tempo de vida do estado E_x , podemos considerar $N_I \sim 0$. Portanto, trataremos apenas as populações dos estados excitado metaestável N_{EX} e fundamental N_G . Além disso, despreza-se o decaimento direto do nível I para o nível fundamental G , pois a taxa de transição do nível I para o nível E_x é muito maior, desta forma podemos aproximar a 1 a eficiência quântica de bombeio do nível E_x . Nestas condições temos:

$$\frac{dN_G}{dt} = -\frac{\sigma I}{\hbar\omega} N_G + \frac{N_{Ex}}{\tau_0} \quad (47)$$

$$\frac{dN_{Ex}}{dt} = \frac{\sigma I}{\hbar\omega} N_G - \frac{N_{Ex}}{\tau_0} \quad (48)$$

$$N_0 = N_G + N_{Ex} \quad (49)$$

em que I é a intensidade de luz de frequência ω na transição entre os níveis G e I , σ a seção de choque de absorção desta transição e τ_0 o tempo de vida espontâneo do estado metaestável E_x . Sendo a população total N_0 constante, devemos ter

$$\frac{dN_G}{dt} = -\frac{dN_{Ex}}{dt} \quad (50)$$

como pode ser observado nas equações (37) e (39). Das Eqs. (39) e (38) obtemos:

$$\frac{dN_{\text{Ex}}}{dt} = \frac{I}{I_s} \frac{N_0}{\tau_0} - \frac{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)}{\tau_0} N_{\text{Ex}} \quad (51)$$

em que a intensidade de saturação I_s é dada por:

$$I_s = \hbar \omega / \sigma \tau_0 \quad (51.a)$$

Supondo-se que em $t = 0$ o sistema está no estado fundamental, ou seja, $N_G = N_0$ e $N_{\text{Ex}} = 0$, e neste instante é ligado o laser com intensidade I , das Eqs.

(51) e ~~(38)~~ obtemos:

$$N_{\text{Ex}}(t) = N_0 \frac{\frac{I}{I_s}}{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)} \left(1 - e^{-t/\tau}\right) \quad (52)$$

$$N_G(t) = N_0 \frac{\cancel{\frac{I}{I_s}} 1}{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)} \left(1 - e^{-t/\tau}\right) \quad (53)$$

com

$$\tau = \frac{\tau_0}{1 + \frac{I}{I_s}} \quad (53.a)$$

O índice de refração complexo n pode ser calculado através da equação de Claussius-Mosotti:

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{N_G \chi_G + N_{Ex} \chi_{Ex}}{N_0} + \chi_m \right) \quad (54)$$

Sendo n_0 o índice de refração linear, ou seja, o valor de $I = 0$ ($N_G = N_0$ e $N_{Ex} = 0$), podemos escrever $n = n_0 + \Delta n$. Supondo $\Delta n \ll n_0$, podemos expandir (54) e usando (52) e (53) obtemos:

$$\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} (\chi_G + \chi_m) \quad (55)$$

$$\Delta n = n_2 \frac{I}{1 + \frac{I}{I_s}} (1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) \quad (56)$$

com

$$n_2 = \frac{2\pi}{9} \frac{(n_0^2 + 2)^2}{n_0} \frac{(\chi_{Ex} - \chi_G)}{I_s} \quad (57)$$

e

$$f_L = \frac{n_0^2 + 2}{3} \quad (58)$$

em que f_L é conhecido como fator de Lorenz, que é responsável pela correção devido ao efeito do campo local no dielétrico. É importante notar que n_2 e $(\chi_{Ex} - \chi_G)$ são quantidades complexas.

No caso estacionário ($t \gg \tau$) podemos escrever:

$$n = n_0 + \frac{n_2 I}{1 + I/I_s} \quad (59)$$

As Eqs. (60) e (61) permitem a determinação de quantidades microscópicas como $\Delta\alpha$ e $\Delta\sigma$, através de medidas do parâmetro n_2 .

A parte real de $n_2 = n_2' - i n_2''$ é dada por:

$$n_2' = \frac{2\pi N_0 \Delta\alpha f_L^2}{I_s n_0} \quad (60)$$

em que $\Delta\alpha$ é a diferença de polarizabilidade entre os estados excitado e fundamental respectivamente.

A parte imaginária de n_2 pode ser escrita em termo das seções de choque σ_{Ex} e σ_G dos estados excitados e fundamental como:

$$n_2'' = \frac{\lambda N_0 \Delta\sigma}{4\pi I_s} \quad (61)$$

em que $\Delta\sigma = \sigma_{Ex} - \sigma_G$ é a diferença entre as seções de choque de absorção dos dois estados. Portanto, a redistribuição das populações N_G e N_{Ex} provoca uma alteração na parte real do índice de refração do meio.

4.3. Resultados experimentais em Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$)

4.3.1. Montagem experimental

A Figura. 4.7^e ilustra a configuração e o arranjo experimental utilizado para realizar medidas de varredura-Z.

Figura 4. 6: - Aparato experimental utilizado para as medidas de varredura-Z do cristal em função do tempo. Nesta figura L1 e L2 são lentes convergentes de distâncias focais $f = 10$ cm, L3 uma lente convergente de distância focal $f = 10$ cm, L4 e L5 lentes convergentes de distâncias focais $f = 4$ cm. D1 e D2 são detetores, Ch o chopper e SA o sistema de aquisição de dados do experimento contendo um microcomputador (PC), um amplificador de sinal, um osciloscópio e um conversor analógico digital. Com este arranjo podemos realizar duas aquisições simultaneamente.

O arranjo utilizado para medir tempo de vida (ou fluorescência) é o mesmo mostrado acima com sutis modificações na ordem dos equipamentos do experimento mas sem modificação do alinhamento ótico.

Nos experimentos foi utilizado, como fonte de luz, um laser de Ar^+ (modelo Coherent Inova 308C com 8 W de potência máxima). A transição aberto-fechado do feixe incidente é minimizado por um par de lentes (L1 e L2), em que L1 focaliza o feixe na pá do chopper (modulador mecânico) e L2 o colima novamente até a lente L3 que produz um foco em $z = 0$. As lentes L4 e L5 tem por finalidade focalizar o feixe nos detetores D1 e D2. O divisor de feixe gera dois feixes: um feixe transmitido através de uma abertura circular (íris, diafragma, etc.) o qual gera um sinal de varredura-Z com contribuições das partes real e imaginária do índice de refração não-linear, que é medido pelo detetor 1 (D1). O outro feixe, medido pelo detetor 2 (D2), gera um sinal que apresenta apenas a contribuição da parte imaginária.

Assim que ocorre a abertura da pá do chopper, em $t_i = 0$, os estados excitados metaestáveis com tempos de vida longos ($\sim \text{ms}$) ainda não foram populados, portanto quando o tempo evolui, os estados excitados são populados. O sistema de aquisição sincronizado com o sinal do chopper, realiza uma medida de transmissão $T(t_i)$ em $t = t_i$ e uma segunda $T(t_f)$ em $t = t_f$ (Figura. 4.7). Como imediatamente após a abertura do chopper, em um tempo inicial $t = t_i \sim 0$ o laser não induz variação no índice de refração, o sinal pode ser normalizado pela medida em t_i . Este método permite o estudo da evolução temporal do índice de refração que é muito importante para distinguir efeitos de Lente Térmica [ATC98] de efeitos Lente População, em que o sinal Lente de População obedece um comportamento exponencial descrito pela Eq.(42).

Uma medida não é iniciada exatamente em $t = 0$ como seria esperado (veja Figura. 4.7), mas dá-se em um tempo t_i , logo após $t = 0$ do sinal, pois é necessário que se leve em consideração o tempo de subida do sinal (tempo que a pá do chopper leva para interromper o feixe laser). O fim da aquisição também ocorre em um tempo t_f (menor do que o final de meio período, $T/2$, do sinal) [AAA98].

Figura 4. 7: *Evolução temporal do sinal Z-scan resolvido no tempo ($n_2 > 0$), colocada em (a) $z = -0.86 z_0$, (b) $z = 7 z_0$ e (c) $z = 0.86 z_0$.*

O efeito de T_i e T_f pode ser levado em consideração nos cálculos [AAA98], dividindo-se o sinal pelo fator $[\exp(-T_i/\tau)] - \exp(-T_f/\tau)]$.

4.3.2. Medidas no Rubi em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$

Foram realizadas medidas em dois cristais dopados com Cr^{+3} , o rubi e o $\text{SrAlF}_5:\text{Cr}^{+3}$ [ATC98]. No entanto analisamos com maior extensão e profundidade apenas o cristal de rubi.

Assim sendo, excitamos o rubi com um laser de Ar^+ nos λ_{exc} de 501.7, 514.5, 488, 476.5 e 457.9 nm. As medidas foram realizadas com a polarização do laser perpendicular ao eixo c numa amostra que possui uma espessura de $L = 1.3 \text{ mm}$. Medimos o coeficiente de absorção A (Tabela 2) e estimamos os valores de I_s para cada comprimento de onda (em kW/cm^2).

As medidas de Z-scan resolvida no tempo foram realizadas com o choppper numa frequência fixa de 40 Hz e com uma íris aberta e outra fechada. A medida foi realizada em um tempo $t_i = 0.06 \text{ ms}$ e $t_f = 9 \text{ ms}$ (vide Figura 4.7). Desejamos, com este propósito, escolher $\tau_0 < t_f$ de tal forma que em $t = t_f$ termos uma maior contribuição do sinal do efeito não-linear. A medida realizada com a íris aberta $S_1 = 100\%$, apresenta um decréscimo na transmitância perto do foco devido a absorção do estado excitado. Para medirmos n_2' , dividimos o sinal da íris com abertura $S_2 = 50\%$ pela medida com $S_1 = 100\%$, como geralmente é feito na técnica de Z-scan [PIL96]. As medidas foram realizadas em regime de alta e baixa intensidade, para que pudessemos conhecer os limites do regime de saturação em que desejamos trabalhar.

Os valores de n_2' e n_2'' podem ser calculados usando as Eqs. (44) e (45) para íris fechada ($S=0.5$) e aberta ($S=1$), respectivamente.

Em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$, temos $A = 0.8 \text{ cm}^{-1}$ e $L_{\text{eff}} = 0.123 \text{ cm}$. Ajustando a curva referente a fenda aberta através da Eq.(34) obtivemos $z_0=0.25 \text{ cm}$ e $\Delta\Phi_0=0.09$.

Usando a Eq. (44) calculamos $n_2 = 1.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$. No entanto, precisamos lembrar que já consideramos o efeito de saturação. Em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ sabemos que $I_s \sim 1.5 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$, logo $s_0 \sim 0.3$ e $\Delta\Phi_0$ foi multiplicado pelo fator de correção $(1+s_0)^{0.525}$ (~ 1.15), consequentemente o valor de n_2' corresponde ao valor já corrigido. Como o valor de s_0 é relativamente baixo a relação $\Delta Z_{pv} = 1.7 z_0$ ainda pode ser usada (vide Eq.(40)). O processo análogo é feito para o caso $S=1$ utilizando a Eq. (45) para a Figura 4.9.

A Figura 4.8 mostra uma medida de varredura-Z no cristal de rubi ($\lambda=514.5 \text{ nm}$) com potência incidente $P=3.2 \text{ mW}$ ($I_0 = 0.46 \text{ kW/cm}^2$). Nesta experiência obteve-se $z_0 = 0.25 \text{ cm}$, a partir do fit da equação do Z-scan, para uma abertura da íris correspondente a $S = 0.5$ e utilizando um chopper sintonizado numa frequência de 40 Hz . Deste experimento obtivemos $n_2' = 1.6 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{KW}$ utilizando a Eq. (39).

Figura 4. 8: Curva de Z-scan em rubi, $\lambda=514.5 \text{ nm}$, $S=0.5$ (círculos - O) e $S=1.0$ (quadrados - □)

A Figura 4.9 exibe uma medida de varredura-Z do cristal de rubi em $\lambda = 514.5$ nm para uma abertura da íris correspondente a $S = 100\%$ ($S=1$). Nesta figura podemos observar apenas o efeito absorutivo da amostra. Deste experimento obtivemos $n_2'' = 0.5 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{kW}$.

Figura 4. 9: Curva Z-scan em rubi, $\lambda=514.5$ nm, $S=1.0$.

A Figura 4.10 mostra medidas de Z-scan em regime de baixa intensidade (Figura 4.10-a) e de alta intensidade (Figura 4.10-b) em $\lambda = 514.5$ nm. A Figura 4.10-b mostra, ainda, uma comparação entre os dados experimentais e o previsto pelas simulações numéricas (capítulo 3) usando valores de n_2' , k e L_{ef} mostrados nas tabelas 2 e 5. Da Figura 4.10-a obteve-se para uma abertura da íris correspondente a $S = 0.5$, $n_2' = 1.65 (\pm 0.11) \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{KW}$ e $I_s = (1.4 \pm 0.1) \text{ KW}/\text{cm}^2$. Na Figura 4.10-b temos medidas no regime de alta intensidade em que obtivemos o valor de $n_2' = 1.8 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{KW}$, ajustando pela Eq (44). No entanto, o valor de I_s ($1.5 \text{ KW}/\text{cm}^2$) foi obtido a partir do ajuste linear $\tau^{-1} \times I$ (Figura 4.13-b).

a)

b)

Figura 4. 10: a) Medida Z-scan para $S=0.5$ em regime de baixa intensidade ($I \leq 2.5I_s$).

b) Comparação entre medidas experimentais (círculos- O) a altas intensidades (I acima de $2.5I_s$), ajuste teórico (linha pontilhada) e a simulação teórica (quadrados- $\square$) para o caso do rubi em $\lambda=514.5$ nm.

4.3.3. Efeito de alargamento da função ΔZ_{pv} em medidas de Z-scan

Este efeito, teoricamente previsto na seção 3.4 (Figura 3.6), foi observado experimentalmente nas medidas de Z-scan tal como mostra a Figura 4.11.

Figura 4. 11: Alargamento da função ΔZ_{pv} em função da saturação para valores de s_0 variando de 0 a 5 para uma abertura da íris equivalente a $S=0.5$. Os círculos (○) representam as separações pico-vale para o rubi em 514.5 nm, a linha pontilhada corresponde ao ajuste teórico e os quadrados (□) correspondem às simulações numéricas.

Observamos no gráfico acima que a separação pico-vale parte do valor $\Delta Z_{pv} = 1.72 z_0$ e continua crescendo com a intensidade. Este efeito já foi observado também no $\text{BaLiF}_3:\text{Ni}^{+2}$ [SAM97].

4.3.4. Medidas Z-scan transientes

Através da técnica Z-scan resolvida no tempo podemos determinar os valores de n_2' , das intensidades de saturação I_s , e tempo de resposta do meio não-linear, dado pelo tempo de emissão espontânea τ_0 .

Nas medidas de Z-scan transientes posicionamos a amostra numa posição de variação de transmitância mínima ($z=-0.86z_0$, vale) ou de transmitância máxima ($z=+0.86z_0$, pico) e medimos a resposta do sinal transiente. A Figura. 4.10 mostra uma medida transiente do cristal de rubi em ponto de vale para um comprimento de onda de 514,5 nm e potência incidente $I_0=9.7 \text{ KW/cm}^2$.

Figura 4. 12: Medida Z-scan transiente do cristal de rubi em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ usando o potência do laser em $P=67 \text{ mW}$. Esta medida foi obtida em ponto de vale ($z = -0.86 z_0$), em que obtivemos um valor de $\tau_0 = 0.86 (\pm 0.005) \text{ ms}$. À direita temos a mesma medida observada em escala logarítmica.

Na Figura 4.11, o gráfico à direita representa uma medida transiente em escala logarítmica em que para construirmos essa escala subtraímos o valor do último ponto ($\Delta T_V(t) = T_V - 0.942$). A reta obtida demonstra que o resultado se aproxima bastante de um decaimento exponencial, com constante de tempo

$\tau=(0.86\pm0.01)$ ms. Note que devido ao efeito de saturação temos $\tau \ll \tau_0$ uma vez que $I \gg I_0$.

Foram feitas várias medidas análogas as da Figura 4.12 em função da potência incidente. Todas elas foram ajustadas com exponenciais com amplitude ΔT_v e amplitude τ . Na posição de vale temos intensidade axial $I=0.575 I_0$, entretanto na Figura 4.13-a graficamos ΔT_v versus I_0 ($\Delta T_v \times I_0$) para comparar com a expressão teórica da Eq. (44) e com a Figura 4.10. Ajustando a curva da Figura 4.13-a com a Eq. (44) obtivemos diretamente dos parâmetros do fit os valores $n_2' = 1 \times 10^{-8} \text{ cm}^2$ e $I_s=1.6 (\pm 0.1) \text{ KW/cm}^2$.

A Figura 4.13-a mostra a variação da transmitância entre pico e vale em função da intensidade I_0 medida no cristal de rubi em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$. Deste experimento obteve-se $n_2'=(1,45 \pm 0.15) \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$ e $I_s = (1.6 \pm 0.1) \text{ KW/cm}^2$. A curva da Figura 4.13-b foi ajustada com a Eq. (45) em que obtivemos $\tau_0=(3.8\pm0.1)$ ms e $I_s=(1.6\pm0.15) \text{ KW/cm}^2$. O valor de τ_0 está em bom acordo com o resultado obtido pela medida direta da fluorescência. Os valores de I_s obtidos nas partes a) e b) da Figura 4.13 estão em bom acordo com os valores da literatura [PIL96].

As mesmas medidas feitas em 514.5 nm foram repetidas para outros comprimentos de onda do laser de Ar^+ : 501.7, 488, 476.5 e 457.9 nm (vide Figura 4.14-4.17). As tabelas 4 e 5 mostram os valores obtidos nestes comprimentos de onda.

Devemos salientar que todas as medidas da intensidade I_0 foram realizadas considerando-se a refletividade da amostra e a intensidade média absorvida ao longo da amostra, ou seja, $\langle I_0 \rangle = I_0 L_{\text{eff}}/L$.

a)

b)

Figura 4. 13: a) Medidas Z-scan ($\lambda=514.5$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.

a)

b)

Figura 4. 14: a) Medidas Z-scan ($\lambda=501.7$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.

a)

b)

Figura 4. 15: a) Medidas Z-scan ($\lambda=488$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.

a)

b)

Figura 4. 16: a) Medidas Z-scan ($\lambda=476.5$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.

a)

b)

Figura 4. 17: a) Medidas Z-scan ($\lambda=457.9$ nm) em ponto de vale ($z=-0.86z_0$) com $S=0.5$ e b) Fit linear $\tau^{-1} \times I$.

4.3.5. Resultados e discussões

Os cristais dopados com Cr^{+3} possuem um alto efeito não-linear. Os resultados que obtivemos no rubi puderam ser reproduzidos, na maioria das vezes, em boa concordância com a literatura. Neste trabalho realizamos medidas de Z-scan em cinco linhas do laser de Ar^+ (457.9, 476.5, 488, 501.7 e 514.5 nm). A maior parte dos trabalhos sobre esse cristal tem resultados apenas em $\lambda = 514.5$ nm [CAC90, OLI95, CAT89, PIL96, etc.].

A varredura Z-scan ($T \times Z$) é um fator determinante do parâmetro confocal z_0 do feixe. Nas medidas realizadas com o laser de Ar^+ , utilizando uma lente de distância focal de 10,5 cm e uma íris em 50% de abertura ($S=0,5$), encontramos os seguintes valores de ω_0 e z_0 para os seguintes comprimentos de onda:

Lente $f = 10,5$ cm	ω_0 (cm)	z_0 (cm)
$\lambda = 457,9$ nm	0,00190	0,25
$\lambda = 476,5$ nm	0,00195	0,25
$\lambda = 488$ nm	0,00197	0,25
$\lambda = 501,7$ nm	0,00200	0,25
$\lambda = 514,5$ nm	0,00202	0,25

Tabela 1: Valores de z_0 para os respectivos comprimentos de onda medidos experimentalmente através das curvas Z-scan ($T \times z$).

As medidas de análise da varredura-Z foram realizadas em um cristal de espessura $L=0,13$ cm, porém este cristal é muito fino, o que leva a erros na medida do coeficiente de absorção. Este parâmetro é muito importante não apenas para o cálculo de n_2 (Eq. (44)) e $\Delta\alpha$ (Eq. (60)) como na comparação dos resultados com os da literatura. É importante lembrar que cristais com concentração de Cr^{+3} diferentes devem apresentar o mesmo fator n_2/A . Nós tivemos dificuldades para medir o coeficiente de absorção com razoável precisão principalmente nos comprimentos de onda na região de menor absorção.

A medida da absorção foi feita medindo-se a razão da potência transmitida pela potência incidente de um feixe de laser e utilizando a expressão $T=(1-R)^2 e^{-AL}$ (Lei de Lambert-Beer), em que R é o coeficiente de reflexão da amostra. De acordo com essa expressão podemos prever um erro que varia de acordo com a expressão $\Delta T = (1-R)^2 e^{-AL} \Delta(AL)$, ou seja, $\Delta A = (\Delta T/T)/L$. O erro na medida do coeficiente de absorção (ΔA) é dado pelo produto do erro relativo na medida da transmitância dado por $\Delta T/T$ vezes o fator $1/L$. Supondo, por exemplo, $\Delta T/T=0.03$ (ou 3%) e $L=0.1$ cm, temos $\Delta A=0.3 \text{ cm}^{-1}$ que é um valor alto considerando que A é menor do que 1 cm^{-1} .

Portanto, para termos mais de um referencial para calcular o valor de A do cristal realizamos várias medidas por meios diferentes em cristais de diferentes espessuras (com diferentes concentrações), como pode ser observado na Tabela 2. Nossa estratégia foi de medir os coeficientes de absorção das diversas linhas do laser de Ar^+ normalizando o resultado pela maior absorção em $\lambda=514,5$ nm. Além das medidas usando o laser, fizemos também medidas no espectrofotômetro Cary 17. Assim, adotamos como melhores valores àqueles referentes ao cristal cujo L é de 0,31 cm por ser o cristal com maior comprimento (e absorbância) que deve apresentar menor erro. Para comparar diferentes cristais, com espessuras e/ou concentrações diferentes, adotamos como referência o comprimento de onda 514.5 nm. Em princípio a razão $A(\lambda)/A(514.5)$ não deveria depender do cristal(cade o resto?). Apenas para comparação, na Tabela 3 temos resultados obtidos por Liao e Bloom[LIB78].

Cristal 1 (espessura L=0,13 cm)				
λ [nm]	$A(\text{Ar}^+)$ [cm ⁻¹]	$\bar{A}(\text{Ar}^+)$ $A/A_{514,5}$	A_c [cm ⁻¹]	$\bar{A}_c$ $A_c/A_{c(514,5)}$
514,5	0,80	1,0	1,08	1,0
501,7	-	-	0,78	0,72
488	0,22	0,28	0,60	0,55
476,5	0,31	0,39	0,53	0,49
457,9	0,22	0,28	0,60	0,56

Cristal 2 (espessura L=0,31 cm)				
λ [nm]	$A(\text{Ar}^+)$ [cm ⁻¹]	$\bar{A}(\text{Ar}^+)$ $A/A_{514,5}$	A_c [cm ⁻¹]	$\bar{A}_c$ $A_c/A_{c(514,5)}$
514,5	0,63	1,0	0,77	1,0
501,7	-	-	0,48	0,63
488	0,23	0,37	0,30	0,39
476,5	0,16	0,25	0,26	0,34
457,9	0,25	0,40	0,31	0,40

Cristal 3 (espessura L=0,206 cm)				
λ [nm]	$A(\text{Ar}^+)$ [cm ⁻¹]	$\bar{A}(\text{Ar}^+)$ $A/A_{514,5}$	A_c [cm ⁻¹]	$\bar{A}_c$ $A_c/A_{c(514,5)}$
514,5	-	-	1,03	1,0
501,7	-	-	0,61	0,60
488	-	-	0,36	0,35
476,5	-	-	0,27	0,27
457,9	-	-	0,35	0,34

Tabela 2: Valores do coeficiente de absorção A no cristal de rubi, em que A_c corresponde as medidas obtidas no espectrofotômetro Cary 17 e $\bar{A}$ é o valor da absorção normalizado ao valor de A em 514.5 nm.

A Tabela 3 mostra uma comparação entre nossos resultados e os resultados obtidos em rubi, por Liao e Bloom [LIB78], quando este analisou um cristal similar. O valor I_s^* foi calculado através da expressão $I_s^* = hc/\lambda\sigma\tau_o$, em que usamos $\tau_o=3.8$ ms e $\sigma=A/N_o$ foi calculado a partir dos valores de A indicados na Tabela 4. Os valores de τ_o e I_s foram obtidos através da dependência de $\tau^{-1} \times I/I_s$ tal como ilustrado na Figura 4.13-b para $\lambda = 514.5$ nm

Espessura do cristal: $L=0,13\text{ cm}$		
λ [nm]	$A=\bar{A}$ [cm ⁻¹]	I_s [KW/cm ²]
514,5	1,0	1.6
488	0,29	6.4
476,5	0,20	7.4
457,9	0,29	5.0

Tabela 3: Valores do coeficiente de absorção A no cristal de rubi obtidos por Liao e Bloom [LIB78].

As Tabelas 4 e 5 mostram os resultados obtidos para τ_0, I_s, n_2' e $\Delta\alpha$, para uma abertura correspondente a 50% ($S = 0,5$).

λ [nm]	A [cm ⁻¹]	τ_0 [ms]	Erro	I_s [KW/cm ²]	Erro	I_s^* [KW/cm ²]	I_s/I_s^*
514,5	0.77	3,8	$\mp 11\%$	1,6	$\mp 12\%$	1,5	1.1
501,7	0.48	4,0	$\mp 11\%$	2,6	$\mp 19\%$	2,4	1.1
488	0.30	3,7	$\mp 2,6\%$	5,8	$\mp 4,7\%$	4,0	1.5
476,5	0.26	3,3	$\mp 2,8\%$	11,7	$\mp 6,3\%$	4,6	2.5
457,9	0.31	3,6	$\mp 1,2\%$	6,8	$\mp 2,3\%$	4,1	1.7

Tabela 4: Valores de τ_0, I_s obtidos das medidas de Z-scan do cristal 1.

λ [nm]	n_2' [10 ⁻⁸ cm ² /W]	$\Delta\alpha$ [10 ⁻²⁵ cm ³]	$\Delta\alpha^*$ [10 ⁻²⁵ cm ³]
514,5	1,45 $\mp 0,15$	1.9	2,1
501,7	1,00 $\mp 0,01$	2.1	2,3
488	0,50 $\mp 0,02$	1,7	2,5
476,5	0,39 $\mp 0,04$	1,6	4,1
457,9	0,49 $\mp 0,05$	1,8	3,0

Tabela 5: Valores de n_2' e $\Delta\alpha$ obtidos das curvas experimentais Z-scan transientes.

O valor de $\Delta\alpha^*$ foi calculado usando-se o valor I_s obtido dos ajustes lineares das medidas transientes mostradas na Tabela 4. Por medidas diretas de fluorescência (vide Figura 4.4) sabemos que para nossa amostra de rubi $\tau_0=(3.8\pm 0.01)$

ms. Com exceção do valor em 476.5 nm os valores de τ_0 medidos na Tabela 4 estão entre 3.6 e 4.0 (desvio ~5%), portanto em bom acordo com o resultado esperado. Nosso maior problema está na interpretação dos resultados de I_s em que obtivemos concordância com o valor esperado (I_s^*) apenas em $\lambda=514.5$ nm. Na Figura 4.18 podemos notar que a medida que o coeficiente de absorção (A) aumenta temos um decréscimo da eficiência quântica (η), em que a eficiência quântica é dada por $I_s = 1/\eta \cdot h\nu / \sigma\tau$ ($c=\lambda\nu$). Os círculos representam a razão entre os valores de I_s^* e I_s enquanto que os quadrados representam as medidas por fluorescência em cada comprimento de onda.

Figura 4. 18: Eficiência quântica (η) em função da absorção (A).

Capítulo 5: Conclusão

Neste trabalho mostramos resultados teóricos e experimentais inéditos sobre um estudo da técnica de varredura-Z em sólidos dopados. Mostramos, pela análise teórica, a validade de nosso modelo aplicado ao método da refração não-linear transiente com excelente acordo com a literatura, e com os resultados de Oliveira et al, aplicado ao caso de varredura-Z resolvida no tempo[OLI96]. Dentro desta análise, concluímos que os cálculos de Oliveira continuam válidos para $I/I_s \leq 2,5$, mas para $I/I_s \geq 2,5$ o expoente da Eq. (44) deve ser modificado de 0,575 para uma abertura nula e de 0,542 para uma abertura $S=0,5$. Nestes casos conseguimos reproduzir muito bem os resultados já conhecidos da literatura.

Mostramos, ainda, que o caso por refração não-linear transiente também confirmam o estudo de Oliveira et al[OCS96] e sugerem uma modificação de 0,560 no expoente 0.525 (Eq. (44)) por 0.560 quando se trata de uma abertura de $S=0,5$. Até então a análise do caso transiente só havia sido feita experimentalmente [PIL96], logo as simulações numéricas foram significativas para confirmar teoricamente a validade do método utilizado apenas experimentalmente. Portanto, temos a segurança de afirmarmos que nosso modelo é eficiente e confiável para quaisquer situação da teoria da técnica Z-scan.

As discrepâncias entre os valores obtidos em nossas simulações e àquelas obtidas por outros trabalhos se devem ao numero de algarismos significativos com que se trabalha ao escolher parâmetros de simulações.

No trabalho experimental obtivemos excelente acordo com a literatura nos resultados em $\lambda=514.5$ nm e trouxemos novos resultados ao aplicar a técnica de Z-scan transiente para estudar o cristal de rubi em outros comprimentos de onda além do 514,5 nm.

Os resultados obtidos indicam que a eficiência quântica da fluorescência é menor nos comprimentos de onda de menor absorção (mais longe do pico).

Capítulo 6: Referências

- AAA98 ANDRADE, A. A. DE CASTRO, “Estudo do índice de refração não-linear em cristais e vidros fluoretos dopados”, dissertação de mestrado, IFSC, Universidade de São Paulo, maio de 1998.
- ATC98 A. ANDRADE, TENÓRIO, E., CATUNDA, T., BAESSO, M.L. CASSANHO, A. and JENSSEN, H. P., “Discrimination between electronic and thermal contributions to the nonlinear refractive index of $\text{SrAlF}_5:\text{Cr}^{+3}$,” aceito para publicação no J.Opt. Soc. Am B, vol. 16, No. 3, março 1999.
- ADL91 ADLER, C.L. and LAWANDY, N.M., “Temperature and spectral dependence of the nonlinear index of ruby via nondegenerate two-wave mixing”, Opt. Comm. 81 (1991) 33-37.
- BCO89 BOOTHROYD, S. A.; CHROSTOWSKI, J. and O’SULLIVAN M. S., “Two-wave mixing by phase and absorption gratings in saturable absorbers”, J. Opt. soc. Am. B 6 (1989) 766-771.
- BOY92 BOYD, R.W., “Nonlinear Optics”, Academic Press, New York, 1992.
- CAC86 CATUNDA, T.; ANDREETA, J.P. & CASTRO, J.C. - The differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of Ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$, Appl. Opt., **25** (14), 15 jul. 1986.
- CAC83 CATUNDA, T. & CASTRO, J.C. - Phase conjugation in $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ and ruby, Opt. Commun., **63** (1987)185-190.
- CAC87 CATUNDA, T. & CASTRO, J.C. - Phase conjugation in $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ and ruby, Opt. Commun., **63** (1987)185-190.
- CAT89 CATUNDA, T., ‘Conjugação de fase e modulação transversal de fase em cristais dopados com Cr^{+3} ’ -Tese de doutorado, USP, 1989.

- CAC90 CATUNDA, T. & CURY, L.A. - Transverse self-phase modulation in Ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ crystals, J. Opt. Soc. Am. B, 7 (8): 1445-1455, 1990.
- CCC91 CATUNDA, T.; CANSIAN, A.M.; CASTRO, J.C. - Saturation effects in the degenerate four wave mixing of Ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$, J. Opt. Soc. Am. B, 8 (4): 820-823, 1991.
- CAN92 CATUNDA, T. & NUNES, L.A.O. - Interference effects in the degenerate wave-mixing spectroscopy of Alexandrite. Phys. Rev. B, 45 (17): 10087-10090, 1992.
- ESS73 EICHLER, H., SAILE, G. and STAHL, H., "Thermal diffusion measurements using spatially periodic temperature distribution induced by laser light", J. Appl. Phys. 44 (1973) 5383.
- GTP84 GHAZZAWI, A. M.; TYMINSKI, J. K.; POWELL, R. and WALLING, J. C. Four-wave mixing in alexandrite crystals, Phys. Rev. B 30, 7182 (1984).
- JEL86 JENSSEN, H. P.; LAI, S.T., "Tunable-laser characteristics and spectroscopic properties of $\text{SrAlF}_5:\text{Cr}^{+3}$ ", J. Opt. Soc. Am. B 3 (1986) 115.
- KHO87 KHOO, I. C.; HOU, J.Y.; LIU, T. H.; YAN, P. Y.; MICHAEL, R. R. and FINN, G. M., "Transverse self-phase modulation and bistability in the transmission of a laser beam through a nonlinear thin film", J. Opt. Soc. Am. B 4 (1987) 886.
- KLF86 KHOO, I. C.; HOU, J.Y.; LIU, T. H.; YAN, P. Y.; MICHAEL, R. R. and FINN, G. M., "Passive optical self-limiter using laser-induced axially

asymmetric and symmetric transverse self-phase modulations in nematic liquid crystals”, Opt. Lett. V.11, 4 (1986).

- LIB78 LIAO,P.F. and BLOOM,D.M. “Continuous-wave backward wave generation by degenerate four-wave mixing in ruby”, Opt.Lett. V.3, 1 (1978).
- MAN80 MANDELBERG, H.I.; “Phase-modulated conjugate-wave generation in ruby’, Opt. Lett. 5 (1980) 258.
- OLZ94 OLIVEIRA, L.C.; and ZILIO, S.C., ”Single-beam time-resolved Z-scan measurements of slow absorbers”, Appl. Phys. Lett. **65**, 1-3, 1994.
- OLI95 OLIVEIRA,L.C., “Aplicação da técnica de varredura Z ao estudo de não-linearidades ópticas em absorvedores saturáveis”- Tese de doutorado da Universidade de São Paulo, 1995.
- OCZ96 OLIVEIRA, L.C., CATUNDA, T., ZILIO, S.C. - Saturation effects in Z-scan measurements, ” Jap. J. Appl. Phys. vol. **35**, 2649-2652, 1996.
- PAF94 PALANGE,E. e FRAGNITO,H.L., “Medida de n_2 com a técnica de Z-Scan”(notas de aula para a IV Escola de verão Jorge André Swieca de Óptica Quântica e Óptica Não-Linear”, FEV. 94.
- PGQ85 POWELL, R.C., XI, L., GANG, X. and QUARLES, G.J., “Spectroscopic properties of alexandrite crystals” Phys.Rev. B.32, (1985) 2788.
- PGZ91 PENAFORTE, J.C., GOUVEIA, E.A, and ZILIO,S.C. “Nondegenerate two- wave mixing in $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ ”,Optics Letters, V.16, 452 (1991).
- PIC97 PILLA, V.; IMPINNISI, P.R.; CATUNDA, T., “Measurement of Saturation Intensity in Ion Doped Solids by Transient Nonlinear Refraction”, Appl. Phys. Lett., **70** (1997) 817.

- PIL96 PILLA, V., "Medidas de intensidades de saturação por refração não-linear transiente", dissertação de mestrado, IFSC, Universidade de São Paulo, junho de 1996.
- POP90 POWELL, R. and PAYNE, S. - Dispersion Effects in Four-Wave Mixing Measurements of Ion in Solids - Optics Letters, **15**, 1233 (1990).
- SCH84 SCHEPLER, K.L., "Fluorescence of inversion site Cr^{+3} ions in alexandrite". J. Appl. Phys. 56(5), 1314 (1984).
- SHE84 SHEN, Y.R. "The Principles of Nonlinear Optics" (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1984).
- SAM97 Samad, R. E., "Determinação do Índice de refração não-linear do $\text{BaLiF}_3:\text{Ni}^{+2}$ por meio da técnica da varredura - Z para absorvedores saturáveis", dissertação de mestrado, IFUSP, Universidade de São Paulo, junho de 1997.
- SVO12 SVELTO, O. "Self-Focusing, Self-Trapping, and Self-Phase Modulation of Laser Beams", Progress In Optics, Wolf Editor, vol. XII.
- SSS89 SHEIK-BAHAE, M.; SAID, A.A. and STRYLAND, E.W.V. "High sensitivity single beam n_2 measurement", Opt.Lett., vol.14, pp.955-957, 1989.
- SSW90 SHEIK-BAHAE, M.; SAID, A.A., WEI, T., HAGAN, D. and STRYLAND, E.W.V, "Sensitive Measurement of Optical Nonlinearities Using a single Beam", IEEE J.Quantum Electronics, 760, vol.26, pp.760-769, 1990.

- WWM79 WEAIRE, D.; WEHERRETT, B.S.; MILLER, D.A.B. and Smith, S.D.
"Effect of low- power nonlinear refraction on laser-beam propagation in
INSb", Opt.Lett., vol 4, pp. 331-333, 1979.
- YAR91 YARIV, A., "Optical Electronics", fourth edition, Saunders College
Publishing, Fort Worth, USA, 1990.
- ZPG91 ZILIO, S.C.; PENAFORTE, J.C.; GOUVEIA, E.A.; BELL, M.J.V.,
"Nearly degenerate two-wave mixing in saturable absorbers", Opt.
Comm. 86 (1991) 81-87.

Apêndices

Apêndice A

Integral de difração de Fresnel-Kirchhoff em coordenadas cilíndricas.

Partindo da integral de difração de Kirchhoff:

$$\varepsilon_a(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda} \iint_E \frac{e^{-ikd_{01}}}{d_{01}} \cos(\mathbf{n} \cdot \mathbf{d}_{01}) \mathcal{E}_\alpha(x_0, y_0) dx_0 dy_0, \quad (\text{A-1})$$

Aplicando a aproximação do campo distante ($d \gg r$) o termo $1/d_{01}$ pode ser aproximada por $1/d$. Esta aproximação ^{nao} pode ser feita na parte exponencial da integral de difração de Kirchhoff devido ao valor de k ($\sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$) que gera erros maiores do que 2π . Então, considerando que nesta aproximação $\cos(\mathbf{n} \cdot \mathbf{d}_{01}) \approx 1$, a integral de difração de Kirchhoff (A-I.1) pode ser escrita como:

$$\varepsilon_a(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda d} \iint_E e^{-ikd_{01}} \mathcal{E}_\alpha(x_0, y_0) dx_0 dy_0, \quad (\text{A-2})$$

Na aproximação de Fresnel a parte exponencial da integral é transformada pelas seguintes aproximações das relações:

$$d_{01} = \sqrt{d^2 + (x_1 - x_0)^2 + (y_1 - y_0)^2} = d \sqrt{1 + \left(\frac{x_1 - x_0}{d}\right)^2 + \left(\frac{y_1 - y_0}{d}\right)^2}, \quad (\text{A-3})$$

Recordando que $\sqrt{1+b} = 1 + \frac{b}{2} - \frac{b^2}{8} + \dots (b \rightarrow 0)$, a distância d_{01} é

escrita:

$$d_{01} = d \left(1 + \frac{x_0^2 + y_0^2}{2d^2} - \frac{x_1 x_0 + y_1 y_0}{d^2} + \frac{x_1^2 + y_1^2}{2d^2} - \dots \right). \quad (A-4)$$

Então, a integral (A-I.2) será expressa por:

$$\varepsilon_a(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda d} \iint_E e^{-ikd \left(1 + \frac{x_0^2 + y_0^2}{2d^2} - \frac{x_1 x_0 + y_1 y_0}{d^2} + \frac{x_1^2 + y_1^2}{2d^2} \right)} \varepsilon_a(x_0, y_0) dx_0 dy_0, \quad (A-5)$$

Devido as propriedades de simetria dos problemas de propagação do feixe é necessário rescrever a integral em termos de coordenadas cilíndricas. As coordenadas cartesianas estão relacionadas com as cilíndricas por:

$$\begin{aligned} x_0 &= r \cos \varphi, & y_0 &= r \sin \varphi; \\ x_1 &= r_1 \cos \vartheta, & y_1 &= r_1 \sin \vartheta. \end{aligned}$$

Substituindo as coordenadas cartesianas dentro da integral (A-I.5) podemos rescrevê-la da seguinte forma:

$$\varepsilon_a(r_1, \vartheta) = \frac{i}{\lambda d} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} e^{-ikd \left(1 + \frac{r^2}{2d^2} - \frac{rr_1 \cos \varphi \cos \vartheta + rr_1 \sin \varphi \sin \vartheta}{d^2} + \frac{r_1^2}{2d^2} \right)} \varepsilon_a(r, \varphi) r dr d\varphi, \quad (A-6.a)$$

$$\varepsilon_a(r_1, \vartheta) = \frac{i}{\lambda d} e^{-ikd \left(1 + \frac{r_1^2}{2d^2}\right)} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} e^{-ikd \left(\frac{r^2}{2d^2} - \frac{rr_1 \cos(\varphi - \vartheta)}{d^2}\right)} \varepsilon_\alpha(r, \varphi) r dr d\varphi, \quad (\text{A-6.b})$$

Agora, lembrando a definição da função de Bessel de ordem zero:

$$J_0(u) \equiv \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{iu \cos v} dv, \quad (\text{A-7})$$

e considerando a simetria angular (implica que $\varepsilon(r, \varphi) = \varepsilon(r)$ e $\varepsilon_a(r_1, \vartheta) = \varepsilon_a(r_1)$) a integral de difração de Kirchhoff na aproximação de Fresnel em coordenadas cilíndricas pode ser, finalmente, escrita como:

$$\varepsilon_a(x_1, y_1) = \frac{ik}{d} e^{-ik \left(d + \frac{r_1^2}{2d}\right)} \int_0^\infty e^{-\frac{ikr^2}{2d}} \varepsilon_\alpha(r) J_0\left(\frac{kr r_1}{d}\right) r dr, \quad (\text{A-8})$$

Geralmente o termo $e^{-ik \left(d + \frac{r_1^2}{2d}\right)}$ pode ser desconsiderado quando o objetivo é calcular a intensidade $I = |\varepsilon_a(r_1)|^2$ no ponto r_1 do plano a (este termo é um imaginário puro e não contribui para a intensidade).

Podemos aplicar a integral de difração de Kirchhoff para resolver o problema da difração de Fresnel para uma abertura circular de raio a . Nesta situação, na aproximação de Fresnel, a integral de difração de Kirchhoff em coordenadas cilíndricas pode ser escrita como:

$$\varepsilon_a(x_1, y_1) = \frac{ik}{d} e^{-ik\left(d + \frac{r_1^2}{2d}\right)} \int_0^a e^{-\frac{ikr^2}{2d}} \varepsilon_\alpha(r) J_0\left(\frac{kr r_1}{d}\right) r dr, \quad (\text{A-9})$$

em que a Eq. (A-I.9) representa a fórmula da difração de Fresnel para uma abertura circular de raio a .

O problema pode ser simplificado se usarmos a aproximação de Fraunhofer que, neste caso, consiste em aproximar $\exp(-ikr^2/2d) \sim 1$. Aplicando as propriedades das funções de Bessel temos:

$$\varepsilon_a(r_1, \varphi) \propto \frac{J_1\left(\frac{kar_1}{d}\right)}{\frac{kar_1}{d}} \quad (\text{A-10})$$

APÊNDICE B

Caso particular da varredura-Z : Solução por expansão em séries envolvendo os termos de saturação.

Neste caso optamos por expandir em séries de potências o termo

$\frac{1}{1 + s(x)e^{-2\rho_o^2}}$ da Eq. (46) em que obtivemos a seguinte série de termos:

$$\frac{1}{1 + s(x)e^{-2\rho_o^2}} = 1 - s(x)e^{-2\rho_o^2} + s(x)e^{-4\rho_o^2} - s(x)e^{-6\rho_o^2} + \dots \quad (\text{B-1})$$

Aplicando a expansão acima e resolvendo a integral $\delta\mu$ (Eq.33-c) teremos uma expressão geral para a curva Z-scan incluindo o termo de saturação, a qual é válida apenas para $s_o < 1$. Devemos lembrar que s_o representa a razão I_o/I_s .

A expressão geral da curva Z-scan será, então, dada por:

$$T(\Delta\Phi_0, x, s(x)) = 1 + \frac{4\Delta\Phi_0 x}{(1+x^2)} \left[\frac{1}{(9+x^2)} - \frac{2s(x)}{(25+x^2)} + \frac{3s(x)}{(49+x^2)} - \frac{4s(x)}{(81+x^2)} + \dots \right] \quad (\text{B-2})$$

em que é importante lembrar que $s(x) = s_o(1+x^2)^{-1}$.

Uma simulação da equação acima mostra a curva característica do Z-scan em função da saturação para valores de s_0 variando de 0 a 1 para um valor de $\Delta\Phi_0=0.1$.

Função $T(x, \Delta\Phi_0, s(x))$ em que $\Delta\Phi_0=0.1$.

Convém observar que quando $s(x)=0$ a expressão recai no caso obtido pela Eq. (39) que é o mesmo caso derivado por Sheik-Bahae [SSS89].