

Instituto de Física da
Universidade de São Paulo

Medida de Efeitos Óticos Não-Lineares por Reflexão de Luz Polarizada

Marcelo Martinelli

Dissertação apresentada como parte dos requisitos
para obtenção do Grau de Mestre em Ciências.

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Ricardo Josué Horowicz (Orientador)
Inst. de Física da Universidade de São Paulo - Depto. de Física Experimental

Prof. Dr. Iuda Dawid Goldman vel Lejbman
Inst. de Física da Universidade de São Paulo - Depto. de Física Experimental

Prof. Dr. Nilson Dias Vieira Jr.
Inst. de Pesquisas Energéticas Nucleares- Divisão de Materiais Optoeletrônicos

São Paulo, março de 1998.

Dados para Ficha Catalográfica de Teses:

Área de Conhecimento (CAPES): 1.05.07.00-0

Autor: Marcelo Martinelli

Título da Tese: Medida de Efeitos Óticos Não-lineares por Reflexão de Luz Polarizada

Ano: 1998

Mestrado

Orientador: Prof. Dr. Ricardo Josué Horowicz

Departamento: Física Experimental (FEP)

Área de Concentração: Ótica Não-linear

Unitermos: Varredura Z

Z-Scan

RZ-Scan

Efeito Kerr Ótico

Agradecimentos,

Ao Prof. Ricardo J. Horowicz pela orientação e pelo apoio ao longo desta jornada.

Ao Prof. José Roberto Leite, pelo empréstimo das instalações do Laboratório de Novos Materiais Semicondutores (LNMS/PL), pelo uso do laser de Argônio e pelo apoio na realização deste projeto,

Ao Prof. Mikiya Muramatsu, pelo paciente empréstimo do laser de Argônio e dos materiais óticos e mecânicos do Laboratório de Óptica deste Instituto, além da amizade e dedicação que acabaram por chamar minha atenção para a área de Ótica.

Ao Prof. Tomáz Catunda pelas discussões a respeito da técnica de Varredura Z e Ótica Não-Linear, além do empréstimo das amostras de Rubi e Gadolínio para execução do trabalho, que juntamente com o sistema de translado e o sistema de aquisição de dados permitiram o rápido desenvolvimento da técnica e sua implantação em nossos laboratórios.

Ao Prof. Laércio Gomes, pelo empréstimo das instalações no Grupo de Materiais Optoeletrônicos do Instituto de Pesquisas Energéticas Nucleares (IPEN), e aos Profs. Nilson Dias Vieira Jr. e Niklaus Ursus Wetter pela colaboração nesta frutífera interação.

Ao Prof. Cid B. de Araújo, pelos conselhos e orientações sobre o uso da Varredura Z de Reflexão e pelo incentivo em seu desenvolvimento em nosso Laboratório.

Ao Prof. Alain A. Quivy no fornecimento das amostras de GaAs empregadas neste trabalho e pelo crescimento de outras amostras valiosas para futuros projetos.

Ao Dr. Bian Shaoping, pelo auxílio na revisão do modelo teórico da Varredura Z de Reflexão Inclinada.

Aos amigos Rodolfo Miamoto e Humberto Yizuka, pela colaboração na montagem do Sistema de Aquisição de Dados. Em especial a Roberto R. Belli e José Brito de Souza, que além disso desenvolveram os programas básicos para aquisição e funcionamento do sistema.

Ao Sr. Donato J. Binelli e aos amigos da Oficina Central do IFUSP, pela fabricação dos suportes mecânicos e dos sistemas de translado.

Aos amigos do Grupo de Óptica do Instituto, em especial a Diogo Soga e Raul Paiva pela paciência e bom humor (praticamente) inabaláveis.

Aos amigos do LNMS/PL, especialmente a Alexander Levin (Sacha) e Júlio A. Toledo Soares pelas orientações do uso dos materiais óticos e do laser de Argônio.

A Ricardo E. Samad, do Grupo de Materiais Optoeletrônicos (MEO-IPEN) pelas discussões sobre o sistema de medida e o emprego da Varredura Z.

A Marcelo Ikegami Motta, pelo apoio na aquisição de dados no Laboratório, e a todos os amigos do Grupo de Ótica Quântica e Não-Linear pela atenção e bom humor que ajudaram nesta empresa. Em especial aos colegas Hamilton, Gilder Nader, Paulo César (PC), Fábio Cuppo, Alexandre Rigotti, Sarah Isabel, Jacinto Esteves, Luís Pinheiro e José Aguirre. E aos novos amigos do grupo, Fernando Shiota, Fábio Pitorri e Eduardo Dourado.

Aos amigos Carlos Santi, Laurence Stendart, Valmir Jorge, Parmênides Martines e Edson Tadeu, e a Renato Cantão.

Às secretárias do Departamento de Física Experimental, Elizabeth Varella, Rosana B. Gimenis Biz, Eliane P. de Souza, Maria A. O. Marques (Daise), Maria de Lourdes Moraes, e Iracema F. de Souza pela atenção.

À CAPES pelo suporte financeiro.

Para Jane

Lígia Paula

e Samantha,

obrigado por todo o carinho.

Resumo

Apresentamos neste trabalho uma nova técnica de medida dos termos não-lineares do coeficiente de absorção (β) e do índice de refração (n_2).

Esta nova técnica, denominada Varredura Z de Reflexão Inclinada, aumenta a sensibilidade da Varredura Z de Reflexão em cerca de 30 vezes pelo emprego de um feixe polarizado com incidência inclinada sobre a amostra em estudo. Para uma polarização paralela ao plano de incidência, temos um máximo de sensibilidade nas proximidades do ângulo de Brewster para materiais transparentes, ou do ângulo de mínima reflexão em materiais absorptivos. Conseguimos por este método medir variações do índice de refração da ordem de 10^{-4} em absorvedores saturáveis (Aluminato de Gadolínio - $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$). Tais medidas não seriam possíveis sem o aumento obtido na sensibilidade e o uso de uma alta resolução no sistema de aquisição (melhor que 0,1% em intensidade).

Abstract

We present in this work a new technique that we developed for the measurements of nonlinear coefficients of the absorption (β) and from the refractive index (n_2).

The use of a polarized beam in this new technique (Reflection Z-Scan with Inclined Incidence) increases the set-up sensibility of the conventional RZ-Scan measurement in 30 times.

For parallel polarization of the beam to the incidence plane, we can see an increase in the measurement sensibility as the incident light angle approaches the Brewster angle for transparent materials, or the minimum reflection angle for an absorbing material. We have measured changes in the refractive index as small as 10^{-4} in saturable absorber (Gadolinium Aluminate - $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$). Such measurements would not be possible without the development of the sensitivity enhancement achieved by this technique and a high amplitude resolution on the data acquisition system, as small as 0.1%.

Índice

1. INTRODUÇÃO HISTÓRICA	1
2. FUNDAMENTOS DE ÓTICA NÃO-LINEAR	7
2.1. EQUAÇÕES DE MAXWELL.....	7
2.2. POLARIZAÇÃO NÃO-LINEAR.....	12
2.3. SUSCEPTIBILIDADE ELÉTRICA	18
2.4. EFEITOS ÓTICOS NÃO-LINEARES	21
2.4.1. Polarização eletrônica	25
2.4.2. Reorientação molecular	26
2.4.3. Eletrostricção	27
2.4.4. Efeitos térmicos	28
2.4.5. Absorção ressonante e absorvedores saturáveis.....	29
3. MEDIDA DE NÃO-LINEARIDADES ÓTICAS PELO MÉTODO DE VARREDURA Z.....	34
3.1. DESCRIÇÃO TEÓRICA DA VARREDURA Z DE TRANSMISSÃO:	37
3.1.1. Não-linearidade refrativa (n_2):.....	41
3.1.2. Não-linearidade absorptiva (β):	49
3.2. VARREDURA Z DE REFLEXÃO	56
3.2.1. Reflexão do feixe por uma superfície	58
3.2.2. Análise do feixe refletido por um meio não linear	59
3.3. APLICAÇÃO DA VARREDURA Z EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS	66
4. MÉTODO PROPOSTO: VARREDURA Z DE REFLEXÃO COM AMOSTRA INCLINADA E LUZ POLARIZADA.....	71
4.1. REFLEXÃO LINEAR PRÓXIMO AO ÂNGULO DE BREWSTER	71
4.2. REFLEXÃO NÃO-LINEAR PRÓXIMO AO ÂNGULO DE BREWSTER	78
4.3. VARREDURA Z DE REFLEXÃO COM INCIDÊNCIA INCLINADA	81
4.4. CASO PARTICULAR: APLICAÇÃO A ABSORVEDORES SATURÁVEIS.....	85
4.5. RESULTADOS TEÓRICOS E ANÁLISE DO MÉTODO PROPOSTO.....	86
5. MONTAGEM EXPERIMENTAL	92
5.1. EQUIPAMENTO	92
5.2. MÉTODOS DE NORMALIZAÇÃO DO SINAL.....	95
5.2.1. Normalização por dois detetores.....	96
5.2.2. Resolução temporal.....	97
5.3. MONTAGENS EMPREGADAS	100
5.3.1. Caracterização linear do absorvedor saturável.....	100
5.3.2. Varredura Z de Transmissão para medida de n_2	101
5.3.3. Varredura Z de Reflexão Inclinada.....	103
6. RESULTADOS OBTIDOS.....	105
6.1. MEDIDA DE NÃO-LINEARIDADES ÓTICAS POR VARREDURA Z DE TRANSMISSÃO - CARACTERIZAÇÃO INICIAL	105
6.1.1. Aluminato de Gadolínio	105
6.1.2. Rubi:	114
6.2. DEMONSTRAÇÃO DO MÉTODO PROPOSTO: MEDIDAS DE NÃO-LINEARIDADES ÓTICAS POR VARREDURA Z DE REFLEXÃO INCLINADA	118
6.2.1. Variação da reflexão com o ângulo de incidência	119
6.2.2. Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada.....	127
6.3. SENSIBILIDADE DA TÉCNICA	129
7. CONCLUSÃO	131

8. APÊNDICE I: MEDIDAS DE NÃO-LINEARIDADES ÓTICAS EM ARSENETO DE GÁLIO	133
8.1. EFEITOS TÉRMICOS ESTUDADOS PELA VARREDURA Z DE REFLEXÃO	133
8.1.1. <i>Resultados obtidos</i>	138
8.2. REGIME PULSADO:.....	140
9. APÊNDICE II: FEIXE GAUSSIANO	147
10. APÊNDICE III: PLACA DE AQUISIÇÃO DE DADOS.....	155
11. REFERÊNCIAS	159

1. Introdução Histórica

A luz e sua interação com a matéria, como as demais áreas da Física, despertaram o interesse humano ao longo dos tempos. Os primeiros relatos e discussões conhecidos sobre ótica remontam aos séculos V e IV AC, com os escritos de Empedocles e Euclides. No entanto, somente com o desenvolvimento do método experimental na Física por Galileu (1564-1642) passamos a ter um estudo da luz e seus efeitos de uma forma estruturada. Diversos fenômenos eram conhecidos no século XVII, como a lei da reflexão, a lei de Snell e o princípio de Fermat.

No desenvolvimento da ótica passamos da teoria corpuscular, proposta por Newton, para a teoria ondulatória, a qual começa a ser aplicada pelo emprego do princípio de Huygens (1690). Os efeitos de interferência descritos por Young (1801) e a difração descrita por Fresnel (1816) consolidam a teoria ondulatória, a qual encontra uma justificativa física nas equações de Maxwell (1873) para o campo eletromagnético. A teoria eletromagnética explica os efeitos de interferência, difração e polarização envolvendo a luz.

Até então não havia uma explicação física para a interação da luz com a matéria. Os diversos efeitos conhecidos, como a absorção da luz, a refração, a dispersão e a birrefringência, resultavam em um conjunto de características que dependiam do material, e não do campo incidente. Os fenômenos eram conhecidos e medidos, mas não se sabia como tais efeitos da matéria sobre a luz ocorriam.

A análise da interação da luz com a matéria, mais precisamente do espectro de luz emitido ou absorvido por ela, deu origem à espectroscopia. Podemos identificar o início deste estudo pela observação de linhas escuras no espectro solar por Fraunhofer (1817). Este estudo da matéria pela luz irá levar ao conceito de níveis de energia quantizados para os átomos.

O conceito de quantização da energia começa em 1900, com a teoria de Planck para a radiação do corpo negro. Temos aqui o conceito no qual a interação entre a matéria e o campo eletromagnético ocorre pela troca de quantidades definidas de energia entre eles. O conceito de fóton como a menor quantidade de energia que pode ser trocada entre a matéria e o campo em uma dada frequência foi introduzido por Einstein em 1905 na descrição do efeito fotoelétrico. Juntamente com a idéia de níveis de energia no átomo, introduzida por Bohr (1913), levam ao início da mecânica quântica.

A troca de energia entre o campo eletromagnético e a matéria foi descrita com sucesso através dos chamados coeficientes A e B de Einstein [1]. Por outro lado, a quantização do campo por Dirac (1927) levou à Eletrodinâmica Quântica. Temos então as bases de uma nova forma de estudar os fenômenos óticos envolvendo estes conceitos, conhecida como Ótica Quântica.

Pela interação da luz com a matéria começam a ser notados certos efeitos ligados à presença de campo intensos, que provocam alterações nas propriedades óticas do material em estudo. Nestes casos, temos uma interação entre um campo elétrico ou magnético intenso e de baixa frequência com a luz, através de um meio material.

Como exemplo de efeitos óticos induzidos por campo elétricos intensos temos a birrefringência induzida por um campo elétrico, conhecida como efeito eletro-ótico [2]. O estudo destes efeitos antecedeu o início da Ótica Não-Linear, analisando a resposta da matéria a campos eletromagnéticos intensos. Outro estudo precedente à Ótica Não-Linear foi o Efeito Raman [2], usado em espectroscopia para a análise da estrutura fina de níveis atômicos.

Para a compreensão de tais efeitos, devemos levar em conta as respostas de ordem superior às respostas lineares que o campo produz no meio. Somente dessa forma podemos explicar como a matéria responde a campo intensos ou campos cuja frequência seja próxima à uma transição atômica.

O estudo dos efeitos óticos não-lineares teve seu grande avanço quando, em 1960, Maiman obteve uma fonte de luz coerente e de grande intensidade através da emissão estimulada de luz por um cristal de Rubi [3]. Surgia assim o LASER (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation), no qual a luz atravessa um meio de ganho, sendo amplificada e realimentada neste meio pelo emprego de uma cavidade ressonante. O resultado é um feixe de luz intensa, com um comprimento de coerência muito maior que o obtido com as fontes térmicas. Esta intensidade permite obter campos elétricos intensos interagindo com a matéria, o que antes era conseguido apenas de forma estática ou em baixas frequências, longe da região do espectro visível ou no infravermelho.

No ano seguinte, a primeira aplicação do laser ao estudo de efeitos óticos não-lineares é realizada na experiência de Franken e seus colaboradores [4]. Nessa experiência, a luz vermelha gerada por um laser de Rubi (694,2 nm) incidia sobre um cristal de quartzo (SiO_2) devidamente orientado em relação ao feixe incidente. A análise espectral do feixe de luz que atravessa o cristal mostrou que, além do feixe intenso de luz vermelha que atravessava a amostra, surgia um outro feixe cujo comprimento de onda era igual à metade do comprimento de onda do feixe gerado pelo laser de Rubi. Este efeito, chamado de Geração de Segundo Harmônico, era conhecido e observado em ondas eletromagnéticas de baixa frequência (de Hz a GHz) quando esta interagia com um sistema cuja resposta não seja linear. Nesta faixa de frequências, este efeito é frequentemente empregado em geração de sinais, telecomunicações, e outros ramos da engenharia.

A partir da experiência de Franken foi possível demonstrar a geração de segundo harmônico na faixa de frequências correspondente à região visível ou ao infravermelho (na faixa de 10^{14} Hz, ou seja, centenas de THz). A resposta não-linear do meio irá gerar uma distorção da onda eletromagnética que o atravessa. Esta distorção em um sinal senoidal puro corresponde a somar de termos de frequências que são múltiplos inteiros da frequência fundamental. Temos assim a geração de

harmônicos da frequência fundamental, com frequências que são múltiplos inteiros da frequência do sinal incidente [5].

Se o meio material apresenta alguma resposta não-linear, a independência de dois campos propagantes no seu interior não é mais válida, e eles passam a interagir. A descrição não-linear da matéria explica a ocorrência dos efeitos estáticos como os efeitos magnetoóticos e eletroóticos [6]. Podemos expandir sua aplicação à mistura de feixes luminosos dentro da matéria, gerando ondas com frequências dadas pela soma e subtração das frequências dos campos incidentes. Entre estes efeitos Óticos Não-Lineares, temos o próprio funcionamento do laser, o qual é explicado por uma descrição da matéria além dos efeitos lineares.

Os efeitos óticos não-lineares podem ser descritos como aqueles nos quais o campo da onda incidente sobre o material é tão intenso que esta acaba por induzir uma alteração no meio. Esta alteração irá provocar, por sua vez, uma alteração na onda propagante.

Para compreender a necessidade do laser para a observação destes fenômenos óticos, devemos analisar a ordem de grandeza dos campos envolvidos na interação. Se não estamos lidando com uma frequência de ressonância do material, podemos considerar que os elétrons do material estão firmemente “presos” ao átomo ou à rede cristalina por um campo da ordem de 10^{10} V/m. A amplitude de uma onda incidente para provocar alguma alteração sensível no material deve corresponder a campos elétricos que se aproximem desta ordem de magnitude. O campo elétrico gerado por um laser pode atingir valores da ordem de 10^8 V/m, se tornando possível observar tais efeitos em medidas sensíveis. Neste caso a observação de efeitos óticos não-lineares fora da ressonância seria impossível com fonte térmicas, as quais atingem um valor máximo da ordem de 10^3 V/m. Tais campos produzirão perturbações muito pequenas no material, e não poderemos ver os efeitos provocados pela distorção eletrônica gerada.

Com campos menos intensos podemos observar efeitos não-lineares envolvendo ressonâncias do material, como é o caso do efeito Raman [6]. Para a observação de outros efeitos, como o efeito Kerr ótico, podemos operar com lasers de menor intensidade, em modo contínuo (CW). O campo gerado por estes lasers não é tão intenso quanto o obtido por lasers pulsados, sendo seus valores na faixa de 10^4 V/m. Porém apenas um feixe gerado por um laser possui a coerência, a estabilidade, e a pequena divergência que permitem seu emprego no estudo de tais efeitos em montagens de execução simples. Por se tratar de uma fonte monocromática, podemos descrever a propagação e a interferência do feixe de forma simples e precisa.

O estudo dos efeitos óticos não-lineares em um material foi fortemente motivado por razões tecnológicas. Envolve, por exemplo, o estudo de candidatos a meio laser [7] para observar seu comportamento em situações de campo intenso no interior de cavidades. Mesmo materiais que compõem a cavidade, como espelhos, janelas e divisores de feixes podem ser estudados nesta situação por estarem situados em regiões de campo extremamente elevado.

Por outro lado, é tentadora a idéia de manipular a luz como manipulamos a corrente elétrica. O desenvolvimento de sistema não-lineares no manuseio da corrente elétrica levou à Eletrônica, levando ao nível tecnológico atual em comunicações, processamento de dados, análise de sinais, alterando de forma profunda desde a pesquisa avançada até o cotidiano do homem. A idéia de empregar sistemas não-lineares para manusear a luz, de mesma forma que manuseamos hoje sinais elétricos levou ao desenvolvimento da Fotônica.

Tal desenvolvimento não seria possível sem a Ótica Não-Linear. Ainda que a idéia de um “computador ótico” seja ainda um fato distante, já é possível empregar a luz para processamento de sinais [8]. O próprio conceito envolvendo o funcionamento do laser, empregando a amplificação de um sinal eletromagnético e realimentação deste amplificador para obter um oscilador tem sua origem na eletrônica. Afinal, o laser funciona como um oscilador operando em frequências muito altas (10^{14} Hz), com um fator de qualidade extremamente alto (de 10^4 a 10^6 [10]), o que significa que este oscilador possui uma largura espectral muito menor que a frequência de ressonância.

A Geração de Harmônicos de diversas ordens amplia a faixa disponível de luz coerente (como a gerada pelo laser) até a região do ultravioleta. O caso mais comum é o do laser de Nd: YAG que, a partir da onda fundamental ($1,064 \mu\text{m}$, ou $1,8 \cdot 10^{14}$ Hz), pode ter sua frequência fundamental duplicada, triplicada ou mesmo quadruplicada [9], atingindo $7,2 \cdot 10^{14}$ Hz (266 nm). Tal efeito é atualmente empregado em lasers comerciais.

As fibras óticas não são necessariamente dispositivos não-lineares, porém podem ser empregadas na geração de pulsos ultra-curtos [10] por efeitos não-lineares. Dopadas com terras raras, permitem compensar o efeito de dispersão em pulsos de luz se propagando em seu interior, formando pulsos estáveis, que não se dispersam. Estes sólitons [11] são possíveis devido à mudança do índice de refração em grandes intensidades de feixe.

Esta mudança de índice de refração, ou a mudança do coeficiente de absorção para grandes intensidades de feixe, permite construir dispositivos de chaveamento ou então dispositivos biestáveis [8], que permitem armazenar informações em “bits”. Temos aqui a idéia básica de um sistema lógico empregando luz.

Além do aspecto tecnológico envolvido, os efeitos óticos não-lineares permitem o estudo da matéria, observando a estrutura fina dos átomos ou o comportamento das populações de átomos em diversos níveis excitados. Esta compreensão da estrutura da matéria fornecida pela ótica não-linear justifica por si o esforço em seu estudo.

O estudo da refração e absorção não-lineares que executamos neste trabalho visa o desenvolvimento de novas técnicas para caracterização de amostras e estudos de tais efeitos. Estes efeitos serão estudados a partir de desenvolvimentos da técnica de Varredura Z [12], empregada por Sheik-Bahae e seus colaboradores no estudo de Sulfeto de Carbono (CS_2), Fluoreto de Bário (BaF_2) e Seleneto de Zinco (ZnSe).

Desenvolvimentos posteriores desta técnica permitiram a análise dos mais diversos materiais, entre eles:

- cristais líquidos [13];
- polímeros e fulerenos (moléculas de C_{60} , também conhecidas como “buckyballs”) [14];
- cristais óticos [15];
- semicondutores [16];
- filtros óticos [17];

A aplicação em cristais óticos está diretamente ligada a sua aplicação como meios laser ou em seu uso na ótica empregando pulsos de alta intensidade (da ordem de kW/cm^2). Quanto aos semicondutores, além da importância do estudo de suas propriedades, temos a possibilidade de integração de componentes óticos. No nosso caso, estudamos o Arseneto de Gálio (GaAs), por ser um meio empregado na construção de lasers semicondutores [18]. Para este material, existem diversas formas de crescimento e fabricação de heteroestruturas (poços quânticos e pontos quânticos ou “quantum dots”) que podem revelar interessantes propriedades óticas. A possibilidade de integração de dispositivos óticos em um cristal semicondutor é estudada como a base tecnológica para processamento ótico de sinais [8]. Tais possibilidades envolvem a caracterização do material e o estudo de suas propriedades óticas.

No Capítulo 2, apresentamos uma introdução à Ótica Não-Linear, baseada nas equações de Maxwell e nas relações constitutivas. A descrição mostrada é semelhante à presente nos livros-texto da área, em especial a referência [19]. Mostramos como pode se obter o tensor de susceptibilidade não-linear a partir da Mecânica Quântica, e como podemos a partir dele chegar aos termos não lineares do índice de refração. Discutimos ainda os efeitos físicos ligados ao efeito Kerr ótico.

No Capítulo 3 mostramos a técnica de Varredura z aplicada à medição do índice de refração não-linear do coeficiente não-linear de absorção. Mostramos ainda extensões da técnica aplicadas a absorvedores saturáveis e a técnica de Varredura Z de Reflexão aplicada a materiais absorptivos.

No Capítulo 4, propomos uma extensão da técnica de Varredura Z de Reflexão, a qual permite aumentar a sensibilidade da medida de termos não-lineares na superfície do material em cerca de 28 vezes, permitindo a realização de medidas que seriam impossíveis sem este aumento, como é o caso dos absorvedores saturáveis, discutidos nesse capítulo.

No Capítulo 5 apresentamos o arranjo experimental empregado nas medidas de efeitos óticos não-lineares em cristais de Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$) e Aluminato de Gadolínio ($\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$). Os resultados são apresentados e discutidos no Capítulo 6, onde comparamos as técnicas de Varredura Z de Transmissão com o novo método proposto de Varredura Z de Reflexão Inclinada.

Apresentamos algumas discussões a respeito do trabalho e propostas para futuros estudos no Capítulo 7.

No Apêndice discutimos o emprego das técnicas apresentadas em semicondutores como o Arseneto de Gálio (GaAs). Apresentamos e discutimos resultados prévios neste material, no estudo de suas propriedades térmicas e óticas.

2. Fundamentos de Ótica Não-Linear

Mencionamos na Introdução que o estudo da Ótica Não-Linear envolve a propagação de ondas eletromagnéticas em um meio. A interação entre o meio e a onda irá gerar alterações tanto na onda quanto no material.

Para descrever este fenômeno físico, necessitamos empregar um formalismo adequado. A propagação de uma onda eletromagnética pode ser descrita partindo-se das equações de Maxwell aplicadas a um meio material. O comportamento do material, por sua vez, pode ser descrito a partir da mecânica quântica, que irá descrever a troca de energia deste com o campo eletromagnético, e como o campo irá introduzir perturbações nos estados do sistema. Estas perturbações irão alterar o meio, e como consequência a onda sofrerá uma alteração com esta interação.

Iremos começar portanto com uma breve descrição das ondas eletromagnéticas em um meio material. Iremos considerá-lo linear em uma primeira abordagem, para em seguida estudarmos as perturbações que a interação com um material não-linear irão causar a este campo.

Estaremos interessados em mostrar como o índice de refração do meio e o coeficiente de absorção são alterados pela onda incidente. O efeito que esta alteração terá no campo será estudada no próximo capítulo, onde descrevemos o método de Varredura Z. Mostraremos a situação específica de um feixe gaussiano monocromático em um meio não-linear.

2.1. Equações de Maxwell

O estudo da eletricidade e do magnetismo levou à formação de uma teoria e um formalismo matemático que integra estes dois campos em um único. Não é possível falar de um campo elétrico sem levar em consideração que as variações deste campo geram um campo magnético. Do mesmo modo, uma variação do campo magnético gera um campo elétrico a ele associado.

O campo eletromagnético pode ser descrito de forma consistente a partir de um conjunto de equações enunciado por Maxwell em 1873, o qual sintetiza a descrição do campo a partir dos trabalhos de Laplace, Gauss, Ampère, Biot e Savart. Maxwell incluiu um novo termo ligando o campo magnético à variação do campo elétrico, o qual foi chamado de corrente de deslocamento,. As equações de Maxwell em um meio material descritas no Sistema Internacional de Unidades podem ser escritas como [20]

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho \quad (2-1)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (2-2)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2-3)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J} \quad (2-4)$$

Nestas equações temos a relação entre o campo elétrico \vec{E} e a indução magnética \vec{B} . \vec{J} é a densidade de corrente devido a presença de cargas livres no meio, e ρ é a densidade de cargas livres em um meio material.

A interação do campo com a matéria é descrita em parte pelas cargas livres (ρ) e seu deslocamento (\vec{J}). Entre o deslocamento das cargas e sua densidade temos uma relação básica de conservação, expressa por

$$\nabla \cdot \vec{J} = -\frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (2-5)$$

O deslocamento da carga depende ainda do campo elétrico e do campo magnético atuando sobre ela, dado pela lei de Lorentz.

Esta não é a única forma de resposta do meio ao campo elétrico aplicado. Ao colocarmos um isolante em um campo elétrico, ocorre a polarização do meio, ainda que não haja cargas livres. Esta polarização irá resultar em uma alteração do campo elétrico dentro do material. Do mesmo modo, o campo magnético irá gerar uma magnetização de um meio, alterando o valor do campo atuando sobre cada molécula, átomo ou unidade constituinte do material.

Para expressar a contribuição da polarização e a magnetização do meio, empregamos o vetor de deslocamento do campo elétrico (\vec{D}) e o vetor de intensidade ou campo magnético (\vec{H}). A dependência destes em função do campo elétrico (\vec{E}) e da indução magnética (\vec{B}) é dada pelas relações constitutivas do material, na forma

$$\vec{D} = \vec{D}(\vec{E}, \vec{B}) \quad (2-6)$$

$$\vec{H} = \vec{H}(\vec{E}, \vec{B}) \quad (2-7)$$

Estas equações descrevem o campo dentro de um meio material. Na forma expressa em (2-6) e (2-7), podemos incluir a dependência com a história do sistema, por efeitos de histerese, além de efeitos não-lineares, a anisotropia do meio, etc. Todos são efeitos relevantes em estudos físicos envolvendo a matéria, mas iremos concentrar a atenção nos efeitos não lineares.

Para campo pouco intensos, de modo a evitar efeitos não-lineares, e em materiais sem histerese (excluindo portanto os ferroelétricos e os ferromagnéticos), podemos expressar as equações constitutivas em função da polarização e da magnetização do meio através de uma forma direta.

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2-8)$$

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0} \vec{B} - \vec{M} \quad (2-9)$$

Neste caso, ϵ_0 é a permissividade e μ_0 a permeabilidade do vácuo. \vec{P} corresponde à polarização do material e \vec{M} a magnetização macroscópica. Estes vetores podem ser entendidos como a densidade dos elementos de dipolo dentro do material para gerar a contribuição macroscópica total. A contribuição de cada elemento de dipolo elétrico (\vec{p}) ou magnético (\vec{m}) no interior do material é somada, resultando em uma contribuição média \vec{P} ou \vec{M} .

A polarização macroscópica \vec{P} depende do campo elétrico aplicado ao material. Esta dependência $\vec{P} = \vec{P}(\vec{E})$ pode ser melhor expressa em termos de uma grandeza tensorial, denominada susceptibilidade elétrica χ . Mantendo a susceptibilidade dependente do campo temos

$$\vec{P}(\vec{E}) = \chi(\vec{E}) \vec{E} \quad (2-10)$$

De modo semelhante para a magnetização temos sua dependência com o a intensidade magnética através da susceptibilidade magnética χ_m do material

$$\vec{M} = \chi_m(\vec{H})\vec{H} \quad (2-11)$$

As susceptibilidades elétrica e magnética, na forma definida acima, representam a dependência da polarização induzida no material pelo campo. Se a intensidade do campo for pequena, os elementos dos tensores podem ser expressos como constantes. Neste caso podemos expressar as relações constitutivas por

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (2-12)$$

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (2-13)$$

onde ϵ é a permissividade elétrica do meio e μ a permeabilidade magnética do meio, ligadas à susceptibilidade do meio. A permeabilidade magnética não difere sensivelmente da permeabilidade do vácuo em materiais que não sejam ferromagnéticos.

A partir das equações de Maxwell, das relações constitutivas e da dependência da corrente com o campo, podemos descrever uma onda eletromagnética se propagando em um meio condutor ou isolante.

Supondo inicialmente um meio isotrópico, a susceptibilidade pode ser apresentada como uma constante no lugar de um tensor. Vamos considerar ainda que o meio apresenta uma atenuação linear α da intensidade em seu interior.

Nestas condições, podemos mostrar que as equações de Maxwell reduzem à forma da equação de onda para o campo elétrico \vec{E} e a indução magnética \vec{B} . Esta equação admite soluções do tipo

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (2-14)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{B}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (2-15)$$

onde o vetor de onda k no material depende do índice de refração. Em um meio isotrópico podemos expressar o módulo do vetor de onda como

$$k = \frac{\omega}{c} n \quad (2-16)$$

Neste caso, c é a velocidade da luz no vácuo e ω é a frequência angular da onda. O índice de refração é dada pela permissividade e pela permeabilidade do meio

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon \mu}{\epsilon_0 \mu_0}} \quad (2-17)$$

Como tratamos geralmente de materiais não magnéticos, a razão μ/μ_0 é aproximadamente igual a 1. Como a permissividade do meio pode envolver um termo real e um termo complexo, o índice de refração passa a ser um número imaginário. Neste caso a parte real n_0 expressa a razão entre a velocidade da onda no vácuo e a velocidade da onda no material. A parte imaginária do índice de refração, conhecida como coeficiente de extinção κ_0 , irá fornecer a atenuação do campo elétrico com a propagação no material. Este coeficiente de extinção é proporcional à atenuação linear da intensidade α

$$\kappa_0 = \frac{c}{2\omega} \alpha \quad (2-18)$$

Em uma aproximação onde a parte imaginária da susceptibilidade é muito menor que a parte real, o termo real do índice de refração e o coeficiente de extinção são dados por

$$n_0 \cong \sqrt{1 + \text{Re}[\chi]} \quad (2-19)$$

$$\kappa_0 \cong \frac{\text{Im}[\chi]}{2n_0} \quad (2-20)$$

Extensões deste tratamento podem ser aplicadas a meios não isotrópicos. Neste caso devemos levar em consideração o caráter tensorial da susceptibilidade definida em (2-10). Uma escolha adequada de coordenadas pode diagonalizar a matriz, facilitando o tratamento.

O tratamento descrito até o momento mostra como podemos partir das equações de Maxwell para chegar à propagação de uma onda eletromagnética no interior de um meio linear. Podemos fazer uma extensão do modelo para abranger meios onde a linearidade não é mais válida, ou seja, a polarização do meio não é mais proporcional ao campo elétrico.

2.2. Polarização não-linear

A polarização do material está relacionada com as equações constitutivas (2-6) e (2-7), e expressa como o material responde para um determinado campo incidente. Neste caso, a relação entre o campo elétrico e a polarização é dado por uma relação tensorial (2-10), onde os elementos do tensor podem depender do campo elétrico se a intensidade da onda propagante for grande o suficiente. Teremos então uma polarização não-linear no material.

Para obtermos a dependência da susceptibilidade com o campo precisamos de um conhecimento detalhado dos níveis eletrônicos do material, através da mecânica quântica. Empregam-se métodos elaborados para obter a interação entre os dipolos induzidos no material e o campo. Discutiremos sobre a aplicabilidade de tais métodos na próxima seção. Mostraremos agora o formalismo geralmente empregado para descrição da polarização não-linear na matéria. Este formalismo é o mesmo empregado em diversos livros-texto, e segue a descrição apresentada na referência [19].

O campo elétrico atuando sobre o material pode ser descrito por uma somatória de diversas componentes

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}, t) \quad (2-21)$$

onde cada componente E_n é dada por uma equação do tipo (2-14), correspondendo a uma solução da equação de onda.

O campo elétrico pode ser expresso pela superposição de n ondas monocromáticas de frequências ω_n . Mantendo a dependência espacial implícita dentro do valor de $E(\omega_n)$, podemos expressar o campo por

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) \quad (2-22)$$

onde a somatória é feita sobre os valores positivos e negativos de n , incluindo desse modo os termos do complexo conjugado do campo, resultando em uma grandeza real para o campo elétrico. Fica claro que por esta expressão podemos representar qualquer onda periódica incidente sobre o material como uma somatória de diversas ondas. Esta série de Fourier pode ser expressa no limite da superposição de infinitas ondas de frequência angular ω_n por uma Transformada de Fourier, o que não alterará as conclusões da descrição apresentada neste capítulo.

A resposta do material, através da polarização \vec{P} , pode ser expressa de modo semelhante, como a superposição de diversos vetores de polarização de diferentes valores de frequência ω_n

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) \quad (2-23)$$

A dependência da polarização com o campo elétrico pode ser expressa através da expansão da polarização em termos de ordem superior. A polarização resultante será a soma da polarização ligada aos efeitos de primeira ordem (lineares) com os termos de ordem superior, correspondentes à polarização não-linear. Temos assim

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}^{(1)}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + \sum_n \vec{P}^{(2)}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + \sum_n \vec{P}^{(3)}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + \dots \quad (2-24)$$

Temos de forma explícita a contribuição dos termos de primeira, segunda e terceira ordem. Dependendo da intensidade envolvida ou do efeito físico analisado devemos levar esta soma a termos de ordem superior à terceira.

A polarização linear pode ser calculada a partir da susceptibilidade de primeira ordem

$$\vec{P}_i^{(1)}(\omega_n) = \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) E_j(\omega_n) \quad (2-25)$$

Ou seja, a polarização é um vetor expresso em primeira ordem pelo produto do vetor campo elétrico incidente com o tensor de susceptibilidade do material. Os índices i e j representam as coordenadas cartesianas, nas quais projetamos as componentes do campo e da polarização. O resultado final deve incluir a soma vetorial das três componentes cartesianas da polarização para cada frequência ω_n .

Pelo termo linear da polarização, vemos que a frequência angular de cada termo da polarização é igual à frequência da onda incidente. Se, ao invés de uma onda monocromática, tivermos uma superposição de diversas ondas, a polarização corresponderá à superposição das polarizações de frequência correspondente a cada termo de onda incidente. Neste caso, a soma dos termos de polarização não gerará nenhuma interferência na propagação de cada onda incidente. Teremos as diversas ondas se propagando de forma independente no material, e o sistema pode ser descrito simplesmente pela propagação de cada componente do campo elétrico de frequência ω_n levando em conta o termo de polarização de mesma frequência.

Neste caso ocorre o princípio da superposição, no qual dois campos incidentes não interferem mutuamente. Podemos ter um aumento da polarização em um dado ponto do material pela contribuição simultânea das duas ondas, mas elas se propagarão sem que ocorra nenhuma troca de energia.

A polarização, no caso de um campo intenso, deve levar em conta os termos não lineares. Teremos um termo de polarização dependente com os termos quadráticos e cúbicos do campo elétrico. Termos de ordem quarta e superiores podem se tornar importantes dependendo do meio físico estudado ou da intensidade do campo aplicado.

A dependência da polarização de segunda ordem com o campo elétrico incidente pode ser expressa empregando um tensor de susceptibilidade de segunda ordem. Neste caso um tensor de dimensão três exprime a dependência da polarização com os termos quadráticos do campo.

$$\vec{P}_i^{(2)}(\omega_n + \omega_m) = \sum_{j,k} \sum_{n,m} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m) \quad (2-26)$$

Nesta expressão, os índices n e m indicam a frequência do campo incidente, e os índices i, j, e k as direções das coordenadas cartesianas. A somatória inclui as comutações dos campos elétricos de frequências diferentes e os casos onde n = m. No caso de uma onda monocromática, teremos as somas envolvendo os termos cruzados de cada vetor do campo elétrico (i, j, k), além dos termos de mesma direção de polarização (i e i, j e j, k e k).

A polarização não é dependente de apenas uma das ondas incidentes, ocorrendo agora uma interdependência dos campos cruzados, gerando termos de polarização de frequência $\omega_n + \omega_m$ e $\omega_n - \omega_m$. Neste caso não podemos mais descrever a polarização pela superposição de diversos termos de frequência igual à de cada termo da onda incidente, sendo necessário incluir os termos cruzados.

Para uma onda monocromática, isto resulta em um termo de polarização que varia com o dobro da frequência incidente, além de um termo estático na polarização. Temos aqui dois efeitos físicos. O primeiro corresponde à geração de segundo harmônico, onde os dipolos do meio, vibrando com frequência 2ω , irão gerar um campo com esta frequência que se soma à onda propagante. O termo estático corresponde à retificação ótica, uma polarização estática no interior do cristal gerada pela incidência de luz, que corresponderá a um campo elétrico DC no seu interior.

Para expressar o termo de terceira ordem da polarização, devemos empregar um tensor para a susceptibilidade que mostre a contribuição dos termos cúbicos correspondentes ao campo incidente. O termo de terceira ordem da polarização é dado por

$$\vec{P}_i^{(3)}(\omega_n + \omega_m + \omega_o) = \sum_{j,k,l} \sum_{m,n,o} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_n + \omega_m + \omega_o, \omega_n, \omega_m, \omega_o) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m) E_l(\omega_o) \quad (2-27)$$

e assim sucessivamente para os termos de ordem superior. Note o aumento da complexidade dos termos envolvidos no tensor de susceptibilidade cada vez que analisamos um termo de ordem superior da polarização. Enquanto que para o termo linear temos uma matriz de 9 elementos, para a segunda ordem a matriz passa a ter 27 elementos e na terceira ordem temos 81 elementos descrevendo a relação da polarização com o campo elétrico incidente.

Note que os termos do tensor de susceptibilidade apresentam como parâmetro um termo que corresponde à soma das frequências envolvidas. Voltando à descrição da polarização como a superposição de diversos termos de polarização de diferentes frequências, mostrado na equação (2-24), vemos que para cada termo da polarização $P(\omega_n)$ temos uma oscilação de frequência ω_n . A oscilação da polarização no tempo representa a oscilação de cada dipolo naquela frequência. Deste modo, cada termo de polarização irá gerar um campo elétrico no interior do material. Se a frequência for igual à do campo incidente, teremos a refração e a atenuação da onda. Por outro lado, se a frequência for diferente da frequência do campo incidente, dada pela soma e subtração das frequências das componentes envolvidas, teremos os efeitos não-lineares. Estes efeitos não lineares correspondentes à soma e subtração das frequências no meio não linear estão expostos na Tabela 1.

Para um feixe monocromático podemos observar que a polarização de terceira ordem irá apresentar termos oscilantes em ω e 3ω , correspondendo aos termos de geração de terceiro harmônico, além da mudança no índice de refração e no coeficiente de absorção do material na frequência fundamental ω . Se tivermos a mistura de três ondas de frequências diferentes em lugar de um feixe monocromático, teremos todas as combinações possíveis de valores de frequência obtidos a partir da soma e subtração das frequências fundamentais.

Com o formalismo aqui apresentado, podemos descrever a polarização do material. A partir desta polarização descrevemos como o campo se propaga no meio, e como a própria interação entre o campo e o meio irá afetar esta propagação. Os termos da susceptibilidade descrevem a interação do campo com a matéria e podem ser calculados a partir da interação dos dipolos com o campo, empregando para isso uma descrição clássica ou quântica.

O cálculo dos termos dos tensores de susceptibilidade é dificultado pelo grande número de termos envolvidos, além da necessidade de se conhecer os autoestados e valores de energia no meio. Quanto ao grande número de termos, as simetrias do meio irão eliminar os termos independentes, que podem chegar a 81 no caso da susceptibilidade de terceira ordem.

Geralmente obtém-se soluções em casos simples, de gases monoatômicos, nos quais os níveis de energia são bem conhecidos e o meio é isotrópico, reduzindo o número de termos independentes. Em cristais as simetrias do meio podem simplificar muito os termos das equações envolvidas. Uma discussão mais detalhada é mostrada na próxima seção.

Voltando às equações para o campo, os termos de ordem superior da polarização irão dar origem a efeitos físicos interessantes, conforme os termos do campo elétrico incidente no material. Temos na Tabela 1 os efeitos físicos observáveis correspondentes aos diversos elementos das matrizes de susceptibilidade. As frequências apresentadas correspondem à frequência do termo de polarização e às frequências das ondas incidentes.

Tabela 1: Efeitos óticos ligados aos termos da susceptibilidade [21], onde ω_σ é a frequência do termo de polarização correspondente, e $\omega_1, \omega_2, \omega_3...$ são as componentes das ondas eletromagnéticas incidentes:

Processo observado	$\omega_\sigma = \sum \omega_n$	$\omega_1, \omega_2, \dots$
<i>Termos de primeira ordem:</i>		
Birrefringência	ω	ω
Absorção linear e Índice de Refração	ω	ω
<i>Termos de segunda ordem:</i>		
Retificação ótica	0	$\omega, -\omega$
Efeito Pockels (efeito eletro-ótico linear)	ω	0, ω
Geração de Segundo Harmônico	2ω	ω, ω
Soma e Subtração de frequências., amplificação e oscilação paramétricas	ω_3	$\omega_1, \pm\omega_2$
<i>Termos de terceira ordem:</i>		
Efeito Kerr d. c. (efeito eletro-ótico quadrático)	ω	0, 0, ω
Geração de Segundo Harmônico por indução d. c.	2ω	0, ω, ω
Geração de Terceiro Harmônico	3ω	ω, ω, ω
Mistura de quatro ondas	ω_4	$\omega_1, \omega_2, \omega_3$
Soma e subtração de Frequências de terceira ordem	ω_3	$\pm\omega_1, \omega_2,$ ω_2
Espalhamento Raman anti-Stokes coerente	ω_4	$\omega_1, \omega_2, -\omega_3$
Efeito Kerr ótico, birrefringência induzida óticamente, modulação de fase, Espalhamento Raman estimulado, espalhamento de Brillouin estimulado	ω_4	$\omega_1, -\omega_2, \omega_3$
Índice de Refração dependente da intensidade, birrefringência auto-induzida, autofocalização, automodulação de fase, modulação cruzada de fase, mistura degenerada de quatro ondas	ω	$\omega, -\omega, \omega$
Absorção, emissão e ionização por dois fótons	ω ω_1	$-\omega, \omega, \omega$ $-\omega_2, \omega_2, \omega_1$
<i>Efeitos de ordem superior:</i>		
Geração de n-ésimo Harmônico	$n \omega$	$\omega, \omega, \dots, \omega$

Absorção de n fótons	$n \omega$	$-\omega, \omega, \dots, \omega$
------------------------	------------	----------------------------------

2.3. Susceptibilidade elétrica

Vimos na seção anterior um formalismo no qual a dependência da polarização não linear com o campo elétrico incidente no material pode ser expressa empregando tensores de susceptibilidade de ordem superior. Este formalismo mostra como surgem os efeitos de geração de múltiplos harmônicos, soma e subtração de ondas, oscilação paramétrica, entre outros efeitos físicos vistos na Tabela 1.

Os tensores de susceptibilidade elétrica podem ser calculados a partir da aplicação da mecânica quântica para o meio em estudo. Podemos assim observar como a susceptibilidade depende de características do material (momentos das transições de dipolo, níveis de energia atômicos, etc.).

Podemos observar ainda as simplificações nas matrizes de susceptibilidade provocadas pelas simetrias do meio no caso de cristais. O cálculo de tais termos é complexo, e por ser executado a partir da perturbação do meio pelo campo elétrico envolve um conhecimento preciso dos autoestados do sistema na ausência de campo (para uma descrição detalhada, veja a referência [23]).

Isto torna sua aplicação difícil em cristais, onde o alargamento dos níveis de energia pela vibração do meio e as perturbações devido a interação entre os átomos aumenta a complexidade dos cálculos. No entanto, para gases atômicos, temos um bom conhecimento dos autoestados e autovalores do sistema. Além disso a interação entre os átomos é fraca, não representando uma perturbação apreciável. Deste modo, a partir da equação de Schrodinger dependente do tempo

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \hat{H}\Psi \quad (2-28)$$

podemos calcular os níveis de energia e o comportamento de todo o sistema. Nem sempre temos uma solução exata. Para um átomo livre submetido a um campo elétrico temos o operador Hamiltoniano dado por

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t) \quad (2-29)$$

O operador V representa a interação de dipolo do átomo com o campo,

$$\hat{V}(t) = -\hat{\mu} \cdot \vec{E}(t) \quad (2-30)$$

e o operador H_0 é o Hamiltoniano do átomo não perturbado, o qual nos dá os níveis de energia e os autoestados do sistema, sendo que estes formam uma base completa. O operador V é tratado como uma perturbação no sistema, e a partir da teoria da perturbação podemos conhecer os novos autovalores e autoestados do sistema [22]. Os termos da susceptibilidade de ordem superior são calculados a partir dos valores observáveis do momento de dipolo $\langle \mu \rangle$. Este processo é descrito em diversos livros de Ótica Não-Linear [21].

Vamos nos ater aqui a um caso clássico, que permitirá ilustrar como a questão da simetria pode simplificar a análise do problema. Note que a análise feita aqui é unidimensional por uma questão de simplicidade. O processo é semelhante se tratarmos de um sistema de três dimensões.

Consideramos um dielétrico no qual incidimos uma onda de frequência ω . Esperamos que a polarização do material seja dada principalmente pelos elétrons mais externos do átomo. Considerando um modelo simples, no qual cada elétron está preso a uma posição por um potencial V , submetido ainda a uma força viscosa e a um campo elétrico incidente, podemos calcular o momento de dipolo de cada átomo dado pela posição x do elétron, a partir da equação de movimento

$$\frac{\partial^2 x(t)}{\partial t^2} + 2\gamma \frac{\partial x(t)}{\partial t} - \frac{\partial V(x)}{\partial x} = -\frac{e}{m} E(t) \quad (2-31)$$

Nesta equação o campo elétrico incidente é dado por $E(t)$, γ é a constante de amortecimento do sistema, e $V(x)$ é o potencial ao qual o elétron está submetido. O deslocamento x descreve a posição do elétron com relação ao repouso.

A polarização do material irá depender do potencial ao qual estes elétrons estão submetidos. Podemos ver [19] que, para um elétron submetido a um potencial quadrático

$$V(x) = \frac{m}{2} \omega_0^2 x^2 \quad (2-32)$$

temos um modelo massa-mola-amortecedor, com frequência característica ω . Este modelo do átomo, ainda que grosseiro, permite estudar as propriedades físicas do sistema.

A polarização de cada átomo é dada pelo produto $-e x(t)$, correspondendo ao momento de dipolo induzido. A polarização do meio corresponde à soma das polarizações de cada átomo por unidade de volume, equivale a $-N e x(t)$, onde N é a densidade atômica.

No caso de um potencial quadrático, a susceptibilidade do material pode ser calculada a partir das equações acima. Lembrando que a polarização linear do material é proporcional ao campo elétrico incidente ($P = \chi E$), podemos calcular a susceptibilidade do meio[19]

$$\chi(\omega) = \frac{N(e^2/m)}{D(\omega)} \quad (2-33)$$

com

$$D(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma \quad (2-34)$$

Se a amplitude da onda incidente for grande, a descrição quadrática não é suficiente para descrever o potencial, e iremos observar termos de ordem superior na equação (2-32).

Se o meio não tiver simetria de inversão, podemos expressar o potencial empregando o termo seguinte da expansão. Neste caso teremos um termo cúbico. O potencial será então dado por

$$V(x) = \frac{m}{2} \omega_0^2 x^2 + \frac{m}{3} a x^3 \quad (2-35)$$

e a polarização deve levar em consideração os termos de ordem superior da susceptibilidade. Empregando a notação da equação (2-26) podemos obter a susceptibilidade de segunda ordem do sistema. Teremos então

$$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) = \frac{N(e^3/m^2)a}{D(\omega_1 + \omega_2)D(\omega_1)D(\omega_2)} \quad (2-36)$$

Se o material for centro simétrico, ou seja, admite uma simetria de inversão, a susceptibilidade de segunda ordem é igual a zero, pois os termos de ordem ímpar do potencial serão nulos. Vamos considerar neste caso o termo seguinte na expansão. Obtemos assim um potencial de forma

$$V(x) = \frac{m}{2} \omega_0^2 x^2 - \frac{m}{4} b x^4 \quad (2-37)$$

Neste caso o termo de ordem superior na susceptibilidade será o de terceira ordem. Teremos portanto

$$\chi^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{N(e^4/m^3)b}{D(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)D(\omega_1)D(\omega_2)D(\omega_3)}$$

(2-38)

Este é um exemplo de como os efeitos de simetria simplificam as relações da susceptibilidade, aplicada a um caso simples. Certos grupos cristalográficos permitem reduzir os 81 termos de uma matriz de susceptibilidade a apenas alguns elementos independentes. No caso de uma simetria cúbica, temos apenas sete termos independentes.

Para uma análise detalhada dos elementos de matriz da susceptibilidade de acordo com os grupo de simetria, sugerimos as referências listadas na bibliografia, em especial, as referências [6, 19, 23].

Vimos deste modo como os efeitos óticos não-lineares podem ser descritos através da polarização não-linear, e esta através das matrizes de susceptibilidade não-linear. Neste trabalho, estamos interessados no estudo dos efeitos óticos não-lineares ligados ao índice de refração, tanto na parte dispersiva quanto na absorviva. Cada um dos efeitos óticos não-lineares mencionados na Tabela 1 fornece uma ampla área de estudo em diversos materiais.

Vemos na descrição empregada para a susceptibilidade não-linear que apenas os termos de ordem ímpar geram mudanças no índice de refração do material para uma onda monocromática na ausência de campos estáticos. Isto é causado por serem os únicos nos quais a soma de frequência de n termos de uma onda monocromática resulta em uma resposta de frequência ω na polarização. Este efeito, chamado de Efeito Kerr ótico, é o tema descrito na próxima seção.

Vale lembrar a distinção entre o efeito Kerr ótico e o efeito Kerr d. c., onde um campo estático gera a birrefringência do material, induzindo mudanças em seu índice de refração.

2.4. Efeitos óticos não-lineares

Vimos como podemos expressar a polarização não-linear de um material através de tensores de susceptibilidade relacionados com os produtos dos termos dos campos incidentes. Vimos ainda que em materiais centrossimétricos os termos de susceptibilidade de ordem par serão nulos, pois o potencial a que estão sujeitos os elétrons é simétrico. Generalizando, considere os termos pares da polarização dados por

$$P^{(2n)}(t) = \chi^{(2n)} E^{2n}(t)$$

(2-39)

Se o meio for simétrico, a inversão do campo deve corresponder a uma inversão na polarização. Note no entanto que substituindo $E(t)$ por $-E(t)$, a polarização do meio não sofrerá a inversão. Para que a condição de simetria seja válida, devemos ter necessariamente $\chi^{(2n)} = 0$.

Entre os diversos efeitos óticos não-lineares mostrados na Tabela 1, temos a mudança do índice de refração da onda incidente. Tal mudança tem origem nos termos de ordem ímpar da susceptibilidade pois, como vimos na seção anterior, a frequência associada a cada termo da polarização de ordem n é dada pela soma da frequência de cada termo empregado no cálculo da polarização, conforme vimos no formalismo das equações (2-24) a (2-27). Se temos uma onda monocromática incidindo sobre o material, teremos para os termos de polarização de ordem par a geração de polarizações de frequências $0, 2\omega, 4\omega, 6\omega, \dots$. Já para os termos de ordem ímpar ocorrerá a geração de termos de polarização de ordem $\omega, 3\omega, 5\omega, \dots$. Temos portanto que apenas os termos de ordem ímpar geram mudanças no índice de refração, pois são os únicos que vão gerar termos de polarização da mesma frequência da onda incidente. Os termos de ordem superior correspondem à geração de harmônicos de ordem superior à fundamental. Serão ondas eletromagnéticas de frequência diferente da fundamental, e a polarização oscilando nestas frequências não contribui para o índice de refração na frequência fundamental ω .

Considere uma onda monocromática de frequência ω se propagando em um meio não-linear. Por simplicidade, consideramos este meio como sendo centrossimétrico, e analisaremos a polarização não linear apenas do termo de susceptibilidade de ordem 3. O termo não linear da polarização pode ser expresso por

$$P^{NL}(\omega) = 3\chi^{(3)}(\omega)|E(\omega)|^2 E(\omega) \quad (2-40)$$

como podemos ver a partir da equação (2-27). O fator 3 corresponde à soma das três comutações da onda incidente. Por considerarmos o meio isotrópico, empregaremos uma constante multiplicativa no lugar do tensor de susceptibilidade.

A polarização total neste frequência é dada pela soma do termo linear e do termo não-linear da polarização

$$P^{TOTAL}(\omega) = \chi^{(1)}E(\omega) + 3\chi^{(3)}(\omega)|E(\omega)|^2 E(\omega) \quad (2-41)$$

Podemos ver a partir da equação acima que a susceptibilidade do material pode ser expressa como uma função do campo elétrico incidente. Teremos assim

$$\chi_{\text{ef}}(\omega) = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}(\omega)|E(\omega)|^2 \quad (2-42)$$

O índice de refração de um material pode ser calculado a partir da susceptibilidade do material, como vimos na equação (2-19). Teremos assim

$$n^2 = 1 + 4\pi\chi_{\text{ef}} \quad (\text{esu}) \quad (2-43)$$

se expressarmos a susceptibilidade em cgs (esu). No Sistema Internacional, a equação (2-43) se mantém, com exceção do fator 4π diante da susceptibilidade.

Calculando a dependência do índice de refração n em função do campo teremos

$$n = n_0 + n_2''|E(\omega)|^2 \quad (2-44)$$

onde mantivemos na expansão empregada no cálculo de n apenas os termos do campo elétrico até a segunda ordem. O valor do índice de refração linear é dado por

$$n_0 = \sqrt{1 + 4\pi\chi^{(1)}} \quad (\text{esu}) \quad (2-45)$$

e o termo não linear para o campo elétrico é dado por

$$n_2'' = \frac{6\pi\chi^{(3)}}{n_0} \quad (\text{esu}) \quad (2-46)$$

Temos assim a relação entre o índice de refração não-linear e a susceptibilidade de terceira ordem. Podemos realizar cálculos semelhantes para observar o índice de refração não linear em termos de ordem superior a dois, como n_4 . Neste caso podemos realizar um procedimento semelhante ligando este índice ao termo $\chi^{(5)}$ da susceptibilidade.

Ao realizarmos um experimento, temos geralmente medidas da intensidade do campo, e não da amplitude do campo elétrico em si. Esta intensidade corresponde ao fluxo de energia por unidade de área em um intervalo de tempo. Lembrando que o fluxo de energia por unidade de tempo em uma dada região do espaço para uma onda eletromagnética é dada por [20]

$$I = \frac{n_0 c}{2\pi} |E(\omega)|^2 \quad (2-47)$$

podemos definir o índice de refração não-linear pela intensidade

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (2-48)$$

Por esta nova definição o valor de n_2 em função da susceptibilidade é dado por

$$n_2 = \frac{12\pi^2 \chi^{(3)}}{n_0^2 c} \text{ (esu)} \quad (2-49)$$

A unidade usual para n_2 é (cm^2/W), enquanto que o valor de $\chi^{(3)}$ é dado geralmente no sistema cgs (esu). Efetuando a conversão de unidades teremos

$$n_2 \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \right) = \frac{0,0395}{n_0^2} \chi^{(3)} \text{ (esu)} \quad (2-50)$$

ou ainda

$$n_2 \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \right) = \frac{4,19 \times 10^{-3}}{n_0} n_2'' \text{ (esu)} \quad (2-51)$$

Esta relação entre termos provoca alguma confusão. Algumas referências adotam o sistema esu, enquanto outras adotam unidades de cm^2/W . Ainda que possamos considerar o primeiro como um sistema mais lógico, no qual a normalização das constantes dielétricas do vácuo tornam as expressões mais simples, no cotidiano empregamos geralmente unidades do SI. Neste caso, medimos a potência de lasers em W, intensidades em W/cm^2 e portanto fica muito mais fácil pensarmos no índice de refração não-linear em termos de cm^2/W .

Temos diversos processos que podem provocar mudanças no índice de refração com a intensidade incidente. Alguns destes processos envolvem efeitos rápidos, enquanto outros ocorrem em escalas de tempo maiores. A Tabela 2 mostra as origens físicas do efeito, a ordem de grandeza e a escala de tempo envolvida. Mostraremos a seguir uma breve descrição destes efeitos.

Tabela 2 Valores típicos de n_2 , escalas de tempo e origens físicas do efeito [19].

Mecanismo	n_2 (cm^2/W)	$\chi_{1111}^{(3)}$ (esu)	Tempo de resposta (s)
Polarização eletrônica	10^{-16}	10^{-14}	10^{-15}
Reorientação molecular	10^{-14}	10^{-12}	10^{-12}
Eletrostricção	10^{-14}	10^{-12}	10^{-9}
Absorção atômica saturada	10^{-10}	10^{-8}	10^{-8}
Efeitos térmicos	10^{-6}	10^{-4}	10^{-3}

2.4.1. Polarização eletrônica

A mudança do índice de refração por polarização eletrônica ocorre quando a frequência da onda incidente está fora da ressonância do material, mas tem uma amplitude grande o suficiente para distorcer a distribuição eletrônica no material. Neste caso, a origem do índice de refração não-linear está na redistribuição espacial da nuvem eletrônica destes elétrons fortemente ligados. Este efeito ocorre em todos os materiais dielétricos, especialmente se a energia de banda for grande o suficiente para impedir a excitação dos elétrons do átomo para níveis de condução.

Em uma descrição qualitativa, o campo intenso irá afastar o elétron de sua posição de repouso. A amplitude da oscilação fará com que o potencial no qual o elétron se situa não possa mais ser expresso de forma adequada por um modelo quadrático. Devemos levar em consideração termos de ordem superior. Este caso será semelhante ao descrito nas equações (2-37) e (2-38).

Vamos considerar o caso em que o sistema formado pelo elétron e pelo núcleo atômico está fora da ressonância, pois neste caso teríamos a situação correspondente à absorção atômica e a descrição clássica apresentada em (2-38) é totalmente inadequada.

Neste caso podemos estimar a ordem de grandeza do efeito não linear a partir da equação (2-38). Considere que o campo elétrico incidente possui uma frequência ω_0 , em um meio com uma densidade atômica N . O parâmetro b empregado na equação (2-38) pode ser associado às dimensões atômicas. Desse modo, tomando $b = (\omega_0 d)^{-2}$, onde d é a dimensão do raio da órbita eletrônica (da ordem do raio de Bohr). Neste caso temos:

$$n_2 \approx \frac{Ne^4}{m^3 \omega_0^6 d^2} 10^{-2} \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \right)$$

(2-52)

Valores típicos da densidade atômica ($N = 4 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$), da dimensão atômica ($d = 3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$) e da frequência de ressonância ($\omega_0 = 10^{16} \text{ rad/s}$) nos dão um valor de $n_2 \cong 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$. Teremos um valor de n_2 baixo, comparado com os outros efeitos, porém com um tempo de resposta muito rápido, uma vez que envolve a perturbação da distribuição eletrônica. Neste caso uma estimativa do tempo que leva para que ocorra a distorção no átomo, a partir do princípio da incerteza, nos dá um tempo da ordem do período atômico, ou seja, da ordem de 10^{-16} s

2.4.2. Reorientação molecular

Em líquidos formados por molécula alongadas, a polarizabilidade da molécula é anisotrópica. Neste caso temos um forte efeito não-linear provocado pelo realinhamento das moléculas polarizadas com o campo. Este realinhamento irá mudar o índice de refração do material, além de induzir a birrefringência no mesmo.

Considere por exemplo a molécula de Bissulfeto de Carbono (CS_2). Ela possui uma forma alongada, portanto podemos esperar que a polarizabilidade no sentido mais longo da molécula seja maior que a polarizabilidade no sentido transversal, conforme vemos na Figura 2.1.

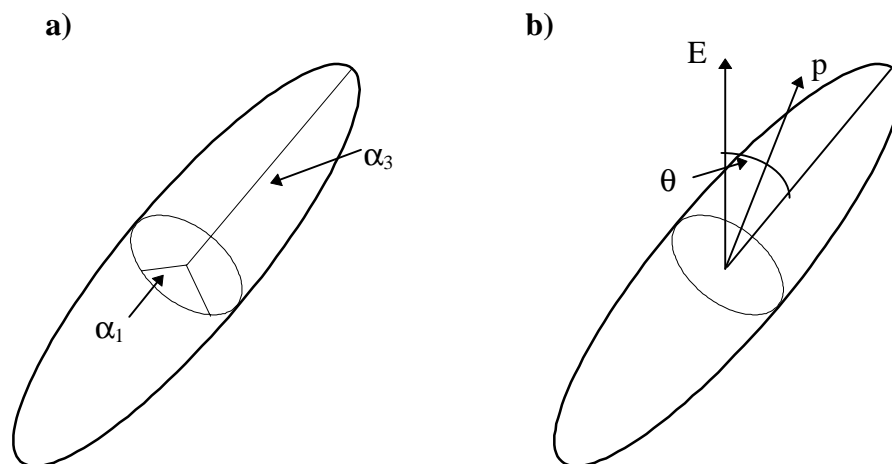


Figura 2.1: a) Diferença entre a polarizabilidade longitudinal e a transversal em uma molécula apolar alongada. b) Direção da polarização p da molécula, induzida por um campo elétrico externo E , formando um ângulo θ com o sentido longitudinal da molécula.

A polarizabilidade de uma molécula relaciona o dipolo induzido com o campo elétrico presente. Deste modo a componente longitudinal do dipolo induzido será dada por

$$p_3 = \alpha_3 E_3$$

(2-53)

e a componente transversal

$$p_1 = \alpha_1 E_1 \quad (2-54)$$

onde o termo E_i é a projeção do campo elétrico na direção transversal ou longitudinal à molécula.

Um campo elétrico incidente irá produzir uma reorientação da molécula para a posição de mínima energia potencial. Ou seja, o dipolo induzido se alinha ao campo.

$$U = -\frac{1}{2} \alpha_1 E^2 - \frac{1}{2} (\alpha_3 - \alpha_1) E^2 \cos^2 \theta \quad (2-55)$$

Se o campo for oscilante, no caso uma onda monocromática incidente, o dipolo induzido sofrerá uma oscilação, e a equação (2-55) passa a valer para a média quadrática do campo $|E|^2$.

Neste caso pode-se mostrar que o índice de refração não-linear provocado pelo campo é dado por [19]

$$n_2 = \frac{16\pi^2 N}{45n_0^2 c} \left(\frac{n_0^2 + 2}{3} \right)^4 \frac{(\alpha_3 - \alpha_1)^2}{kT} \quad (2-56)$$

Valores típicos para o Sulfeto de Carbono são da ordem de $10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$.

2.4.3. Eletrostricção

O gradiente de um campo elétrico intenso produz uma força em um dipolo, seja ele induzido ou permanente. Esta força é dada por

$$\bar{F} = \frac{1}{2} \alpha \nabla(E^2) \quad (2-57)$$

onde α é a polarizabilidade da molécula. Esta força atuará nas moléculas dirigindo-as no sentido no qual o campo seja mais intenso. Como resultado, temos um aumento da densidade do meio em um ponto onde a amplitude do campo é maior.

Uma onda cuja intensidade não seja uniforme, incidindo em um fluido, irá produzir esta mudança de densidade na região onde ela for mais intensa. A susceptibilidade não-linear de um meio provocada por eletrostricção é dada por [19]

$$\chi^{(3)}(\omega) = \frac{1}{48\pi^2} C_T \gamma_e^2 \quad (2-58)$$

onde C_T é a compressibilidade do material e γ_e é a constante eletrostrictiva do material, cujo valor é da ordem de 1.

Este efeito é geralmente menor que os outros efeitos óticos não-lineares presentes em um líquido, como a reorientação molecular ou os efeitos térmicos, tornando-se importante no caso do espalhamento de Brillouin estimulado [21].

2.4.4. Efeitos térmicos

O aquecimento de um meio pode provocar a mudança do índice de refração. Em um fluido, o aquecimento provocado pela absorção da luz produz uma diminuição da densidade na região. Com isso, esperamos uma redução do índice de refração induzida pelo próprio aquecimento gerado pela onda incidente.

Em sólidos a mudança do índice de refração também pode ser provocada pela mudança da densidade do meio com a dilatação do material [24]. No entanto, outros fatores podem estar presentes, como o efeito provocado pela tensão mecânica (“stress”) a que é submetida uma região aquecida no interior do cristal, enquanto que a região em torno a área onde incide um feixe se mantém em uma temperatura mais baixa. Esta pressão pode alterar a polarizabilidade dos átomos no interior do cristal. Neste caso temos uma alteração dos parâmetros óticos por fatores mecânicos. A luz, portanto, age de forma indireta, provocando o aquecimento do material, e as tensões a que o meio é submetido irão provocar a mudança no índice de refração.

Outra forma de alteração do índice de refração do meio com a temperatura se origina na alteração da polarizabilidade atômica provocada pelo aquecimento [25]. A contribuição de todos estes fatores acabam levando a uma alteração do índice de refração com a incidência de luz sobre o material, decorrente do aquecimento pela absorção da luz no meio.

Valores típicos da variação do índice de refração com a temperatura (dn/dT) estão em torno de $-3,65 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ [25] para o Cloreto de Sódio (NaCl), $18,7 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ [25] para o Arseneto de Gálio (GaAs), e $-8 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ [26] para o Bissulfeto de Carbono (CS₂). Observa-se que geralmente os líquidos (CS₂) e os sólidos iônicos (NaCl) apresentam valores negativos de dn/dT , enquanto que os sólidos covalentes possuem valores positivos. Pode se esperar que enquanto nos primeiros temos uma grande contribuição da redução da densidade do meio, a qual reduz o índice de

refração, para os cristais covalentes a mudança de polarizabilidade se sobrepõe a este efeito.

2.4.5. Absorção ressonante e absorvedores saturáveis

Em certos materiais, o índice de refração não-linear ocorre devido a população de estados excitados do meio. É o caso de materiais onde a onda incidente corresponda a uma das ressonâncias do material provocando a população dos níveis excitados. Neste caso a resposta do meio será diferente da obtida para uma população no nível mais baixo de energia.

Teremos nestes casos uma alteração na susceptibilidade do material. Em uma descrição qualitativa, os elétrons mais externos de um átomo, em um nível mais excitado, estarão mais afastados do núcleo, e portanto sujeitos a uma força menor atuando sobre eles. Neste caso, a polarizabilidade do átomo aumenta quando este é excitado para um nível superior. Este aumento na polarizabilidade do átomo resulta em uma alteração da polarização do material como um todo. Como a população de um estado excitado irá depender da intensidade de luz incidente, a susceptibilidade passará a depender da intensidade.

Neste trabalho, mostraremos o comportamento em dois absorvedores saturáveis dopados com cromo: o Aluminato de Gadolínio (GdAlO_3) e o Rubi (Al_2O_3). Em materiais deste tipo, o efeito não-linear origina-se da população do estado excitado dos íons de cromo (Cr^{+3}), no caso o estado ${}^2\text{E}$, que apresenta uma susceptibilidade diferente do estado fundamental ${}^4\text{A}_2$.

Iremos simplificar a descrição do átomo de Cromo para um modelo de átomo de três níveis, como mostrado na Figura 2.2. Iremos considerar um feixe de bombeio de intensidade I , ressonante com a transição ${}^4\text{A}_2 \rightarrow {}^4\text{T}_1$ (ou ${}^4\text{A}_2 \rightarrow {}^4\text{T}_2$), excitando os átomos do nível fundamental para o nível superior. Consideramos ainda um tempo de decaimento τ_0 entre o nível metaestável ${}^2\text{E}$ e o nível fundamental ${}^4\text{A}_2$.

Se o tempo de decaimento no nível mais excitado para o nível metaestável ${}^2\text{E}$ for desprezível comparada com τ_0 , podemos partir das equações de taxa [10] da população dos estados para chegarmos a uma equação que descreva a população nos níveis do átomo.

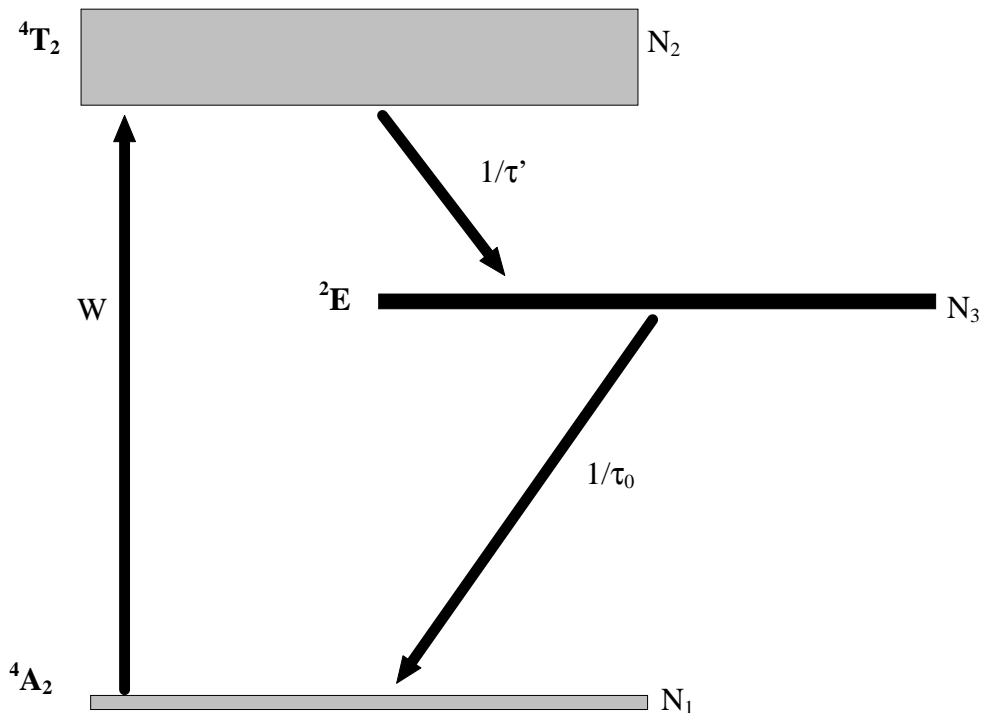


Figura 2.2 Níveis do cromo, mostrando as transições importantes entre os níveis. Na aproximação empregada desprezamos a taxa de decaimento entre os níveis ${}^4T_1 \rightarrow {}^4A_2$, por ser muito menor que a taxa da transição ${}^4T_1 \rightarrow {}^2E$. W é a taxa de bombeio do nível fundamental para o excitado, e $\tau' \ll \tau_0$.

Partindo destas equações de taxa podemos descrever a população no nível metaestável como função da intensidade de bombeio incidente

$$N_3 = N_0 \frac{I/I_s}{1 + I/I_s} (1 - e^{-t/\tau}) \quad (2-59)$$

onde N_0 é a população total ($N_0 = N_1 + N_3$) e I_s é a intensidade de saturação, dependente da seção de choque do íon e do tempo de decaimento da transição. A constante de tempo τ irá depender da intensidade e do tempo de vida do estado metaestável τ_0

$$\tau = \frac{\tau_0}{1 + I/I_s} \quad (2-60)$$

Neste modelo a intensidade de saturação envolve a idéia física da intensidade para a qual a população do nível metaestável é igual à população do nível fundamental. Para intensidades superiores a I_s teremos, neste modelo, a inversão de população. Esta inversão de população é uma condição para que o material possa ser

usado como meio laser.

A intensidade de saturação é proporcional à taxa de bombeio W entre o estado fundamental e o excitado. Esta, por sua vez, é proporcional à seção de choque do íon σ , a qual nos dá a probabilidade de absorção do fóton incidente pelo íon, e inversamente proporcional à energia do fóton. A taxa de bombeio é dada por

$$W = \frac{\sigma I}{\hbar \omega} \quad (2-61)$$

Podemos assim obter a intensidade de saturação em função da seção de choque, da energia do fóton e do tempo de vida do estado metaestável

$$I_s = \frac{\hbar \omega}{\sigma \tau_0} \quad (2-62)$$

Podemos desse modo obter a população dos estados do átomo de três níveis. Procedimentos semelhantes podem ser empregados em modelos de dois ou quatro níveis, partindo sempre da equação de taxa no átomo para obter a evolução temporal de população no tempo para uma dada intensidade de bombeio incidente.

Conhecendo a população dos estados excitados no meio, podemos obter a mudança do índice de refração do material provocada pela alteração na população. Note que este caso difere da polarização eletrônica, pois naquele caso consideramos que o átomo se mantinha no mesmo nível de energia, e o campo incidente gera uma perturbação pequena na distribuição eletrônica. Neste caso, o feixe incidente é absorvido pelo material, estando próximo a uma das ressonâncias do meio. A população dos níveis excitados irá gerar a alteração da susceptibilidade, como veremos a seguir.

A partir da população do estado metaestável, podemos calcular a contribuição da polarizabilidade microscópica dos íons para a susceptibilidade do meio, e portanto para o índice de refração do material. Para isso empregamos a equação de Claussius-Mosoti [20], na qual leva-se em conta o campo elétrico local sobre o átomo no cálculo da susceptibilidade, incluindo aí a contribuição dada pela polarização dos átomos vizinhos. Neste caso temos

$$\frac{3}{4\pi} \frac{n^2 - 1}{n^2 - 2} = \frac{N_1 \chi_1 + N_3 \chi_3}{N_0} \quad (2-63)$$

onde N_1 e N_3 são respectivamente a população do nível fundamental e do nível metaestável. χ_1 e χ_3 são as susceptibilidades dos íons de cromo no meio. N_0 é a população total.

Partindo da população do nível metaestável em função da intensidade (2-59), podemos obter a dependência do índice de refração com intensidade incidente sobre o material.

Neste caso pode-se mostrar [27] que a dependência do índice de refração do material com a intensidade incidente será da forma

$$n = n_0 + n_2 \frac{I}{1 + I/I_s} (1 - e^{-I/\tau}) \quad (2-64)$$

onde o termo não-linear da refração é dado por

$$n_2 = \frac{2\pi}{9} \frac{(n_0^2 + 2)^2}{n_0} \frac{(\chi_3 - \chi_1)}{I_s} \quad (2-65)$$

e n_0 é o índice de refração do material para feixes pouco intensos, quando a maior parte dos átomos está no nível fundamental.

Como em um material absorptivo o índice de refração é um número complexo, de modo que temos incluído nele a atenuação do campo à medida que este se propaga no material. Expressando a dependência da absorção da intensidade do feixe com a intensidade incidente, temos para o coeficiente de absorção.

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 \frac{I}{1 + I/I_s} (1 - e^{-I/\tau}) \quad (2-66)$$

onde temos o termo linear da absorção α_0 e o termo não linear α_2 . Podemos esperar que nos absorvedores saturáveis o termo não-linear da absorção seja negativo, pois a diminuição da população no estado fundamental irá reduzir as chances de absorção de cada fóton por um átomo neste estado.

O efeito não-linear neste caso apresenta algumas diferenças com relação aos outros efeitos mostrados nas seções anteriores. Neste caso o termo não-linear dependerá do material e do dopante inserido nele. Dependendo do dopante, podemos ter valores de n_2 da ordem de $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$. Uma não linearidade tão grande, quando comparada aos outros efeitos, é provocada pela grande diferença de polarizabilidade entre os estados fundamental e excitado. Outra característica é a intensidade de saturação relativamente baixa. Os outros efeitos, como a reorientação molecular e a eletrostricção, estão sujeitos a saturação na mudança do índice de refração. No caso de reorientação molecular, não aumentaremos a birrefringência do meio além do limite no qual todas as moléculas estejam polarizadas. No entanto, tal efeito só se manifestaria no caso de uma intensidade extremamente alta (10^{22} W/cm^2 [19]),

várias ordens de grandeza acima da intensidade obtida por um laser (10^{18} W/cm²), enquanto que valores típicos de I_S para cristais dopados com cromo estão na faixa de 10^3 W/cm².

Vimos neste capítulo as causas físicas da mudança do índice de refração na presença de um feixe intenso. Mostramos como podemos expressar a dependência da polarização com a amplitude do campo incidente, e como esta dependência origina efeitos de geração de segundo harmônico, soma de frequências, retificação ótica, entre outros efeitos não-lineares.

Iremos mostrar a seguir como a polarização não-linear, provocada pelo campo, acaba por alterar a propagação do campo. Este efeito é conhecido como autoação (“self-action”), onde através de um meio material o campo acaba por gerar uma alteração não-linear em sua propagação que é diferente do caso linear de absorção da onda ou refração da onda incidente. Tais efeitos dependerão da intensidade da onda.

Analisaremos o caso de uma onda monocromática se propagando em meios onde temos o efeito Kerr ótico, ou seja, a mudança do índice de refração pela onda incidente. Tais efeitos darão origem a autofocalização, a qual é empregada na medida do temo não linear na técnica desenvolvida por Sheik-Bahae em 1989 [12], conhecida como Varredura-Z (ou Z-Scan).

3. Medida de não-linearidades óticas pelo método de Varredura Z

Apresentamos nos capítulos anteriores a origem dos efeitos óticos não-lineares. Mostramos como a polarização de um meio responde a um campo elétrico intenso, ou a uma onda ressonante com uma transição atômica do material. Ficou claro que nestes casos uma descrição linear da polarização em função do campo elétrico é insuficiente para descrever os fenômenos físicos na interação entre o campo e a matéria.

A polarização foi descrita por uma transformação linear do campo elétrico através de um tensor, denominado de tensor de susceptibilidade elétrica (χ). No caso de um campo intenso ou ressonante com transições entre níveis de energia do material surgem efeitos físicos não explicados por uma transformação linear.

Expandindo a susceptibilidade em termos de ordem superior, expressando no tensor χ a dependência com o campo elétrico, esperamos descrever de forma correta a polarização do material em função do campo. Conseguimos assim descrever como uma onda eletromagnética atua sobre o material, alterando suas características óticas. Descreveremos neste capítulo como esta alteração das características óticas do material irá provocar uma alteração na onda propagante.

Entre os efeitos físicos provocados pela mudança do índice de refração do material com a intensidade do campo incidente, temos a automodulação de fase [27] da onda que se propaga no meio. Esta variação da fase da onda mostra claramente como a não-linearidade da polarização, surgindo a partir de um campo intenso, acaba por alterar o campo. O resultado é um efeito de auto-ação, onde o campo irá alterar sua propagação pela interação não-linear com o material. Note que o campo interage linearmente no material, levando aos efeitos de refração e absorção. Porém apenas os efeitos não-lineares irão provocar uma alteração dependente da intensidade.

A modulação da fase do campo incidente acaba por criar um efeito conhecido por autofocalização do feixe. Considere um feixe de laser incidente sobre a amostra. O feixe, considerando que o modo predominante é o gaussiano (TEM_{00}) como um caso geral, será mais intenso no centro, enfraquecendo a medida que nos afastamos do eixo de simetria.

Para uma lâmina uniforme de material esperamos que o feixe se propague através da lâmina, emergindo pela outra face sem qualquer distorção em sua fase ou amplitude. No caso de um material onde o índice de refração sofra um aumento com a intensidade da luz, a mudança do índice de refração provoca um atraso na propagação do centro do feixe, comparado à periferia do mesmo.

Este aumento do caminho ótico para o centro do feixe fará com que ele saia do material com uma distorção de fase muito semelhante a que ocorreria com uma

lente convergente (Figura 3.1). É como se o feixe criasse no material uma lente convergente, provocando uma alteração da fase e fazendo com que ele passe a convergir.

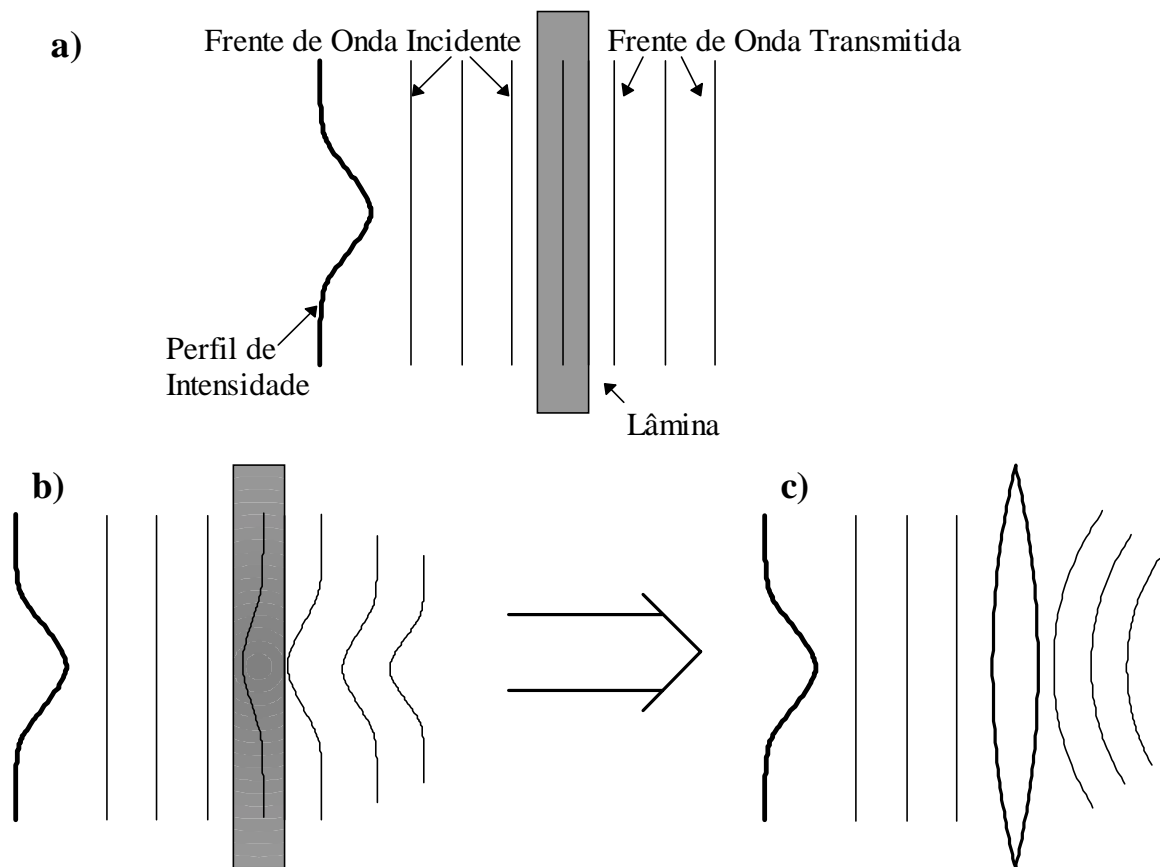


Figura 3.1-Autofocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano em um material com índice de refração independente da intensidade. b) Transmissão de um feixe gaussiano por um material no qual o índice de refração aumenta com a intensidade. c) O aumento do caminho óptico para o centro do feixe é semelhante ao de uma lente convergente.

O efeito de autofocalização pode ser um fator limitante em sistemas de alta potência, pois o feixe que se propaga no material pode ser continuamente focalizado, concentrando o feixe e aumentando a intensidade. Este aumento de intensidade pode danificar o material [6].

Pode ocorrer ainda o auto-aprisionamento do feixe, onde a mudança do índice de refração no material irá compensar a divergência do feixe, e este passa a se propagar sem se divergir. O resultado é semelhante ao de um feixe em uma fibra ótica, com a diferença que o material no qual há a propagação é uniforme, e o que irá produzir a variação do índice de refração é o próprio feixe propagante.

Se um material com uma variação positiva do índice de refração atua como uma lente convergente, um material no qual o índice de refração diminui com o

aumento da intensidade irá atuar como uma lente divergente.

Considere agora um feixe gaussiano incidente em um meio que apresenta uma redução do índice de refração com o aumento da intensidade, como é o caso dos efeitos térmicos em líquidos. No centro do feixe, a velocidade de propagação será maior, e ele irá se adiantar com relação às bordas. Este avanço da frente de onda no centro do feixe será semelhante à ação de uma lente divergente (Figura 3.2). Tal efeito é conhecido como autodefocalização, sendo muito comum observarmos casos onde o aquecimento do material, como uma cela contendo um líquido, irá reduzir a densidade do material no centro do feixe e com isso reduzir o índice de refração. Este efeito de autodefocalização térmica pode ser empregado em espectroscopia, medindo a absorção em materiais de alta transparência [28]

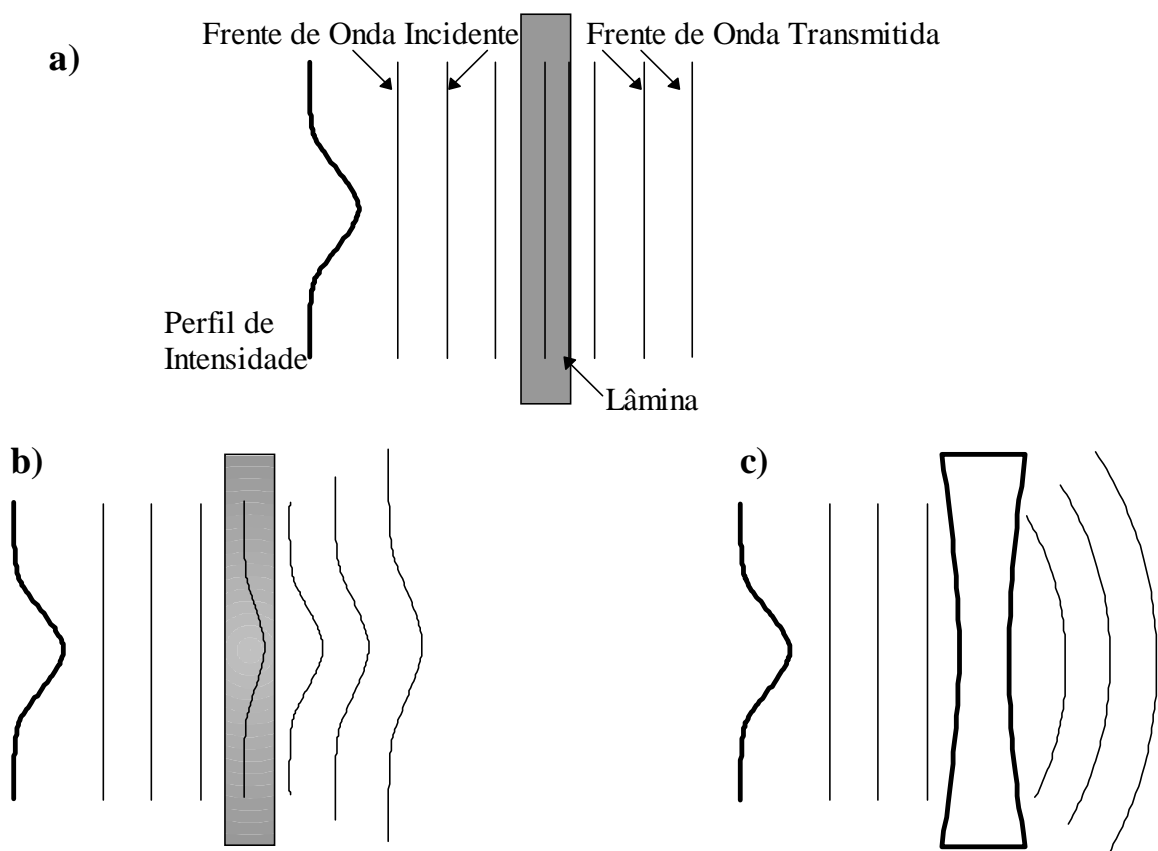


Figura 3.2-Autodefocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano em um material com índice de refração independente da intensidade. b) Transmissão de um feixe gaussiano por um material no qual o índice de refração diminui com a intensidade. c) A redução do caminho óptico para o centro do feixe é semelhante à de uma lente divergente.

Estes efeitos de auto-ação do feixe (autofocalização e autodefocalização) podem ser empregados para medir a variação do índice de refração do material com a intensidade. Uma técnica proposta em 1989 [12] por M. Sheik-Bahae e colaboradores baseia-se nestes efeitos para realizar a medida de n_2 .

Diversos métodos eram até então empregados na medida dos efeitos óticos não-lineares. Alguns empregavam técnicas interferométricas para realizar tais medidas, como por exemplo a interferometria não-linear [29,30], mistura degenerada de quatro ondas [31] ou mistura quase degenerada de três ondas [32]. Tais métodos apresentam alta sensibilidade mas com a necessidade de montagens complexas, empregando muitos elementos (espelhos, divisores de feixe, lentes). Requerem portanto um alinhamento cuidadoso, especialmente por empregarem vários feixes na medida. Outros métodos, como a rotação de eclipse [33] e medidas de distorção de feixe [34] empregam montagens mais simples que as interferométricas, porém carecem de sensibilidade.

O método de Varredura Z de transmissão foi rapidamente aceito e empregado para estas medições em uma grande variedade de materiais. Inicialmente foram estudados efeitos térmicos e de reorientação molecular em bissulfeto de carbono (CS_2) e não-linearidades óticas em fluoreto de magnésio (MgF_2) e bário (BaF_2) [35]. Esta mesma técnica já foi empregada para estudo de cristais líquidos nemáticos [13], diversos materiais semicondutores em energia abaixo da energia de banda (E_G) do material [16], em cristais óticos como Rubi, Alexandrita e Aluminato de Gadolínio [36], polímeros e macromoléculas de carbono (fulerenos) [14]. O uso de efeitos de auto-ação, nos quais a técnica se baseia, foram empregados até mesmo em estudos de compostos orgânicos e chá chinês [37].

Uma variedade tão grande de materiais estudados deve-se à facilidade de implementação da técnica no estudo de materiais transparentes, pois combina uma montagem simples, de feixe único, com uma grande sensibilidade na medida. Iremos descrever aqui o fundamento da técnica e seu modo de emprego no estudo de não-linearidades óticas.

3.1. Descrição teórica da Varredura Z de Transmissão:

Na técnica de Varredura Z de transmissão (TZ-Scan), empregamos um feixe de modo gaussiano fundamental (TEM_{00}) [10] gerado por um laser pulsado ou CW. O feixe gerado por um laser operando no modo gaussiano fundamental possui um máximo de intensidade no centro, e a intensidade irá diminuindo à medida que nos afastamos radialmente do centro.

Este feixe gaussiano atravessa uma lente, e irá convergir até atingir um diâmetro mínimo. Neste ponto, chamado de cintura do feixe, a intensidade será máxima, pois toda a potência incidente é concentrada em um disco de raio menor que uma centena de micrômetros, dependendo do valor do comprimento focal da lente. O feixe continuará a se propagar, divergindo deste ponto de raio mínimo.

Como vimos no começo do capítulo, ao incidir um feixe que tenha um máximo de intensidade no centro sobre uma amostra com uma variação positiva do índice de refração com a intensidade, teremos o efeito de autofocalização. Este efeito

será maior quanto maior for a intensidade incidente. A amostra em estudo é deslocada ao longo do feixe, como mostrado na Figura 3.3.

Analisemos a intensidade medida pelo detetor D, colocado atrás de uma íris situada a uma distância d da cintura do feixe, colocando a amostra em diferentes posições ao longo do feixe. Com a amostra colocada entre a cintura do feixe e a lente, afastada da cintura, o efeito de autofocalização será pequeno, pois a intensidade sobre a amostra ainda é pequena. O feixe continuará a se propagar sem alterar sua convergência, e não esperamos observar alterações da intensidade medida pelo detetor.

No entanto, se deslocarmos a amostra, aproximando-a da cintura do feixe, a autofocalização será mais forte devido ao aumento da intensidade. Com isso, o feixe irá convergir antes da posição na qual a cintura estava anteriormente, causando um aumento na divergência do feixe além da cintura. O detetor irá medir uma redução na intensidade total que atravessa a íris (Figura 3.4 a).

Se a amostra for posicionada logo após a cintura, entre esta e a íris, ela irá continuar atuando como uma lente convergente, devido a grande intensidade do feixe. A divergência do feixe a partir da cintura será diminuída devido a autofocalização. Com isso, a amostra irá concentrar o feixe sobre a íris, produzindo agora um aumento na intensidade medida pelo detetor (Figura 3.4 b).

Afastando a amostra da cintura, a redução da intensidade sobre a amostra reduzirá o efeito de autofocalização, e novamente o feixe se propaga sem alterações causadas por efeitos não-lineares.

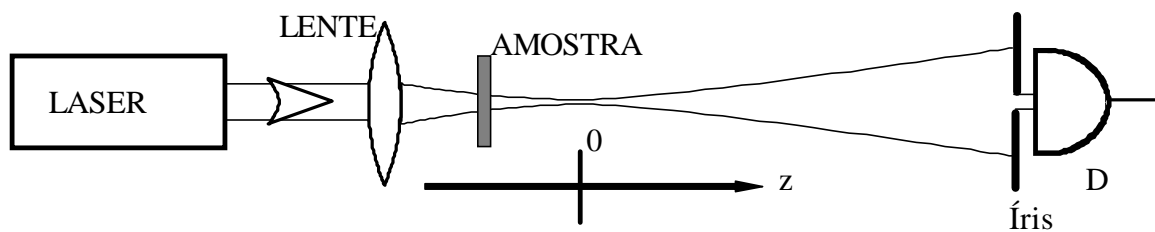


Figura 3.3: Montagem básica da experiência de Varredura Z. O detetor D irá medir as variações de fase provocadas pelos efeitos óticos não-lineares da amostra, à medida que ela se desloca ao longo da direção de propagação do feixe (z). A cintura do feixe define a posição $z=0$.

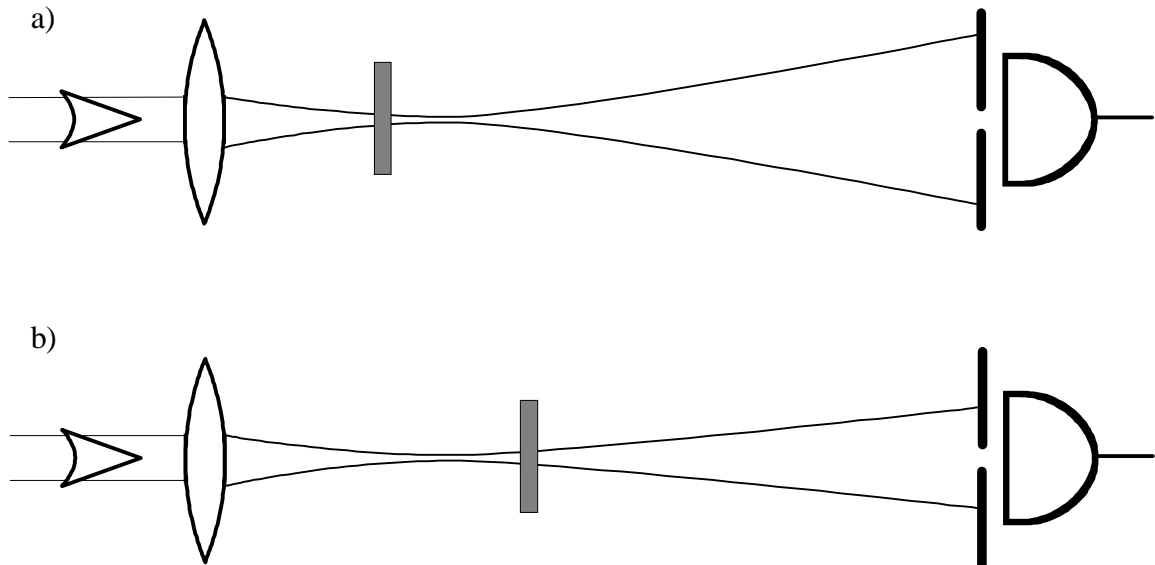


Figura 3.4: A autofocalização do feixe provocada por uma não-linearidade positiva irá provocar uma variação na intensidade medida pelo detetor à medida que a amostra se desloca. a) A convergência do feixe antes da cintura produz uma diminuição na intensidade medida. b) A convergência do feixe produz um aumento na intensidade medida.

Se traçarmos uma curva da intensidade medida pelo detetor em função da posição da amostra, iremos observar que a intensidade se reduz à medida que aproximamos a amostra da cintura e a afastamos da lente, até atingir um mínimo antes de alcançar a cintura. Ao ultrapassar a cintura do feixe, teremos um aumento rápido na intensidade, atingindo um máximo um pouco além da cintura. A intensidade volta a cair, atingindo um valor próximo ao inicial ao nos afastarmos da cintura (Figura 3.6).

Vamos considerar agora uma amostra com uma variação negativa no índice de refração. Na montagem da Figura 3.3 teremos um efeito de autodefocalização, e a amostra irá atuar como uma lente divergente. A autodefocalização será mais forte quanto mais intenso for o feixe.

Com a amostra situada antes da cintura, mas distante desta, o efeito de autodefocalização será pequeno devido a baixa intensidade sobre a amostra. Quando nos aproximamos da cintura teremos um aumento da autodefocalização, e a divergência que a amostra irá introduzir no feixe resultará em uma concentração do feixe sobre a íris, produzindo um aumento na intensidade medida (Figura 3.5 a).

Logo além da cintura, a divergência do feixe introduzida pela amostra irá fazer com que a intensidade atravessando a íris seja menor, resultando assim em um mínimo de intensidade (Figura 3.5 b). Quando afastamos a amostra da cintura, a redução da intensidade sobre a amostra irá diminuir a autodefocalização, e o feixe irá retornar à condição inicial. A intensidade medida pelo detetor irá aumentar até atingir o valor inicial.

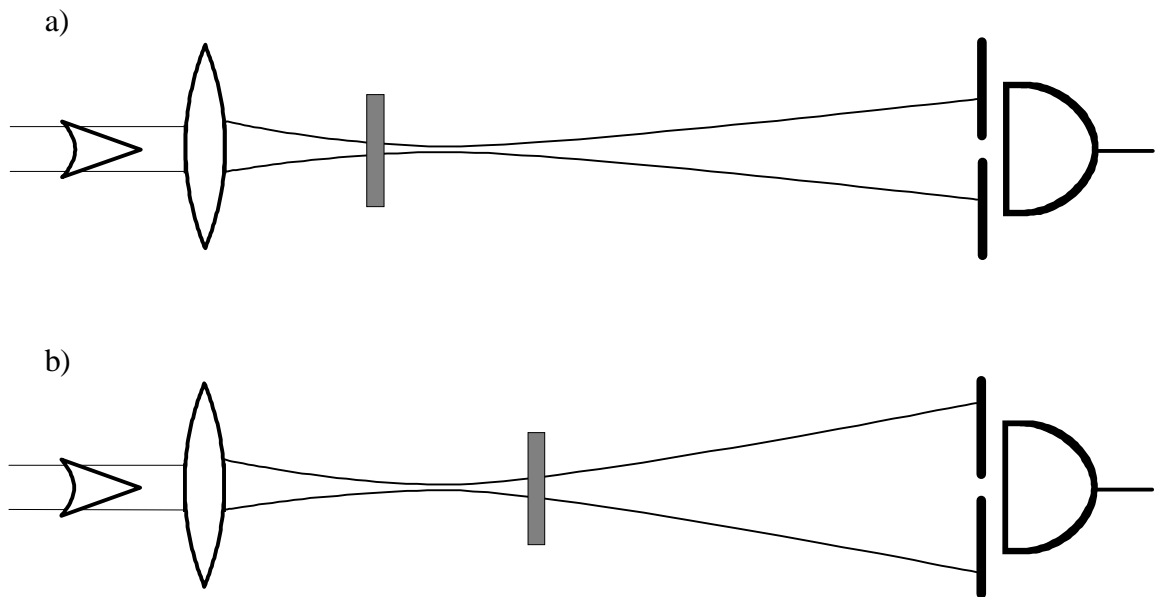


Figura 3.5: A autodefocalização do feixe provocada por uma não-linearidade negativa irá provocar uma variação na intensidade medida pelo detector à medida que a amostra se desloca. a) A divergência provocada pela amostra antes da cintura produz um aumento na intensidade medida. b) A divergência provocada pela amostra além da cintura do feixe produz uma redução na intensidade medida.

Se fizermos um gráfico relacionando a intensidade medida por D para diferentes posições da amostra no eixo z, obteremos a curva contínua mostrada na Figura 3.6. Uma primeira observação desta curva já nos permite determinar se a não-linearidade do índice de refração apresentada pela amostra é positiva ou negativa.

Concluimos ainda que o arranjo formado pelo detector e pela íris permite transformar as variações de fase de um feixe gaussiano em variações de intensidade. Isto torna fácil a verificação dos efeitos de automodulação de fase vistos aqui, pois não precisamos realizar uma análise de todo o perfil de intensidade do feixe e realizar cálculos para analisar a propagação deste feixe, se o que queremos é apenas a variação de fase introduzida no centro do feixe. Esta variação de fase pode ser facilmente medida por um detector e uma íris, que irão transformar esta variação em um sinal elétrico. Podemos realizar facilmente o tratamento deste sinal e medir por ele a distorção de fase.

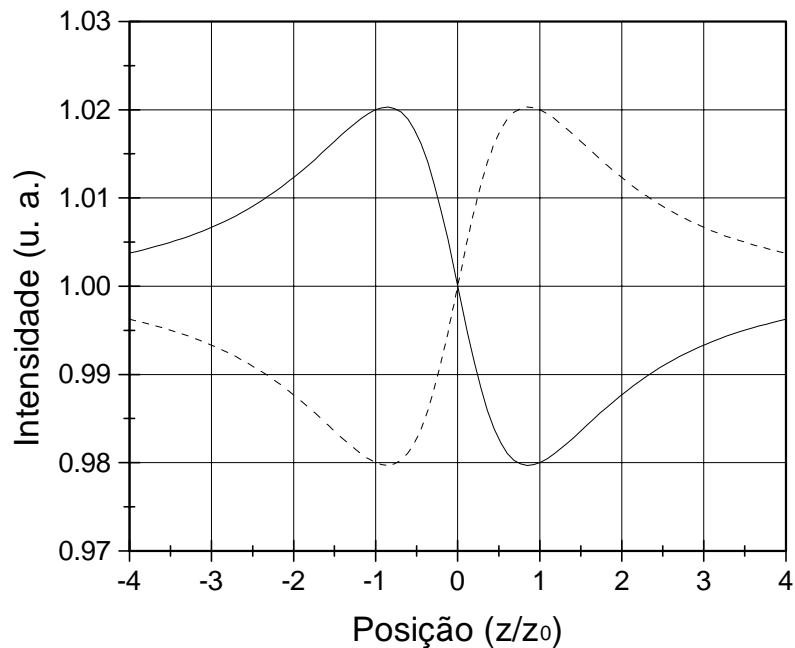


Figura 3.6 Curva teórica para a intensidade medida pelo detetor D em função da posição da amostra. A linha contínua representa a curva esperada para uma amostra com $n_2 < 0$, e a linha tracejada representa a curva esperada para uma amostra com $n_2 > 0$.

O método de Varredura Z pode ser usado para medir com precisão a variação do índice de refração. Para isso, estudaremos o comportamento do feixe gaussiano ao atravessar uma amostra de material não-linear.

3.1.1. Não-linearidade refrativa (n_2):

Vamos fazer uma apresentação da teoria desenvolvida por M. Sheik-Bahae, no artigo de 1990 [35]. Através desta teoria, foi demonstrado que o método por eles desenvolvido permite medir de forma rápida e simples o termo não-linear de refração (n_2) através de uma medida de feixe único.

Iremos verificar agora como irá variar o sinal medido por D (Figura 3.3) para o deslocamento de uma amostra ao longo da direção de propagação do feixe (z). Iremos considerar inicialmente apenas um efeito não-linear no índice de refração, desprezando nesta primeira abordagem as variações que possam existir no coeficiente de absorção provocadas pela intensidade do feixe.

Se considerarmos o índice de refração total da amostra (n), podemos separá-lo em dois termos. O primeiro envolve a contribuição da parte linear do índice de refração, e o segundo a contribuição do termo não-linear. Teremos então

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (3-1)$$

onde n_0 é o termo linear da refração, e n_2 é o termo não linear. I corresponde à intensidade do feixe em um dado ponto da amostra e, como veremos, I é uma função da posição da amostra no feixe gaussiano. A intensidade do feixe gaussiano apresenta uma dependência com a posição ao longo do feixe (z) e com a distância radial (ρ) em relação ao eixo de simetria.

Tomando o feixe incidente como um feixe gaussiano de modo TEM_{00} , o campo elétrico $E(\rho, z)$ do feixe pode ser expresso através da equação [10]

$$E(\rho, z) = E_0 \frac{q_0}{q(z)} \exp\left(-\frac{ik\rho^2}{2q(z)} - ikz\right) \quad (3-2)$$

onde o termo $q(z)$ é composto de uma parte real e uma parte imaginária

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)} \quad (3-3)$$

Nesta equação, $R(z)$ corresponde ao raio de curvatura da frente de onda do feixe

$$R(z) = z \left[1 + \left(z_0/z \right)^2 \right] \quad (3-4)$$

e $w(z)$ corresponde à distância na qual a intensidade do feixe cai a $1/e^2$ da intensidade no centro. Tal grandeza, que pode ser descrita como o raio do feixe na posição z , é dada por

$$w(z)^2 = w_0^2 \left[1 + \left(z/z_0 \right)^2 \right] \quad (3-5)$$

O termo q_0 corresponde ao valor de $q(z)$ para $z=0$. Verifica-se facilmente que $q_0 = iz_0$.

Conforme vemos no Apêndice II, z_0 é o comprimento de Rayleigh, onde a área do feixe é o dobro da área na cintura do feixe, e w_0 é o raio do feixe na cintura. A relação entre z_0 e w_0 é dada por

$$z_0 = \pi \cdot w_0^2 / \lambda$$

(3-6)

Do feixe gaussiano, podemos calcular ainda a intensidade do feixe, a partir do quadrado do módulo do campo. Esta intensidade será dada por

$$I(\rho, z) = I_0 \cdot \frac{1}{\left(1 + \left(z / z_0\right)^2\right)} \cdot \exp\left(-2\rho^2 / w^2(z)\right)$$

(3-7)

Vemos que I_0 corresponde à intensidade máxima, a qual ocorre no centro da cintura do feixe ($\rho=0, z=0$).

Iremos considerar uma amostra de espessura pequena, de modo que a variação do raio (w) do feixe quando este se propaga no interior da amostra possa ser desprezada. Isto é válido quando a espessura L é muito menor que z_0 ($L \ll z_0$). Veremos que assumir $L < z_0$, é uma condição suficiente para nosso trabalho.

Quando o campo se propaga no interior da amostra, a fase do campo elétrico inclui um termo correspondente à evolução temporal da fase e um termo correspondente à evolução espacial. Considerando uma onda plana com velocidade angular ω se propagando em um meio com um índice de refração n e um coeficiente de extinção κ , o campo elétrico pode ser expresso por

$$E(z, t) = E_0 \exp(-\kappa k z) \exp(i n k z) e^{-i\omega t}$$

(3-8)

onde k é o módulo do vetor de onda no vácuo, dado por $k=2\pi/\lambda$.

Considere agora que o meio apresenta uma região na qual o índice de refração é diferente do resto do meio, como mostra a Figura 3.7. Ao atravessar esta região, a frente de onda sofrerá um atraso ou um avanço de fase dependendo da diferença entre o índice de refração nesta região e no resto do material. Esta diferença de fase pode ser expressa por

$$\Delta\phi = -\frac{2\pi}{\lambda} \Delta L (n_B - n_A)$$

(3-9)

Na Figura 3.7 o menor índice de refração no centro da lâmina faz com que a frente de onda nesta região se adiante ao resto da frente de onda, resultando em uma diferença de fase positiva para esta região. Por outro lado, se nesta região o índice de refração fosse menor, teríamos um atraso da frente de onda nesta região.

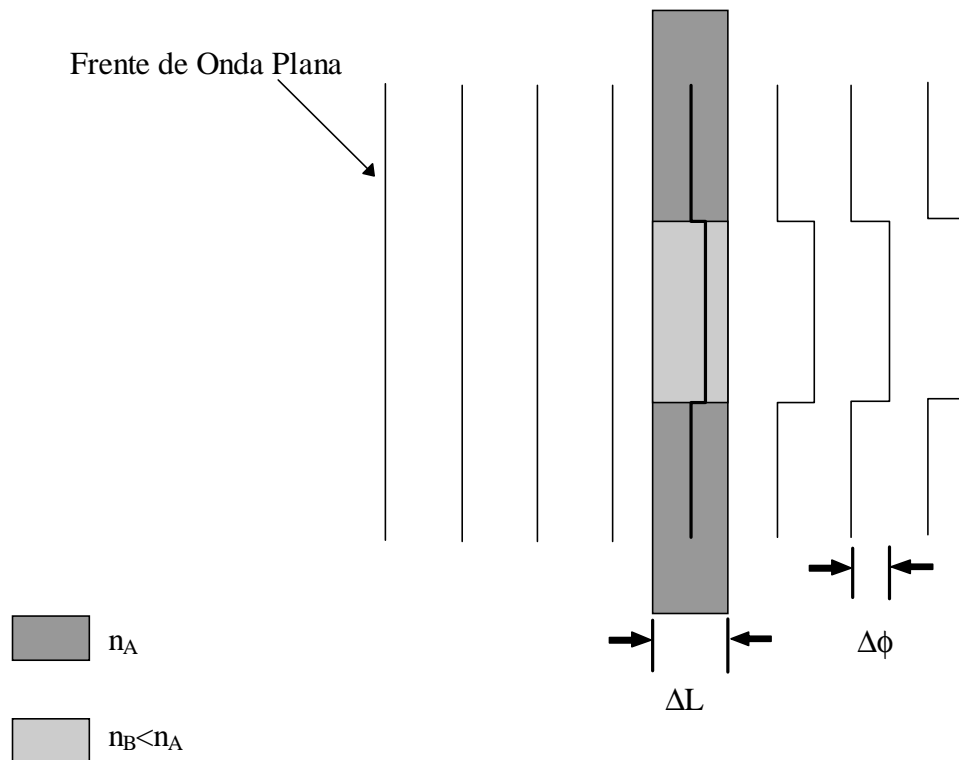


Figura 3.7: Definição da variação de fase sofrida por uma onda ao se propagar por uma espessura ΔL de um material com índice de refração não uniforme. Neste caso, temos uma variação positiva da fase da onda no centro em relação ao resto da frente de onda

Com estas considerações, podemos calcular a propagação do feixe gaussiano no interior de uma amostra com um termo não-linear no índice de refração. A distorção de fase pode ser expressa aplicando a equação (3-9) à situação onde temos uma lâmina de espessura dz' de material. Neste caso teremos

$$\frac{d\phi(z')}{dz'} = -\Delta n(I)k \quad (3-10)$$

e para a variação da intensidade no interior da amostra

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha I \quad (3-11)$$

onde α é o coeficiente de absorção linear do material. Vemos que uma variação positiva do índice de refração irá introduzir um atraso de fase, enquanto que uma variação negativa de n irá introduzir um adiantamento de fase.

Resolvendo estas equações com a aproximação de que a divergência do feixe gaussiano no interior da amostra é nula, satisfeita no caso $L < z_0$, para um feixe de perfil de intensidade gaussiano (3-7), teremos uma distorção de fase na saída da amostra dependente da posição (z) da amostra ao longo do feixe e da distância (ρ) entre um dado ponto da superfície da amostra e o eixo simetria .

$$\Delta\phi(\rho, z) = \frac{\Delta\phi_0}{1 + (z/z_0)^2} \exp\left(-\frac{2\rho^2}{w^2(z)}\right) \quad (3-12)$$

onde

$$\Delta\phi_0 = -kL_{\text{ef}} n_2 I_0 \quad (3-13)$$

é a distorção de fase, no centro da amostra, para a intensidade máxima, e o comprimento efetivo L_{ef} da amostra leva em conta a variação da intensidade no interior do material:

$$L_{\text{ef}} = \frac{(1 - e^{-\alpha L})}{\alpha} \quad (3-14)$$

Note que a intensidade empregada I_0 deve levar em conta a perda por reflexão na primeira face do cristal [38] na intensidade do feixe incidente. Neste caso, o valor de I_0 a ser empregado é

$$I_0 = \frac{2P}{\pi w_0^2} \times \frac{(n_0 - 1)^2}{(n_0 + 1)^2} \quad (3-15)$$

Aplicando esta distorção de fase ao feixe transmitido pela amostra, teremos este feixe expresso por

$$E_t(\rho, z) = E(\rho, z) \gamma \exp[i\Delta\phi(\rho, z)] \quad (3-16)$$

onde γ inclui a atenuação linear da amplitude do campo pela absorção do meio e pela reflexão de Fresnel nas duas faces da amostra, e $E(\rho, z)$ é o feixe gaussiano incidente.

A partir do feixe transmitido podemos calcular a intensidade incidente sobre o anteparo. Uma forma de fazê-lo é empregando o princípio de Huygens para propagar o campo transmitido pela amostra até o anteparo. Tal propagação ao campo

distante pode ser feita por uma integral de Kirchoff-Fraunhofer [38], a qual no caso de um sistema com simetria radial se reduz a uma transformada de Hankel de ordem zero [39].

No nosso caso, no entanto, torna-se mais fácil decompor o feixe transmitido em uma somatória de feixes gaussianos [40] e propagá-los até o anteparo por uma matriz ABCD [41].

Para fazê-lo, lembremos que o termo de fase contendo o termo de distorção pode ser decomposto em uma somatória

$$\exp[i\Delta\phi(\rho, z)] = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi(\rho, z)]^m}{m!} \quad (3-17)$$

Desse modo, o feixe transmitido pela amostra pode ser expresso por uma soma de feixes gaussianos, a partir das equações (3-2), (3-12) e (3-17):

$$E_t(\rho, z) = E_0 \gamma e^{-ikz} \frac{q_0}{q(z)} \sum_{m=0}^{\infty} \left[\frac{i\Delta\phi_0}{1 + (z/z_0)^2} \right]^m \frac{1}{m!} \exp\left[-i \frac{k\rho^2}{2q(z)} - \frac{2\rho^2 m}{w^2(z)}\right] \quad (3-18)$$

Propagando estes feixes até a superfície do anteparo, situado a uma distância d da cintura do feixe, temos o campo elétrico sobre o anteparo (E_d) dado por

$$E_d(\rho, z) = \frac{E'_0 e^{-ikd}}{1 + iz/z_0} \sum_{m=0}^{\infty} \left[\frac{i\Delta\phi_0}{1 + (z/z_0)^2} \right]^m \frac{1}{m! G_m} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_m}\right) \quad (3-19)$$

onde os termos da somatória são dados por

$$\frac{1}{q'_m} = \frac{1 - g(z)/|G_m|^2}{d - z} - i \frac{1}{d_m |G_m|^2} \quad (3-20)$$

$$g(z) = 1 + \frac{d - z}{R(z)} \quad (3-21)$$

$$d_m = \frac{\pi w^2(z)}{\lambda(2m+1)}$$

(3-22)

$$G_m = g(z) - i \frac{(d-z)}{d_m}$$

(3-23)

A intensidade, medida no detetor após o anteparo, será dada pela integral da intensidade no orifício da íris. O valor desta intensidade contém informação tanto da parte linear (absorção e reflexão pelas faces do cristal atenuando a intensidade) como informação da parte não linear (distorção de fase induzida pela não linearidade). Para eliminar a contribuição linear basta fazer a normalização pela potência total transmitida pela amostra, e levar em conta a atenuação provocada pelo anteparo. Esta atenuação, para um feixe gaussiano, é dada por

$$S = 1 - \exp(-2\rho_a^2/w_a^2)$$

(3-24)

onde ρ_a é o raio do orifício da íris, e w_a é o raio do feixe gaussiano na íris (ou seja, o valor de $w(z)$ quando $z = d$).

Podemos calcular a transmitância normalizada medida pelo detetor:

$$T(z) = \frac{4\pi \int_0^{\rho_a} |E_a(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{S|\gamma|^2 P}$$

(3-25)

Este é o resultado final para uma curva de Varredura Z. Pelo ajuste da curva teórica aos resultados da medida experimental podemos encontrar o valor de n_2 .

Se tomarmos uma série de aproximações podemos chegar a uma relação bem mais simples entre a variação de intensidade entre o máximo e o mínimo da transmitância normalizada (ΔT_{pv}) e o valor de n_2 . Com isso, poderemos obter de forma rápida o valor do termo não-linear da refração para uma amostra em estudo.

Para aproximações em que a variação de fase $\Delta\phi_0$ é pequena ($\Delta\phi_0 < 1$), podemos tomar apenas os dois primeiros termos da somatória em (3-19). Assumindo ainda que o detetor e o anteparo se situam no campo distante ($d \gg z_0$) e a abertura é pequena comparada ao diâmetro do feixe no campo distante ($r_a \ll w(d)$, ou seja, $S \approx 0$), a transmitância normalizada se reduz a uma equação muito mais simples

$$T(x) = 1 - \frac{4\Delta\phi_0 x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}$$

(3-26)

onde $x = z/z_0$.

Por esta relação vemos que a distância entre as posições de pico e vale é aproximadamente

$$\Delta Z_{pv} \cong 1,7 z_0 \quad (3-27)$$

e a amplitude da variação de transmitância é proporcional à distorção de fase

$$\Delta T_{pv} \cong 0,406 |\Delta \phi_0| \quad (3-28)$$

Pelas equações (3-13) e (3-28), vemos que a amplitude de variação da transmissão ΔT_{pv} (Figura 3.8) é diretamente proporcional ao módulo de n_2 . Podemos assim, com uma medida imediata de ΔT_{pv} , determinar n_2 , se conhecemos os parâmetros lineares da amostra.

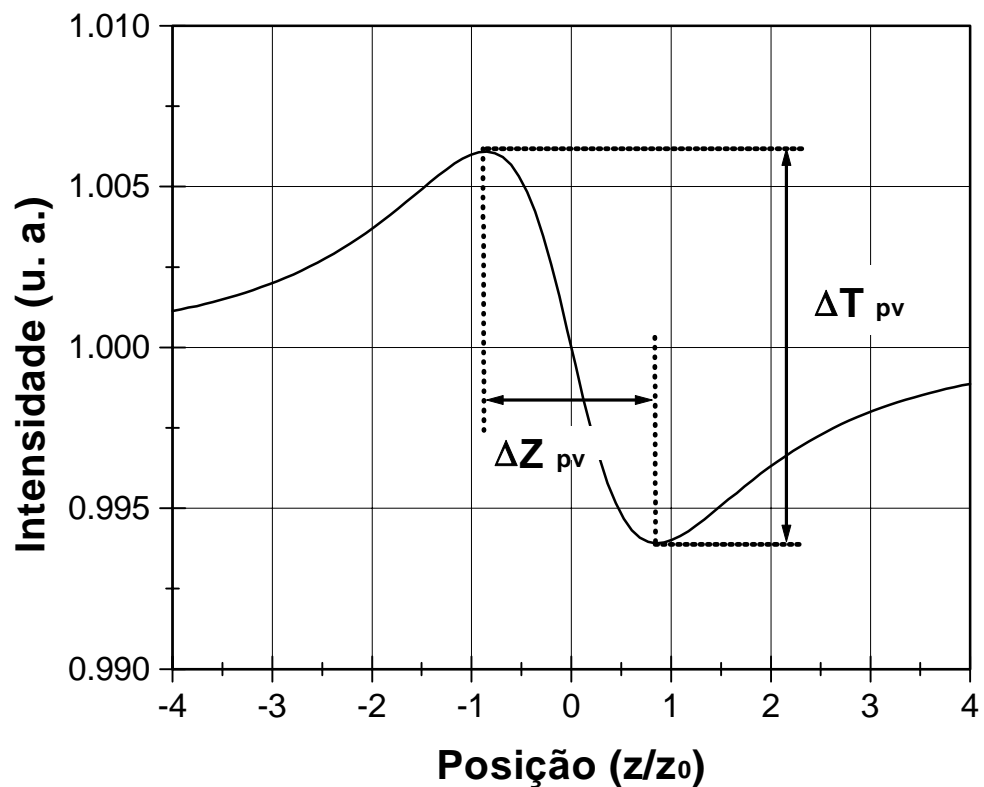


Figura 3.8: Definição de ΔT_{pv} e ΔZ_{pv} . em uma medida de Varredura Z. A curva foi simulada para um valor de $\Delta \phi = 0,3$.

Através de uma série de simulações numéricas [35], foi demonstrado que esta relação pode ser estendida às condições em que a abertura da íris não é desprezível com relação ao raio do feixe ($S > 0$) e $\Delta\phi_0 < \pi$. Neste caso teremos

$$\Delta T_{pv} \cong 0,406 (1-S)^{0,25} |\Delta\phi_0| \quad (3-29)$$

Fica clara a vantagem do método. Através de uma medida simples e direta, podemos medir o termo não-linear da refração de um material transparente (n_2). A precisão da medida, ou quão pequeno é o valor de n_2 que queremos medir, dependerá da intensidade disponível do feixe (dependente de P e w_0), da espessura da amostra (L) e de quão sensível é nossa montagem às variações de intensidade (qual a nossa resolução em ΔT_{pv}).

O método de varredura Z permite ainda medir o termo não-linear da absorção. Este termo está ligado a efeitos de absorção de múltiplos fótons por uma transição atômica, saturação de absorção em uma transição de um único fóton ou absorção por portadores livres. A análise de tais processos é o tema da próxima seção.

3.1.2. Não-linearidade absorptiva (β):

Apresentamos na seção anterior o emprego da Varredura- Z em medidas do termo não-linear da refração n_2 . Vimos que com uma medida simples, de feixe único, podemos medir o valor de n_2 com grande sensibilidade. Seguindo a análise do método apresentado por Sheik-Bahae [35], iremos ver como a Varredura Z de transmissão permite medir o termo não-linear da absorção.

Uma dependência da absorção com a intensidade pode estar ligada a transições ressonantes, podendo a absorção apresentar um aumento com a intensidade, como é o caso da absorção de múltiplos fótons, ou uma diminuição, como é o caso da saturação da absorção por uma única frequência. Absorção por portadores livres ou transições assistidas a fótons [42] também são outros fatores que levam a variação da absorção com o aumento da intensidade.

Para realizar a medida do termo não-linear da absorção empregamos uma montagem semelhante à empregada na Figura 3.3, porém removemos a íris. A nova montagem pode ser vista na Figura 3.9.

O arranjo experimental permite concluir que, sem a íris, o detetor não irá mais medir efeitos de distorção da fase introduzidos pela amostra. O que medimos é toda a potência do sinal transmitido. Se a amostra apresenta uma redução na absorção para um aumento da intensidade incidente podemos esperar um aumento do sinal medido por D quando a amostra estiver na cintura do feixe (onde este é mais intenso). Se, por outro lado, a absorção aumenta em feixes mais intensos, podemos

esperar uma redução no sinal medido para a amostra posicionada na cintura do feixe. Verificamos com esta montagem apenas o efeito da absorção não-linear da amostra, e não temos nenhuma informação sobre o termo não-linear da refração.

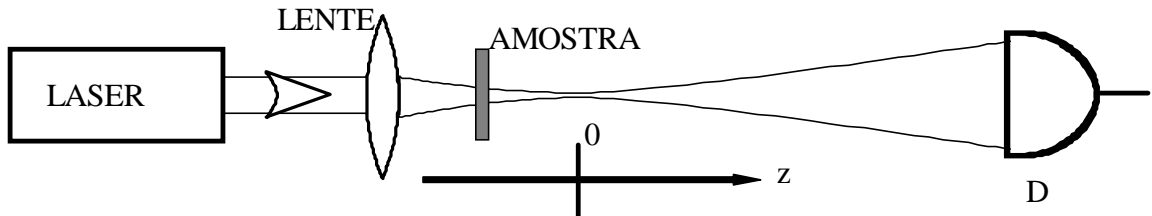


Figura 3.9: Montagem de Varredura Z para medida do termo não-linear da absorção. Neste caso, o detector D irá medir a potência total do feixe transmitido pela amostra para cada posição z da amostra ao longo do feixe.

Deste modo, vemos que a Varredura Z pode ser empregada para medir variações da absorção com a intensidade. Vamos considerar que a dependência da absorção α com a intensidade pode ser expressa por um termo não linear, proporcional à intensidade em um dado ponto da amostra:

$$\alpha(I) = \alpha + \beta I \quad (3-30)$$

Lembrando que α corresponde ao coeficiente de absorção da amostra, o qual exprime a atenuação da intensidade à medida que um feixe se propaga no material. A variação da intensidade no interior do material pode ser obtida por

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha(I)I \quad (3-31)$$

onde a coordenada z' corresponde à propagação no interior do cristal.

Para um feixe gaussiano incidente podemos, a partir da equação de intensidade para este feixe (3-7), calcular a intensidade transmitida pela amostra. Tomando as equações (3-30) e (3-31) obtemos a intensidade transmitida, expressa como uma função da posição da amostra ao longo do feixe (z) e da distância ao eixo de simetria (ρ) [35]

$$I_e(\rho, z) = \frac{I(\rho, z)e^{-\alpha L}}{1 + \beta I(\rho, z)L_{ef}} \quad (3-32)$$

onde a espessura efetiva da amostra (L_{ef}) é dada pela equação (3-14). Consideramos, neste caso, válida a aproximação $\beta I \ll \alpha$, correspondente à uma pequena variação do coeficiente de absorção provocada pela intensidade incidente.

O sinal medido pelo detector será proporcional à potência transmitida pelo cristal. Ao fazer uma medida de Varredura Z teremos, neste caso, a integração da intensidade transmitida pela amostra. Este sinal, normalizado pela parte linear, será dado por

$$T(z) = \frac{4\pi \int_0^{\infty} \tilde{I}_T(\rho, z) \rho d\rho}{4\pi e^{-\alpha L} \int_0^{\infty} \tilde{I}(\rho, z) \rho d\rho} \quad (3-33)$$

Resolvendo $T(z)$, chegamos à seguinte equação para a transmitância normalizada:

$$T(z) = \frac{\ln[1 + f_0(z)]}{f_0(z)} \quad (3-34)$$

com

$$f_0(z) = \frac{\beta I_0 L_{ef}}{1 + (z/z_0)^2} \quad (3-35)$$

A curva de resposta para uma medida de Varredura Z neste caso é apresentada na Figura 3.10, para um valor positivo (linha tracejada) e um valor negativo (linha contínua) do termo não-linear da absorção β .

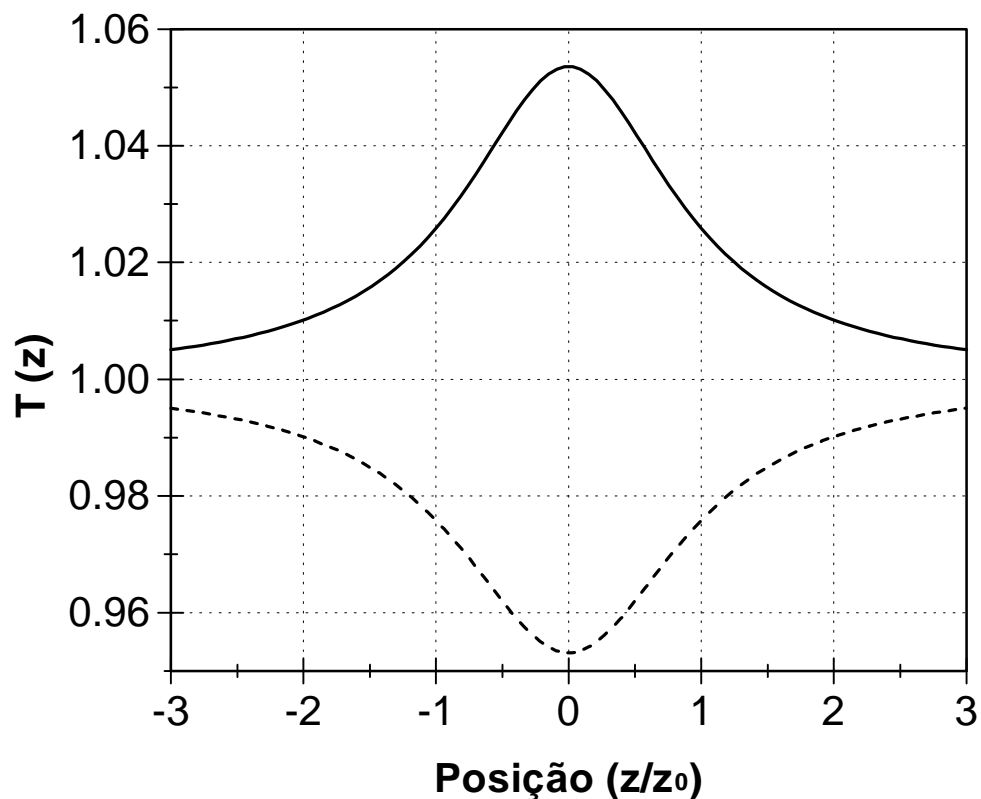


Figura 3.10: Curva teórica de Varredura Z para medida da absorção. A linha contínua apresenta a curva teórica para uma absorção não-linear β negativa ($\beta I_0 L_{\text{ef}} = -0,1$), enquanto que a linha tracejada mostra a curva teórica para β positivo ($\beta I_0 L_{\text{ef}} = -0,1$).

Para variações pequenas no coeficiente de absorção da amostra, a transmitância normalizada (equação (3-34)) pode ser reduzida a uma expansão em primeira ordem. Temos assim

$$T(z) = 1 - \frac{1}{2} \frac{\beta I_0 L_{\text{ef}}}{(1 + z^2/z_0^2)} \quad (3-36)$$

Concluimos portanto que a Varredura Z permite medir de forma simples a absorção não-linear de uma amostra, se conhecermos os parâmetros do feixe (potência P e comprimento de Rayleigh (z_0) e os parâmetros lineares da amostra (índice de refração n_0 , coeficiente de absorção α e espessura L). Como tais valores podem ser obtidos com grande precisão, nosso limite de resolução para uma medida

de β depende principalmente de nossa resolução em uma medida de intensidade pelo detector D.

Se retornarmos à montagem apresentada na Figura 3.3, poderemos fazer uma análise mais completa, levando em conta o efeito da absorção não-linear sobre o sinal medido. Na análise que nos levou à equação final (3-26), desprezamos o termo não-linear da absorção. Em muitos materiais, como o CS₂ [35], o termo não linear do coeficiente de extinção ($\kappa=\alpha/(2k)$) é pelo menos uma ordem de grandeza menor que o termo não-linear do índice de refração. Em tais casos, podemos desprezar o efeito da absorção não-linear. No entanto, em certos materiais (como os semicondutores) a absorção não-linear torna-se um elemento importante nos cálculos, alterando sensivelmente a resposta obtida.

Voltando à equações (3-10) e (3-11), podemos calcular a variação da intensidade medida pelo detector D na montagem da Figura 3.3, levando em conta a absorção não-linear expressa em (3-30). A distorção de fase na saída da amostra pode ser expressa por

$$\Delta\phi(\rho, z) = \frac{kn_2}{\beta} \ln[1 + f(\rho, z)] \quad (3-37)$$

onde o termo $f(\rho, z)$ inclui a curva gaussiana para a intensidade do feixe

$$f(\rho, z) = \beta I(\rho, z) \frac{(1 - e^{-\alpha L})}{\alpha} \quad (3-38)$$

A partir da intensidade transmitida (3-32) e da fase do campo elétrico transmitido (3-37), podemos calcular o campo elétrico transmitido pela amostra. Este campo pode ser expresso por

$$E_t(\rho, z) = E(\rho, z) \gamma [1 + f(\rho, z)]^{i k \frac{n_2}{\beta} \frac{1}{2}} \quad (3-39)$$

onde $E(\rho, z)$ está definido como o feixe gaussiano incidente (equação (3-2)) e γ corresponde à atenuação linear sofrida pelo feixe em decorrência da reflexão pelas duas faces da amostra e pela atenuação linear da mesma. Estes termos lineares resultam em uma constante multiplicativa no resultado final, que acaba sendo eliminada na normalização. Vemos acima que a distorção de fase somada à fase do campo acaba gerando o termo imaginário no expoente de $[1+f(\rho, z)]$, e a parte real deve-se à atenuação da amplitude do campo, deduzida a partir da equação (3-32).

Uma expansão binomial da equação (3-39) em termos de $f(\rho, z)$, com $|f(\rho, z)| < 1$, permite que o campo transmitido seja expresso como uma soma de feixes gaussianos

$$E_t(\rho, z) = E(\rho, z) \gamma \sum_{m=0}^{\infty} \frac{f^m(\rho, z)}{m!} \left[\prod_{n=0}^m \left(ik \frac{n_2}{\beta} - \frac{1}{2} - n + 1 \right) \right] \quad (3-40)$$

Deste modo, temos novamente a aplicação do método de decomposição em feixes gaussianos [40]. Podemos propagar estes feixes até uma distância d da cintura do feixe, obtendo o campo elétrico sobre a íris. O resultado desta propagação nos leva de volta à equação (3-19), porém devemos incluir na somatória um produtório envolvendo a razão entre o coeficiente de extinção não-linear $\beta/(2k)$ e o índice de refração não linear n_2 . O resultado é dado por:

$$E_d(\rho) = \frac{E'_0 e^{-ikd}}{1 + iz/z_0} \sum_{m=0}^{\infty} \left[\frac{i\Delta\phi_0}{1 + (z/z_0)^2} \right]^m \frac{1}{m! G_m} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_m}\right) \prod_{n=0}^m \left[1 + i(2n-1) \frac{\beta}{2kn_2} \right] \quad (3-41)$$

onde o produtório é definido como sendo igual a 1 para $m=0$. Os demais termos da somatória estão definidos nas equações (3-20) a (3-23).

A intensidade normalizada medida pelo detector D continua a ser dada pela equação (3-25). Esta equação se reduz à (3-33) no limite $r_a \rightarrow \infty$. Observe ainda que para uma absorção puramente linear ($\beta=0$) o campo elétrico na íris se reduz ao expresso pela equação (3-19).

A transmitância pode ser reduzida a uma forma mais simples. Se a abertura da íris for pequena ($r_a \rightarrow 0$), podemos expressar a transmitância normalizada para valores pequenos de $\Delta\phi_0$ e $\beta I_0 L_{ef}$. Teremos neste caso

$$T(x) = 1 - \frac{4\Delta\phi_0 x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} - \frac{2\beta I_0 L_{ef} (x^2 + 3)}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \quad (3-42)$$

onde $\Delta\phi_0$ está definido em (3-13).

A curva resultante está na Figura 3.11, para uma distorção de fase de $-0,1$, correspondendo a um valor positivo de n_2 . O coeficiente de extinção $\kappa = \alpha/(2k)$ representa a parte imaginária do índice de refração, e passa a ter um termo linear κ_0 e um termo não-linear $\kappa_2 = \beta/(2k)$ ao considerarmos a dependência da absorção com a intensidade. No caso apresentado, fizemos uma simulação em que a razão κ_2/n_2 é igual a $0,2$. Vemos assim o efeito que a absorção não-linear provoca na nossa curva de Varredura-Z.

Em um caso destes, a medida dos dois termos não-lineares pode ser feita em duas partes. Na primeira, realizamos uma medida com a íris aberta (Figura 3.9) para determinarmos o valor de β a partir de um ajuste dos resultados com a função (3-34). Em seguida, fazemos uma Varredura Z com a íris fechada, e a partir do melhor ajuste da equação (3-42) determinamos o valor de n_2 .

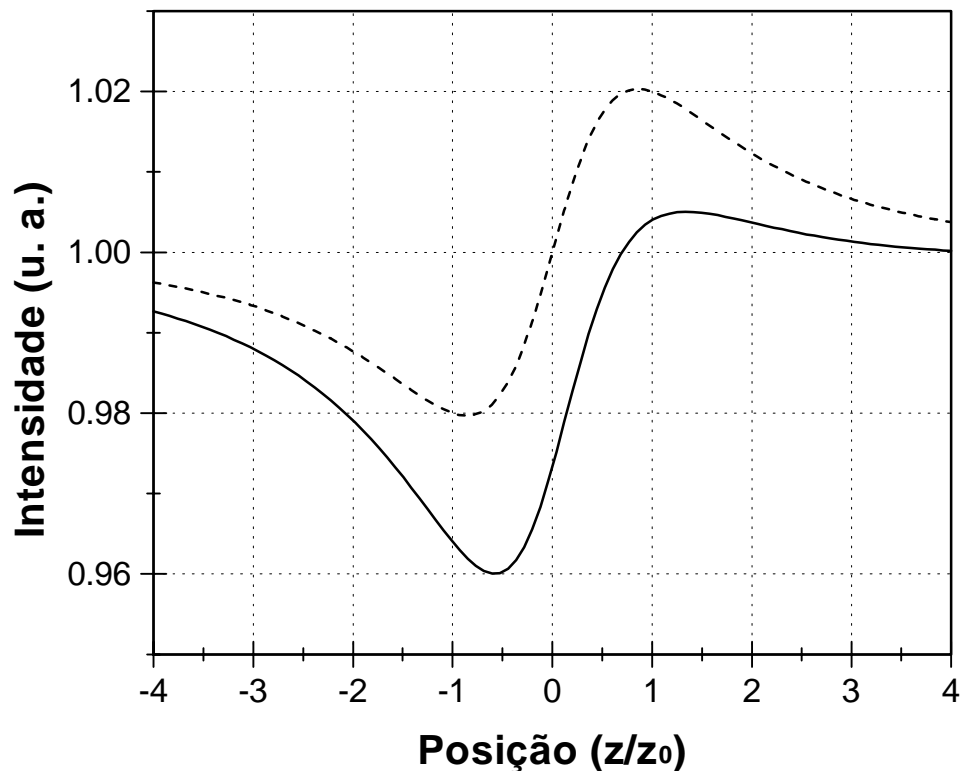


Figura 3.11: Curva teórica para a transmitância normalizada em uma medida de varredura Z onde a amostra tem uma absorção não-linear não nula. A linha tracejada é o resultado esperado para um valor de $\Delta\phi_0 = -0.1$, sem absorção não-linear. A linha contínua corresponde à mesma distorção de fase, mas com uma razão entre a parte imaginária e a real do índice de refração não-linear $\kappa_2/n_2 = 0.2$.

Com isto concluímos a apresentação do método de Varredura Z de Transmissão conforme feito por Sheik-Bahae [35]. Este método permite medir com precisão o valor da absorção não-linear β e do índice de refração não-linear n_2 .

A precisão obtida, no entanto, pode ser limitada por flutuações da potência do laser (P), que acabam por introduzir um erro na medida de intensidade pelo detector. Outra fonte de erro são imperfeições da amostra. Danos na superfície, sujeira ou irregularidades acabar por introduzir efeitos de espalhamento e difração

indesejados, provocando variações no valor de leitura da intensidade que podem ser confundidos com efeitos não-lineares, ou introduzir distorções na curva final. Se as faces da amostra não forem paralelas, o feixe que atravessa o cristal sofrerá um desvio, e ao deslocarmos o cristal o feixe transmitido também sofrerá um deslocamento, implicando em erro na medida.

Veremos como podemos compensar estes efeitos em nossas montagens em capítulos posteriores. Mostraremos a seguir como podemos aplicar a Varredura Z ao estudo de materiais que não sejam transparentes, nos quais o feixe transmitido acaba sendo muito fraco para que possamos fazer qualquer medida. Tais materiais não podem ser estudados por uma medida direta de Varredura-Z de Transmissão.

3.2. Varredura Z de Reflexão

Na varredura Z de transmissão observamos distorções de fase e amplitude no campo elétrico que atravessa a amostra em estudo, e a partir da medida destas distorções podemos calcular o valor da absorção e do índice de refração não-lineares. Este método pode ser aplicado apenas a materiais transparentes, onde o feixe transmitido apresenta uma intensidade mensurável. É o caso de semicondutores onde a energia do fóton está abaixo da energia de banda (“band-gap”), cristais óticos ou matrizes dopadas.

Se o material tiver uma absorção linear muito alta, o sinal transmitido acaba se tornando muito fraco. Podemos chegar a um limite onde o feixe transmitido praticamente se extingue, ou se torna tão pequeno que fica abaixo da sensibilidade de nosso sistema de detecção. Nestes materiais, uma medida de Varredura Z seria impraticável, e não poderíamos obter informações sobre os termos não-lineares por este método.

Considerando estas dificuldades, Cid B. de Araújo, A. S. L. Gomes e D. V. Petrov [43] fizeram a proposta de um novo método, onde analisaram a distorção do feixe refletido pela superfície da amostra através de uma varredura Z. Com este método, podemos avaliar os efeitos não-lineares em materiais absorptivos. Podemos ainda obter informações sobre efeitos de superfície no material em estudo, e diferenciar estes efeitos daqueles que ocorrem no material maciço. Tanto materiais transparentes como materiais opacos podem ser estudados por esta técnica.

A montagem é semelhante à empregada na Varredura Z de Transmissão. Uma lente irá convergir o feixe gaussiano gerado por um laser, produzindo uma cintura, onde teremos um máximo de intensidade. Nas proximidades da cintura esperamos observar os efeitos não-lineares, mais intensos devido a este máximo. O feixe refletido pela superfície da amostra é desviado por um divisor de feixe (“beam-splitter”) para um conjunto formado por um detetor e uma íris (Figura 3.12).

Como vimos anteriormente, a íris permite transformar as distorções de fase na frente de onda em variações de intensidade, que podem ser facilmente observadas empregando-se um detetor. Se a superfície da amostra produzir um avanço na fase

do sinal refletido, o efeito resultante será semelhante ao provocado por um espelho convexo, produzindo uma divergência no feixe. Esta divergência produzirá um mínimo para a amostra situada além da cintura, e um máximo se a amostra estiver posicionada antes da cintura.

Pelo contrário, se a superfície da amostra introduzir um atraso de fase na frente de onda, a situação será semelhante à obtida com um espelho côncavo. Posicionado além da cintura, este espelho, que irá convergir o feixe sobre ele incidente, produzirá um máximo de intensidade. Colocando a amostra antes da cintura, o resultado é um mínimo de intensidade.

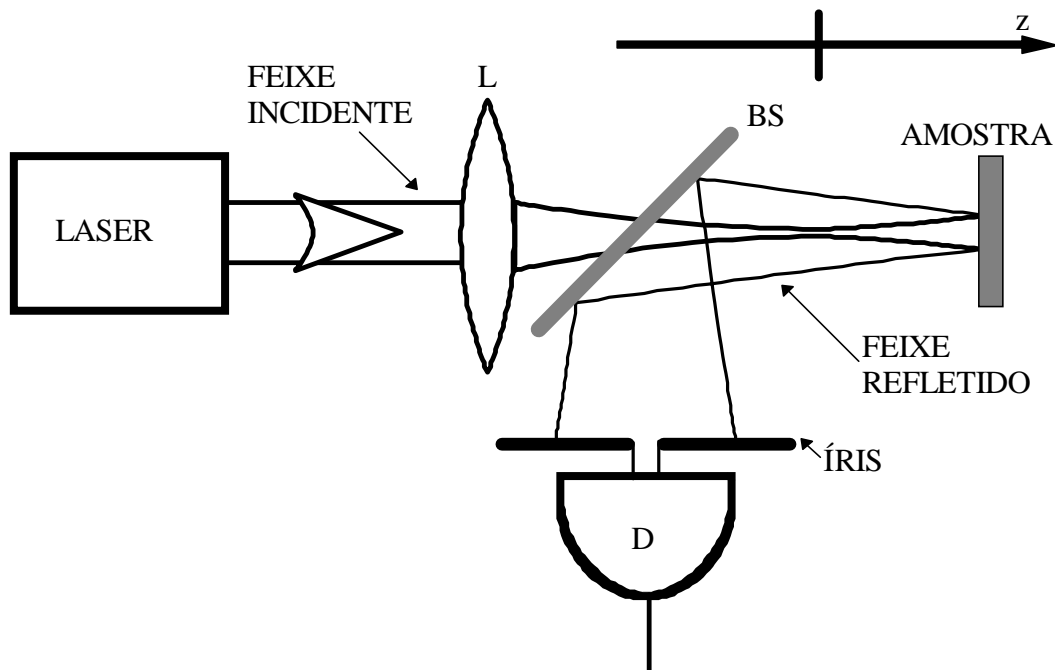


Figura 3.12:Montagem para uma Varredura Z de Reflexão, onde mostramos o detetor e a íris para medir distorções de fase. A posição z da amostra é definida a partir da distância à cintura do feixe. O divisor de feixe (BS) desvia o feixe refletido para o detetor e a íris.

Vemos que o emprego do método é semelhante à Varredura Z de Transmissão. A configuração permite analisar ainda a variação de intensidade do sinal refletido, bastando para isso apenas retirar a íris, como fizemos na medida da absorção não-linear pela Varredura Z de Transmissão. Esperamos que variações de amplitude do sinal refletido, provocada por efeitos não-lineares, sejam mais intensas na cintura, onde a intensidade do feixe é maior.

Apresentaremos a seguir o formalismo proposto em [43] para a medir a medida de Varredura Z de Reflexão. Mostraremos como a partir de uma medida simples, de feixe único, podemos obter os termos não-lineares do índice de refração e do coeficiente de absorção para materiais que não podem ser analisados pela Varredura Z de Transmissão, ou mesmo para a observação de efeitos óticos não-lineares em superfícies.

3.2.1. Reflexão do feixe por uma superfície

O índice de refração de um meio pode ser expresso por um número complexo, mostrando assim a razão entre a velocidade da luz no vácuo e no meio pela parte real (n) e a atenuação que a onda eletromagnética sofre ao se propagar pelo material, através do coeficiente de extinção (κ). Este índice de refração complexo fica então definido como

$$\tilde{n} = n + i\kappa \quad (3-43)$$

Quando uma onda incide sobre uma interface de dois meios com velocidades de propagação diferentes, esta diferença dará origem a uma onda refletida, além da onda incidente e da transmitida pela interface. A amplitude desta onda refletida será proporcional à amplitude da onda incidente, provocada pela mudança da velocidade da onda ao atravessar a interface. Teremos ainda uma mudança de fase na onda refletida, comparada à onda incidente. Esta mudança de fase ocorre se em um dos meios, ou em ambos, ocorre uma atenuação da onda propagante.

Um coeficiente de reflexão complexo pode ser empregado para expressar a razão entre a amplitude e a diferença de fase das duas ondas. Este coeficiente de reflexão pode ser expresso como uma função da razão entre as velocidades das ondas eletromagnéticas nos dois meios, conhecida por reflexão de Fresnel. Para uma onda plana com incidência perpendicular à interface, este coeficiente de reflexão pode ser expresso por [38]

$$\tilde{r} = \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \quad (3-44)$$

Como vimos nas seções anteriores, o índice de refração de um material pode variar com a intensidade do feixe incidente. Vamos considerar a aproximação na qual a mudança do índice de refração provocada pela intensidade seja proporcional a esta intensidade. Neste caso, a dependência de \tilde{n} com I pode ser expressa por

$$\tilde{n}(I) = (n_0 + i \cdot \kappa_0) + (n_2 + i \cdot \kappa_2) \cdot I \quad (3-45)$$

Esta dependência explícita de $\tilde{n}(I)$ faz com que o coeficiente de reflexão também seja uma função da intensidade. Esta dependência da reflexão, pela equação (3-44), não é linear. No entanto, supondo que a variação do índice de refração é pequena comparada ao termo linear ($n_0 \gg n_2 I$ e $\kappa_0 \gg \kappa_2 I$), podemos fazer uma expansão em primeira ordem, em função do índice de refração [44].

$$\tilde{r}(I) \equiv \tilde{r}_0 + \left. \frac{\partial \tilde{r}}{\partial \tilde{n}} \right|_{I=0} \cdot (n_2 + i\kappa_2)I \quad (3-46)$$

Temos então um termo ligado à parte linear da reflexão

$$\tilde{r}_0 = \frac{n_0 + i\kappa_0 - 1}{n_0 + i\kappa_0 + 1} \quad (3-47)$$

e um termo ligado à parte não-linear, calculado a partir da derivada em \tilde{n} . Iremos definir \tilde{r}_1 como sendo esta derivada. O produto deste coeficiente pela variação do índice de refração corresponde à variação do coeficiente de reflexão, induzida pelo campo incidente. Temos portanto

$$\tilde{r}_1 = \left. \frac{\partial \tilde{r}}{\partial \tilde{n}} \right|_{I=0} \quad (3-48)$$

e neste caso chegamos a

$$\tilde{r}_1 = \frac{2}{(n_0 + i\kappa_0 + 1)^2} \quad (3-49)$$

Tal expansão é válida apenas se $n_2 I \ll n_0$ e $\kappa_2 I \ll \kappa_0$. Tal situação é quase sempre satisfeita, pois o efeito não-linear é geralmente muito menor que o termo linear da susceptibilidade ($\chi_3 E^2 \ll \chi_1$).

Analisaremos a seguir o caso da reflexão de um feixe gaussiano pela superfície da amostra, e o comportamento deste feixe para diferentes posições da amostra relativo à cintura do feixe. Estamos interessados em analisar as perturbações provocadas pela não-linearidade no feixe refletido e através desta análise obter os termos não-lineares do índice de refração e do coeficiente de extinção do material.

3.2.2. Análise do feixe refletido por um meio não linear

Vamos considerar um feixe gaussiano incidente sobre a amostra, conforme definido nas equações (3-2) a (3-7). O feixe refletido será dado pelo produto entre o feixe incidente e o coeficiente de reflexão complexo \tilde{r} , definido na equação (3-46). Chamando de E_r o feixe refletido, temos

$$E_r(\rho, z) = E_0 \frac{q_0}{q(z)} \exp\left[-\frac{ikr^2}{2R(z)}\right] \tilde{r}_0 \left\{ \exp\left[-\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right] + \frac{\tilde{r}_1}{\tilde{r}_0} \tilde{n}_2 I_0 \frac{\exp[-3\rho^2/w^2(z)]}{1+(z/z_0)^2} \right\} \quad (3-50)$$

onde $R(z)$ e $w(z)$ são definidos nas equações (3-4) e (3-5).

Vemos que o campo refletido é expresso como a sobreposição de dois campos gaussianos. Tal resultado é semelhante à decomposição em feixes gaussianos [40] empregada por Sheik-Bahae e seus colaboradores [35]. Para calcular o campo elétrico sobre a íris na Figura 3.12, basta propagar o campo refletido até ela. No entanto, neste montagem, devemos lembrar que o caminho ótico da cintura do feixe até a íris varia com o deslocamento da amostra. Definindo como d a distância da íris até a amostra quando esta está na cintura do feixe, temos que para a amostra situada a uma distância z da íris, o caminho ótico total da amostra até a íris será dado por $(d+2z)$.

Propagando o feixe gaussiano, teremos então o campo sobre a íris dado por

$$E_d(\rho, z) = E_0 \frac{e^{-ikd}}{(1+iz/z_0)} \tilde{r}_0 \left[\frac{1}{G_0} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_0}\right) + \frac{1}{G_1} \frac{\tilde{r}_1}{\tilde{r}_0} \frac{\tilde{n}_2 I_0}{1+(z/z_0)^2} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_1}\right) \right] \quad (3-51)$$

onde os termos da somatória passam a ser dados pelas equações abaixo:

$$\frac{1}{q'_m} = \frac{1-g(z)/|G_m|^2}{d+2z} - i \frac{1}{d_m |G_m|^2} \quad (3-52)$$

$$g(z) = 1 + \frac{d+2z}{R(z)} \quad (3-53)$$

$$d_m = \frac{\pi w^2(z)}{\lambda(2m+1)} \quad G_m = g(z) - i \frac{(d+2z)}{d_m} \quad (3-54) \quad (3-55)$$

A intensidade medida pelo detector pode ser normalizada pela intensidade obtida com a amostra no foco sem o efeito não-linear ($n_2=0$ e $\kappa_2=0$). Chamemos de $R(z)$ a refletância normalizada medida pelo detector. Neste caso temos

$$R(z) = \frac{4\pi \int_0^{r_a} |E_d(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{S |r_0|^2 P} \quad (3-56)$$

onde S é a transmitância da íris de raio r_a definida na equação (3-24), com $w_a = w(d)$, e P é a potência do feixe incidente.

Como vemos na equação (3-50), ao realizarmos a decomposição do feixe refletido em dois feixes gaussianos temos um feixe semelhante ao original e um segundo feixe, multiplicado por um fator. $\tilde{r}_1 \tilde{n}_2 I_0 / \tilde{r}_0$, correspondente à distorção não-linear que é somada à onda original. Este fator corresponde à razão entre a variação do coeficiente de reflexão provocado pela intensidade do feixe e o termo linear da reflexão. Vamos definir esta variação normalizada da reflexão como

$$\Delta\hat{r} = \frac{\tilde{r}_1}{\tilde{r}_0} \tilde{n}_2 I_0 \quad (3-57)$$

Como podemos ver, $\Delta\hat{r}$ possui uma parte real e uma imaginária.

Se o raio da íris for muito pequeno ($r_a \rightarrow 0$), podemos considerar, no lugar da integral em (3-56), apenas a intensidade no centro do feixe incidindo sobre a íris. As curvas esperadas no caso de $\Delta\hat{r}$ imaginário estão na Figura 3.13. Vemos que a parte imaginária representa a distorção de fase do feixe refletido, conforme a descrição feita no início, pois para uma variação positiva de fase temos um pico de intensidade, seguido de um mínimo quando avançamos em direção de z positivo. Já para um atraso de fase temos um vale antes do pico. Estas curvas são semelhantes ao caso da varredura Z de transmissão (Figura 3.6), exceto pelo fato de haver uma redução da intensidade somada ao sinal da reflexão.

O motivo desta redução está no aumento do caminho ótico entre a cintura do feixe e o detetor quando deslocamos a amostra. Para cada deslocamento Δz da amostra, temos um aumento de $2\Delta z$ no caminho percorrido pelo feixe entre a cintura e o detetor. Com isso, temos uma lorentziana somada ao nosso sinal, correspondendo justamente ao perfil de intensidade do feixe gaussiano medido no centro do feixe em diferentes posições ao longo deste. Esta curva pode ser vista como o pontilhado na Figura 3.13. Note que se subtrairmos este sinal das curvas de varredura Z , teremos curvas semelhantes às obtidas na Figura 3.6.

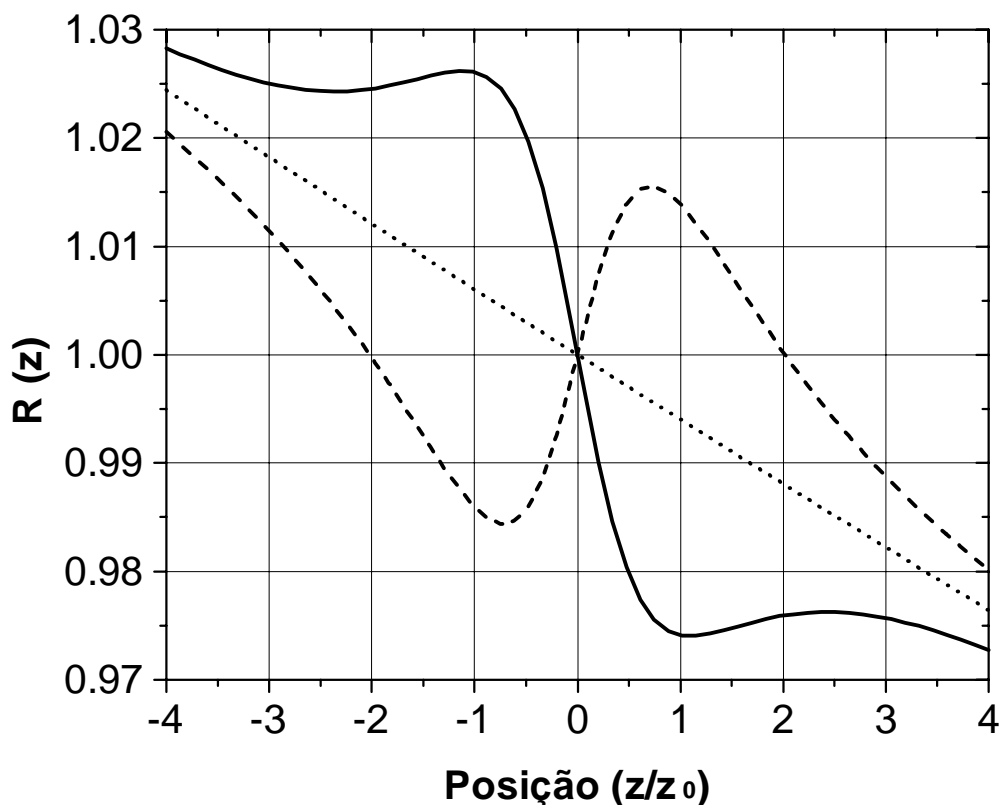


Figura 3.13: Curvas teóricas de Varredura Z de Reflexão, considerando a distância da cintura à íris $d=1m$. A linha contínua corresponde a $\text{Im}[\hat{\Delta r}]=0,1$, e a tracejada a $\text{Im}[\hat{\Delta r}]=-0,1$. O pontilhado mostra a resposta esperada sem efeitos não-lineares. A queda da intensidade corresponde ao distanciamento da fonte, devido o deslocamento da amostra no sentido z positivo aumentar o caminho ótico entre a lente e a íris.

Para um termo $\hat{\Delta r}$ real, esperamos uma variação na intensidade total do feixe refletido. A resposta esperada está na Figura 3.14. Vemos que para uma variação $\hat{\Delta r}$ positiva, temos um aumento da intensidade refletida para a amostra na cintura do feixe (linha contínua), enquanto que a linha tracejada mostra o resultado esperado para uma variação $\hat{\Delta r}$ negativa, onde obtemos um mínimo na intensidade refletida para a amostra na cintura do feixe.

Neste caso, também temos somado ao nosso sinal um termo de uma lorentziana, mostrado pela linha pontilhada. O motivo é o mesmo do caso anterior: o afastamento da cintura do feixe com o deslocamento da amostra.

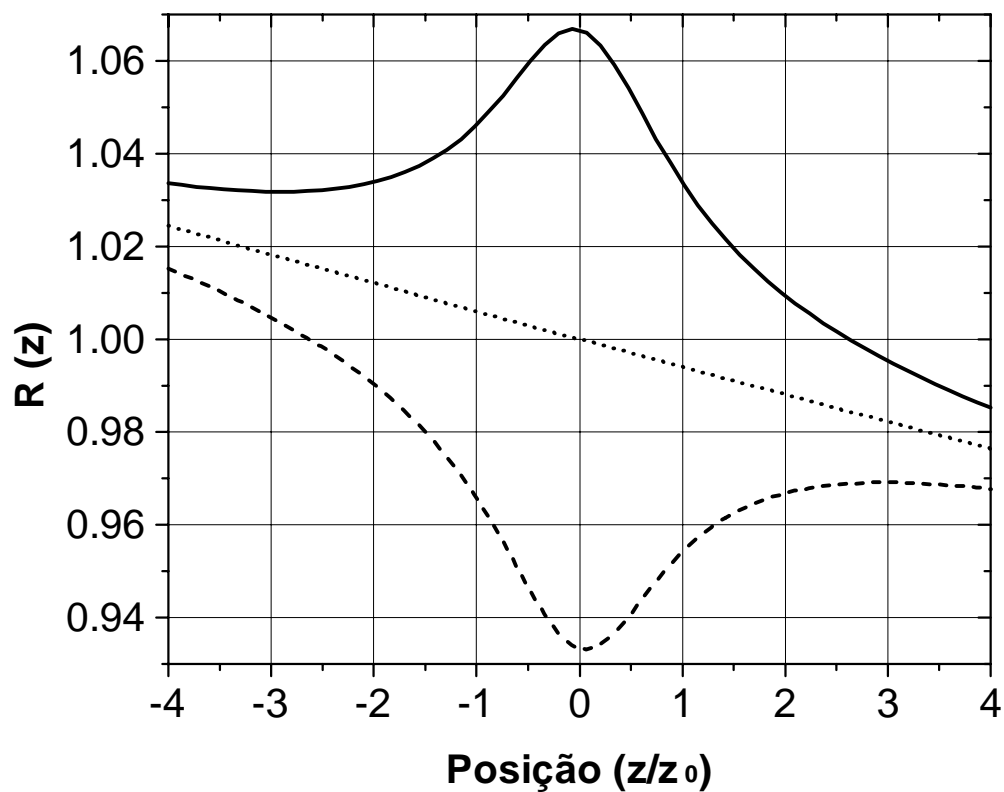


Figura 3.14: Curvas teóricas de Varredura Z de Reflexão, considerando a distância da cintura à íris $d=1\text{m}$. A linha contínua corresponde a $\text{Re}[\Delta\hat{r}]=0,1$, e a tracejada a $\text{Re}[\Delta\hat{r}]=-0,1$. O pontilhado mostra a resposta esperada sem efeitos não-lineares, como na figura anterior.

Para explicar como a parte imaginária de $\Delta\hat{r}$ corresponde a um efeito de fase e a parte real a um efeito na amplitude, vamos retomar a definição do coeficiente de reflexão

$$\tilde{r}(I_0) \cong \tilde{r}_0(1 + \Delta\tilde{r}) \quad (3-58)$$

Tomando a reflexão r_0 como um número complexo ($\tilde{r}_0 = r_0 e^{i\phi}$), vamos inserir uma pequena variação de fase $\Delta\phi$

$$\tilde{r} = r_0 e^{i(\phi+\Delta\phi)} \cong r_0 e^{i\phi} (1 + i\Delta\phi) \quad (3-59)$$

Comparando esta equação com a (3-58), vemos que na aproximação $\Delta\phi \ll 2\pi$ o termo de atraso de fase corresponde à parte imaginária de $\Delta\hat{r}$.

Se inserirmos uma variação pequena na amplitude de r_0 , teremos agora

$$\tilde{r} = (r_0 + \Delta r_0) e^{i\phi} \cong r_0 e^{i\phi} \left(1 + \frac{\Delta r_0}{r_0} \right)$$

(3-60)

Vemos então que no caso $\Delta r_0 \ll r_0$, a parte real de $\Delta \hat{r}$ corresponde à variação de amplitude do feixe refletido.

Se fizermos uma medida de varredura Z de Reflexão sem a íris (Figura 3.15), teremos uma medida de toda a variação de amplitude do sinal, sem levar em conta as distorções de fase. Neste caso o sinal medido não terá a redução da intensidade com o deslocamento da amostra, pois o detetor está integrando todo o feixe refletido.

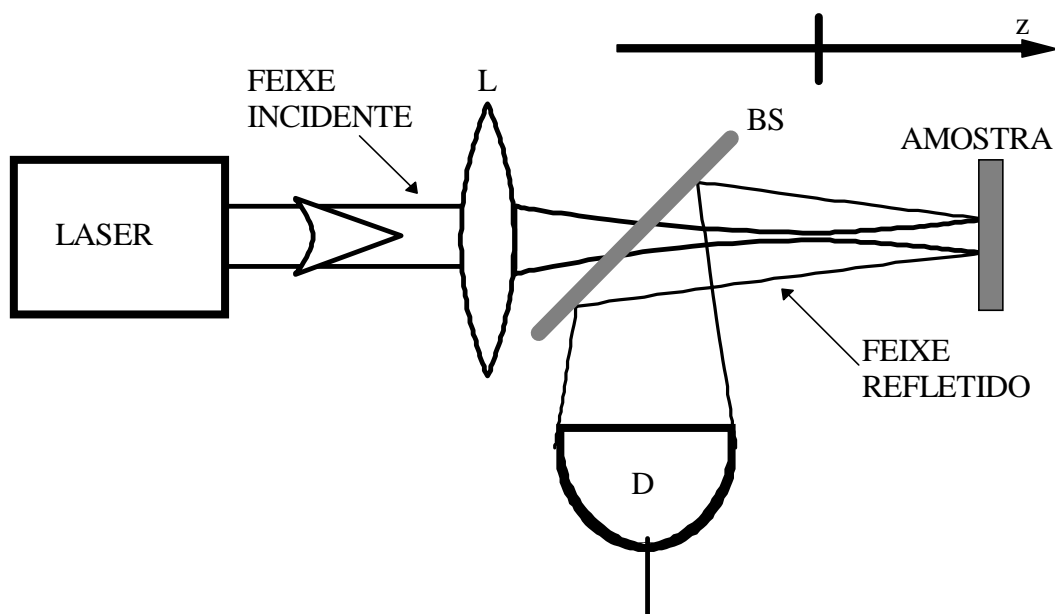


Figura 3.15: Montagem para uma Varredura Z de Reflexão medindo toda a potência do feixe refletido. A posição z da amostra é definida a partir da distância à cintura do feixe. O divisor de feixe (BS) desvia o feixe refletido para o detetor.

O sinal medido pelo detetor, normalizado pelos termos lineares, pode ser facilmente calculado a partir de (3-51), resultando em

$$R(x) = 1 + \frac{1}{1+x^2} \text{Re}[\Delta \hat{r}]$$

(3-61)

com $x=z/z_0$. O sinal será uma lorentziana, onde a amplitude da variação é igual à parte real de $\Delta\hat{f}$.

Na medida da Varredura Z de reflexão, à semelhança do que ocorre na Varredura Z de transmissão, podemos realizar a medida em duas partes. A primeira, sem a íris diante do detetor, permite medir o termo real de $\Delta\hat{f}$. A segunda, com a íris, mostrará o efeito da parte real e imaginária de $\Delta\hat{f}$. Tendo já a parte real, resta fazer o ajuste da função (3-56) aos dados experimentais, variando a parte imaginária de $\Delta\hat{f}$.

Note que o que medimos efetivamente na Varredura Z de Reflexão são os termos não-lineares da reflexão. Para chegar aos termos não-lineares da refração, basta empregar as equações (3-45) a (3-49). Porém, se a parte imaginária do índice de refração for muito menor que a parte real ($\kappa_0 \ll n_0$), a razão $\tilde{\Gamma}_1/\tilde{\Gamma}_0$ pode ser aproximada por um número real. Neste caso, n_2 será proporcional à parte real de $\Delta\hat{f}$, e κ_2 será proporcional à parte imaginária de $\Delta\hat{f}$.

É curioso notar que, enquanto na varredura Z de transmissão n_2 é responsável pelas distorções na fase do sinal e κ_2 pelas distorções da amplitude, a situação se reverte na varredura R de reflexão. O termo não-linear do índice de refração n_2 passa a controlar a amplitude do sinal, pois conforme ele seja negativo ou positivo, teremos um aumento ou uma diminuição da velocidade de propagação da onda no meio. Se a velocidade aumenta, aproxima-se da velocidade no vácuo. Como a diferença de velocidade na interface diminui, diminui a amplitude do feixe refletido. No caso oposto, onde a diferença entre as velocidades das ondas na interface aumenta, aumenta a amplitude do feixe refletido.

Para entender como a alteração da absorção passa a alterar a fase do feixe refletido, devemos voltar à análise da polarização do material, empregando uma aproximação clássica de dipolo [20]. Vemos por esta aproximação, onde tomamos o elétron preso ao átomo como um sistema massa-mola-amortecedor, que o amortecimento, e portanto a dissipação de energia do sistema, está ligado à parte absorptiva do índice de refração. Para uma absorção pequena, κ é proporcional à defasagem entre a polarização P do material e o campo elétrico incidente E, e este atraso de fase será maior quanto maior for κ . Como a onda refletida é causada pela polarização do material, a defasagem será maior quanto maior for a absorção.

Deste modo, um aumento de κ provoca aumento na distorção de fase da frente de onda, adiantando a frente de onda refletida com relação a valores menores de κ , enquanto que uma redução irá diminuir a distorção, provocando um atraso na onda refletida comparado a regiões onde o valor de κ é maior.

Vimos portanto que a Varredura Z pode ser empregada tanto para análise de propriedades de materiais transparentes em seu volume, no caso da varredura Z de transmissão, como em sua superfície, para materiais transparentes e opacos, no caso da varredura Z de reflexão.

Na varredura Z de transmissão, para uma dada resolução de intensidade pelo detector, podemos aumentar a sensibilidade de nossa montagem pelo emprego de feixes mais intensos (limitado, claro, ao limite de dano da amostra) ou aumentando a espessura do material em estudo.

No método de varredura Z de reflexão, por estarmos trabalhando com um efeito de superfície do material, a espessura da amostra não irá alterar a sensibilidade. Ficamos limitados, para valores pequenos de n_2 , pela potência disponível do laser. Mostraremos, no entanto, que podemos ter um aumento na resolução empregando um feixe de incidência inclinada sobre a amostra.

Iremos mostrar na próxima seção como o método de varredura Z se aplica a materiais sujeitos a saturação do termo não-linear. Nestes materiais, assumir que a mudança do índice de refração é proporcional à intensidade é válido apenas como primeira aproximação, como vimos no capítulo 2.4.5. Uma análise mais detalhada se faz necessária, tanto no caso da varredura Z de transmissão como no caso da reflexão.

3.3. Aplicação da Varredura Z em absorvedores saturáveis

O método de Varredura Z é amplamente empregado para medida de efeitos óticos não-lineares em diversos materiais. Tais efeitos permitem a obtenção de dispositivos fotônicos, dispositivos biestáveis, chaves óticas, além de representarem um importante ramo da espectroscopia para análise da estrutura da matéria.

Entre os materiais de interesse para estudo temos as matrizes dopadas. Nestes materiais temos um cristal ou um vidro no qual alguns átomos de sua estrutura são substituídos por elementos de transição ou terras raras. Estes materiais alteram as características espectroscópicas das matrizes, mudando sua absorção e a refração do cristal como um todo.

Os lasers de estado sólido empregam tais matrizes, aproveitando os níveis metaestáveis dos dopantes para as emissões estimuladas. O primeiro laser a ser construído [41] empregava a transição entre as bandas 2E e 4A_2 dos íons de Cromo em um cristal de Rubi ($Al_2O_3:Cr^{+3}$). O laser de $Nd^{+3}:YAG$ é empregado tanto como fonte laser no comprimento de onda fundamental (1,064 μm) como na geração de segundo, terceiro e quarto harmônicos [41].

Trabalhando no interior de cavidades ressonantes, temos intensidades muito elevadas (da ordem de 10^{17} W/cm²). Além disso, em tal situação a população do estado metaestável supera a do nível fundamental, alterando as características óticas do material. Esta inversão de população é condição básica de funcionamento do laser.

Tais materiais são chamados de absorvedores saturáveis. A onda incidente produz um aumento na população do estado excitado até atingir um nível de

saturação deste estado, e o aumento de intensidade não irá gerar alteração significativa na distribuição de população.

A principal fonte de efeitos óticos não-lineares em tais materiais é a alteração da susceptibilidade com a população dos estados excitados. Apesar destes materiais apresentarem um alto valor de n_2 ($\sim 10^{-5}$ cm²/kW), a variação do índice de refração não é mais proporcional à intensidade, sofrendo um efeito de saturação conforme visto no capítulo 2.4.5. Esperamos, neste caso, uma limitação na mudança dos termos não-lineares da refração e absorção.

Conforme vimos, a dependência do índice de refração com a intensidade não aceitará mais uma expansão linear, mas será dada por [45]

$$n(I) = n_0 + \frac{n_2 I}{1 + I/I_s} \quad (3-62)$$

Como vemos na equação acima, para valores de intensidade $I \ll I_s$, retornamos à equação (3-1), onde a variação do índice de refração é proporcional à intensidade. O método da decomposição gaussiana permanece válido apenas neste caso, não sendo mais suficiente para descrever o processo de autofocalização no absorvedor quando a intensidade se aproxima da saturação.

Esta limitação levou a um novo desenvolvimento da técnica [46], onde a propagação da frente de onda que sai da amostra até a íris foi feita através de uma integral de Fresnel [38]. No caso de um sistema com simetria cilíndrica esta integral acaba reduzida a uma transformada de Hankel [39], conforme havia sido sugerido inicialmente por Sheik-Bahae [35].

A partir das equações (3-10) e (3-45), podemos calcular a distorção de fase sofrida pelo feixe gaussiano que atravessa o cristal. Consideramos uma absorção linear na amostra (3-11), de modo que a intensidade do feixe gaussiano sofrerá uma atenuação exponencial ao longo da propagação no cristal.

A variação de fase provocada pelo termo não-linear da refração pode ser calculada integrando a variação do índice de refração, dependente da intensidade do feixe, ao longo do cristal no sentido de propagação (z') [27]

$$\Delta\phi(\rho, z) = k \int_0^L \Delta n(\rho, z, z') dz' \quad (3-63)$$

Considerando que a intensidade sofre uma atenuação no interior do cristal dada por

$$I(\rho, z') = I(\rho) e^{-\alpha z'} \quad (3-64)$$

podemos chegar ao termo de distorção de fase na onda, ao sair da amostra:

$$\Delta\phi(\rho, z) = k \frac{n_2 I_s}{\alpha} \ln \left[\frac{1 + I(\rho, z)/I_s}{1 + e^{-\alpha L} I(\rho, z)/I_s} \right] \quad (3-65)$$

onde L é a espessura do cristal, e $I(\rho, z)$ é a intensidade gaussiana incidente sobre o cristal em função da distância ao eixo de simetria e da posição do cristal em relação à cintura do feixe. A partir da distorção de fase, podemos determinar o campo elétrico saindo da amostra, situada a uma distância z da cintura do feixe

$$E_t(\rho, z) = E(\rho, z) \gamma \exp(i\Delta\phi(\rho, z)) \quad (3-66)$$

onde $E(\rho, z)$ é a equação para um feixe gaussiano ((3-2) a (3-5)).

O campo sobre a íris situado a uma distância d da amostra é calculado a partir de uma transformada de Hankel [39] do campo saindo da amostra

$$E_d(\rho') = \int_0^\infty \rho d\rho J_0\left(\frac{k\rho'\rho}{d}\right) E_t(\rho, z) \quad (3-67)$$

onde ρ' é a coordenada radial do campo no anteparo.

Conhecendo o campo sobre o anteparo, podemos calcular a intensidade normalizada, do mesmo modo que foi feito para o campo calculado a partir da decomposição em feixes gaussianos. A integral deste campo sobre a íris irá fornecer a intensidade normalizada

$$T(z) = \frac{\int_0^{r_a} |E_d(\rho', z')|^2 \rho' d\rho'}{S \int_0^\infty |E_t(\rho, z)|^2 \rho d\rho} \quad (3-68)$$

Podemos ver que a equação resultante não é tão simples quanto a obtida para uma variação do índice de refração proporcional à intensidade, como temos na equação (3-26).

Através da transformada de Hankel do feixe refletido, L. C. Oliveira e seus colaboradores [47] calcularam a relação entre a amplitude da transmitância pico-vale e a intensidade do feixe incidente, obtendo desse modo uma relação simples onde

podemos determinar o valor de n_2 do material a partir de uma série de medidas de Varredura Z de Transmissão. Neste caso a amplitude da diferença pico-vale é dada por

$$\Delta T_{pv} = 0.406(1 - S)^{0.25(1+I_0/I_s)^{(1-S)}} \frac{|\Delta\phi_0|}{(1 + I_0/I_s)^{0.525}} \quad (3-69)$$

onde $\Delta\phi_0$ é dado pela equação (3-13). Esta relação é válida para $\Delta\phi_0 < \pi$ e $I < 2.5 I_s$.

Todas estas considerações foram feitas desprezando o termo não-linear da absorção, por isso tais cálculos serão válidos apenas na condição de $n_2 \gg \beta/k$.

Se formos medir apenas a absorção não linear (β) do material, iremos empregar o mesmo modelo de saturação para a absorção,

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \frac{\beta I}{1 + I/I_s} \quad (3-70)$$

Pelo mesmo processo de análise da intensidade transmitida pelo material, considerando uma não-linearidade saturável, podemos calcular qual será o valor da intensidade medida pelo detetor sem o anteparo. A intensidade calculada será

$$T(z) = \frac{\int_0^\infty |E_t(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{Se^{-\alpha L} \int_0^\infty |E(\rho, z)|^2 \rho d\rho} \quad (3-71)$$

A partir de diversas simulações, obteve-se [47] o valor do pico da intensidade medida pelo detetor em função da intensidade de saturação e do termo não-linear da absorção β

$$T_p - 1 = \frac{\beta L_{eff}}{2} \frac{I_0}{(1 + I_0/I_s)^{0.76}} \quad (3-72)$$

Estas duas relações permitem determinar os coeficientes não-lineares da refração e absorção. Permitiriam ainda realizar uma estimativa segura da intensidade de saturação, porém o modelo simplificado de três níveis torna-se insuficiente para descrever as transições em materiais como o Aluminato de Gadolínio, como iremos mostrar na descrição dos resultados obtidos (capítulo 6).

Vemos a partir da equação (3-62) que em absorvedores saturáveis a

mudança no índice de refração está limitada a um valor máximo, igual a $n_2 I_S$. Por causa desta limitação a distorção de fase e amplitude do feixe transmitido sofre um efeito de saturação, atingindo um valor limite no qual o aumento de potência não representa um aumento significativo na distorção do sinal. Neste caso, se a distorção da fase ou amplitude em uma medida de Varredura Z de Transmissão for menor que a resolução do sistema de detecção, o aumento da intensidade não produzirá qualquer efeito. Uma alternativa é aumentar a espessura da amostra para medidas de varredura Z de transmissão.

No entanto, em medidas de Varredura Z de Reflexão, o aumento da espessura não resultará em efeito algum na medida, pois estamos lidando com efeitos que ocorrem na superfície do material. Isto implica em uma séria limitação na aplicação da técnica a tais absorvedores. No entanto, apresentaremos um método que permite realizar tais medidas pela ampliação da razão entre o termo não-linear e o termo linear da reflexão $\Delta \hat{r}$ (equações (3-52) a (3-57)), obtendo um aumento de até 30 vezes na sensibilidade da medida.

4. Método Proposto: Varredura Z de Reflexão com Amostra Inclinada e Luz Polarizada

A técnica de Varredura Z de Reflexão [43] foi desenvolvida por C. B. Araújo, A. S. L. Gomes e D. V. Petrov para investigar efeitos óticos não-lineares em materiais absorptivos. Tais materiais não podem ser analisados por técnicas de Varredura Z de Transmissão de feixe único, pois a atenuação do feixe impossibilita a medição de distorções de amplitude e fase no feixe propagante no cristal. Neste caso a Varredura Z de Reflexão permite medir tanto efeitos óticos não-lineares quanto efeitos térmicos na superfície da amostra, seja ela transparente ou absorptiva.

Propomos aqui um novo método de estudo de tais efeitos, através de uma Varredura Z de Reflexão com a amostra inclinada em relação ao feixe incidente. Com isso, aumentamos a sensibilidade do método de varredura Z de Reflexão, permitindo estender sua aplicação a materiais onde a variação do índice de refração seja pequena, ou esteja sujeita a limitações de intensidade, como é o caso de absorvedores saturáveis. O método proposto permite ainda aplicar a medida em situações onde temos outros fatores limitantes, como a própria potência disponível do laser, ou o limite de dano do material.

4.1. Reflexão linear próximo ao ângulo de Brewster

Como vimos no capítulo 3.2, a Varredura Z de Reflexão permite estudar efeitos óticos não-lineares em interfaces de materiais transparentes ou absorptivos. Nesse aspecto, ela apresenta uma grande vantagem em relação à técnica de Varredura Z de Transmissão [35], a qual fica limitada a materiais transparentes. A Varredura Z de Reflexão apresenta, no entanto, uma desvantagem com relação à sensibilidade. Enquanto que na Varredura Z de Transmissão o uso de uma amostra mais espessa irá aumentar a distorção de fase e amplitude gerada pelos termos não-lineares, na Varredura Z de Reflexão não temos tal possibilidade, e a sensibilidade da montagem está limitada à razão \tilde{r}_1/\tilde{r}_0 na equação (3-51).

Como vimos na seção 3.2, medimos pela Varredura Z de Reflexão a variação do coeficiente de reflexão, normalizada pelo termo linear deste coeficiente. Se pudermos reduzir apenas o termo linear, a variação relativa da parte não-linear será maior. Nossa proposta considera a redução do termo linear pelo uso da reflexão de Fresnel próximo ao ângulo de Brewster, onde o termo linear sofre uma grande redução sem que a derivada da reflexão em relação ao índice de refração acompanhe esta redução.

Considere o feixe incidente sobre uma superfície, em um ângulo diferente da normal (Figuras 4.1 e 4.2). Partindo das condições de contorno do campo na

interface entre os meios [20] teremos duas soluções diferentes para a razão entre a amplitude do feixe refletido e a amplitude do feixe incidente, conforme a polarização do feixe incidente seja paralela ou perpendicular ao plano de incidência, o qual é definido pela normal da interface entre os meios e pelo vetor de onda do feixe incidente (\mathbf{k}).

Se o feixe estiver incidindo do vácuo ($n=1$), com uma polarização perpendicular (normal) ao plano de incidência (Figura 4.1) a razão entre a amplitude dos feixes refletido e incidente (E_R/E_I) em função do ângulo de incidência θ será dada por

$$\tilde{r}_N(\theta) = \frac{\cos\theta - \sqrt{\tilde{n}^2 - \sin^2\theta}}{\cos\theta + \sqrt{\tilde{n}^2 - \sin^2\theta}} \quad (4-1)$$

onde \tilde{n} representa o índice de refração complexo, incluindo a parte dispersiva (n) e a parte absorptiva (κ).

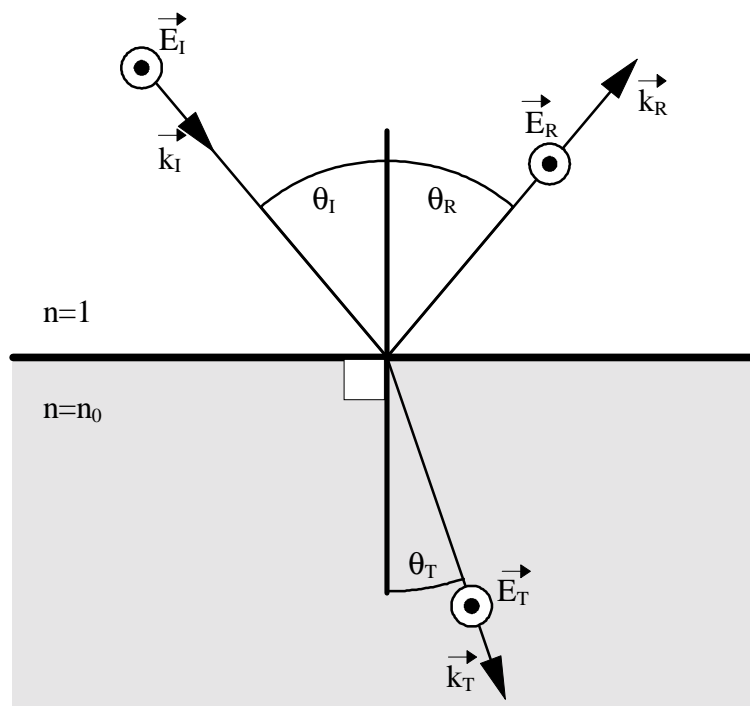


Figura 4.1: Reflexão de um feixe com polarização perpendicular ao plano de incidência. Na figura, E_I , k_I e θ_I representam respectivamente a amplitude do campo elétrico, o vetor de propagação de onda e o ângulo com relação à normal para o feixe incidente, E_R , k_R e θ_R as mesmas grandezas para o feixe refletido e E_T , k_T e θ_T as grandezas para o feixe transmitido.

Já para um feixe com polarização paralela ao plano de incidência (Figura 4.2) teremos o coeficiente de reflexão dado por

$$\tilde{r}_p(\theta) = \frac{\tilde{n}^2 \cdot \cos \theta - \sqrt{\tilde{n}^2 - \sin^2 \theta}}{\tilde{n}^2 \cdot \cos \theta + \sqrt{\tilde{n}^2 - \sin^2 \theta}}$$

(4-2)

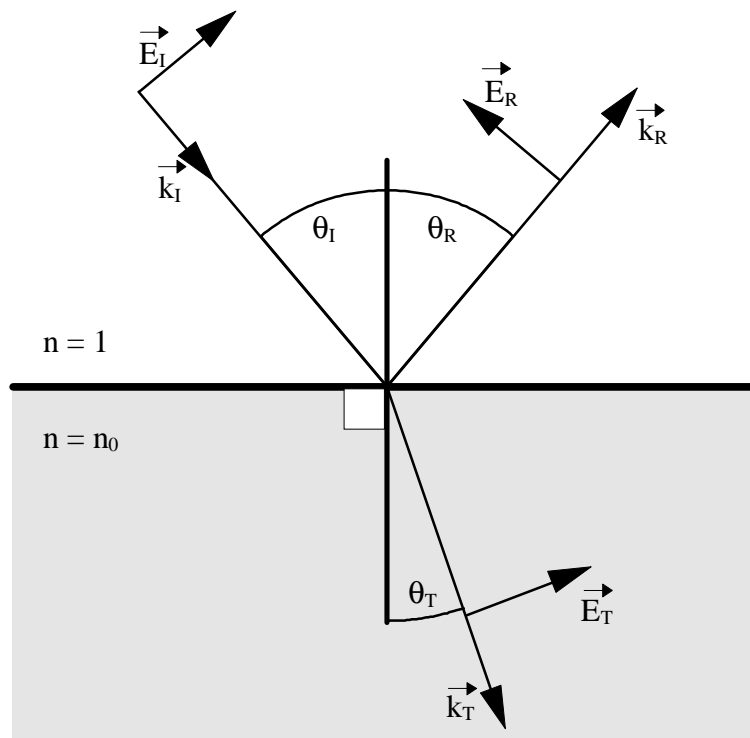


Figura 4.2: Reflexão de um feixe com polarização paralela ao plano de incidência. A definição das grandezas mostradas na figura são as mesmas da figura anterior.

Para uma primeira análise do problema, vamos considerar que o termo absorptivo do índice de refração seja muito menor que o dispersivo ($\kappa \ll n$) ou seja, o material é transparente. Neste caso, o coeficiente de reflexão será um número real. Se fizermos uma curva do coeficiente de reflexão em função do ângulo de incidência, vemos que enquanto o coeficiente de reflexão para a polarização normal mantém um valor sempre negativo, o mesmo coeficiente para uma polarização paralela sai de um valor positivo e vai diminuindo até igualar o valor de r_N no caso de uma incidência rasante. A reflexão paralela atinge, portanto, um valor nulo (Figura 4.3).

Note que para incidência normal, os dois coeficientes se igualam em módulo, diferindo no sinal. Isto se deve à definição dos campos elétricos, dada nas figuras

anteriores (Figuras 4.1 e 4.2). Pela definição empregada, os campos refletido e incidente estarão em paralelo para uma incidência normal, enquanto que para uma incidência paralela os mesmos campos estarão em anti-paralelo.

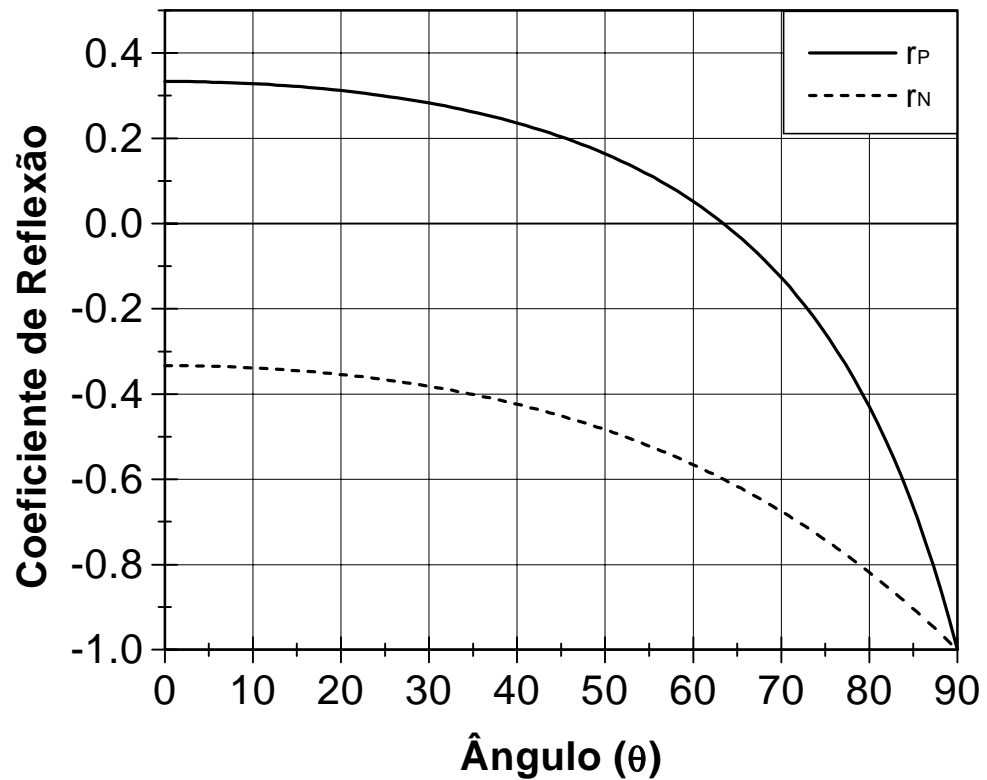


Figura 4.3: Coeficiente de reflexão da amplitude do campo para uma polarização paralela (r_P) e normal (r_N) ao plano de incidência em função do ângulo de incidência do feixe em relação à normal, calculado para um material onde $n = 2$. Observe que a reflexão da polarização paralela atinge um valor nulo próximo a 63° .

Define-se a refletância de uma interface (R) como a razão entre a intensidade do feixe refletido pela intensidade do feixe incidente [48]. Esta refletância será, portanto, igual ao quadrado do módulo do coeficiente de reflexão (\tilde{r}). A refletância em função do ângulo de incidência obtida com a mesma situação da Figura 4.3, irá apresentar um valor mínimo para a polarização paralela. Este mínimo ocorre para o ângulo no qual \tilde{r}_P se anula. A partir de (4-2) vemos que este ângulo é dado por

$$\theta_B = \arctan(n)$$

(4-3)

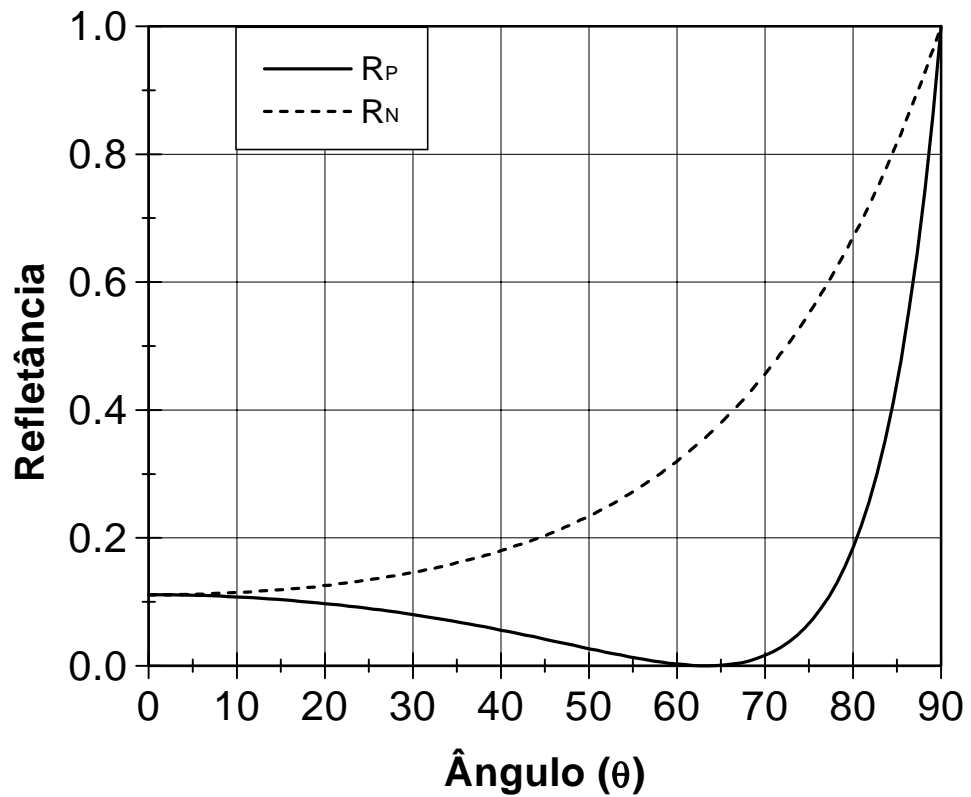


Figura 4.4: Refletância calculada para um meio dielétrico, com $n = 2$. A refletância da polarização paralela vai a zero para o ângulo de Brewster θ_B , enquanto a da polarização normal cresce monotonicamente.

Neste ângulo, chamado de ângulo de Brewster, o feixe refletido por um dielétrico perfeito ($\kappa=0$) será totalmente polarizado. A componente do feixe paralela ao ângulo de incidência será nula. Note ainda que nesta condição a soma do ângulo de reflexão e do ângulo de transmissão, dado pela lei de Snell [38], é igual a 90° ($\theta_R + \theta_T = 90^\circ$).

Para entendermos como o campo elétrico refletido de um feixe com polarização paralela se anula no ângulo de Brewster, vamos analisar a geração deste campo pela vibração dos elétrons do material. O feixe transmitido dá origem à vibração dos elétrons, formando pequenos dipolos oscilantes que irradiam em todas as direções. As contribuições dos dipolos oscilando na superfície do material irão gerar o feixe refletido, formando um ângulo igual ao ângulo de incidência. Isto pode ser verificado fazendo a construção da frente de onda refletida pelo princípio de Huygens.

Se a direção da propagação é dada pela interferência construtiva da radiação destes dipolos, a intensidade total irá depender da intensidade irradiada por cada

dipolo nesta direção. A irradiação de um dipolo na direção do seu momento é, no entanto, nula [20]. Quando o feixe refletido for paralelo ao momento dos dipolos, e portanto perpendicular à direção de propagação do feixe transmitido, sua intensidade será nula. Temos então a condição de Brewster (Figura 4.5).

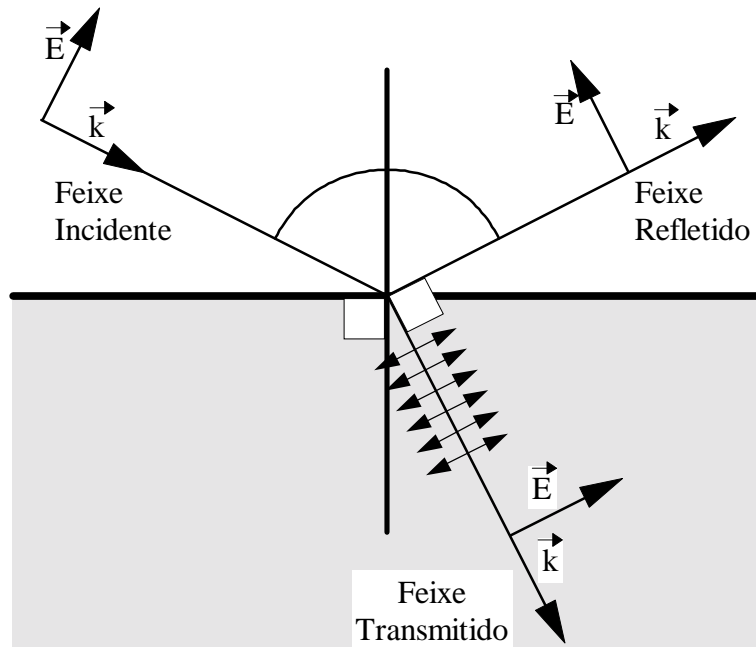


Figura 4.5: Condição de Brewster para reflexão polarizada. Quando o feixe refletido for ortogonal ao feixe transmitido, a contribuição da radiação dos dipolos é nula.

Toda esta descrição foi feita para um meio transparente, onde a absorção é muito pequena. No caso de um meio absorptivo ocorrerá ainda um mínimo de intensidade para um feixe de polarização paralela, porém agora este valor mínimo não será nulo, como podemos ver na Figura 4.6, nem corresponderá mais a um ângulo dado por (4-3). Neste caso não temos a condição de Brewster, porém podemos empregar este valor mínimo para aumentar a razão entre o termo não-linear e o termo linear da reflexão.

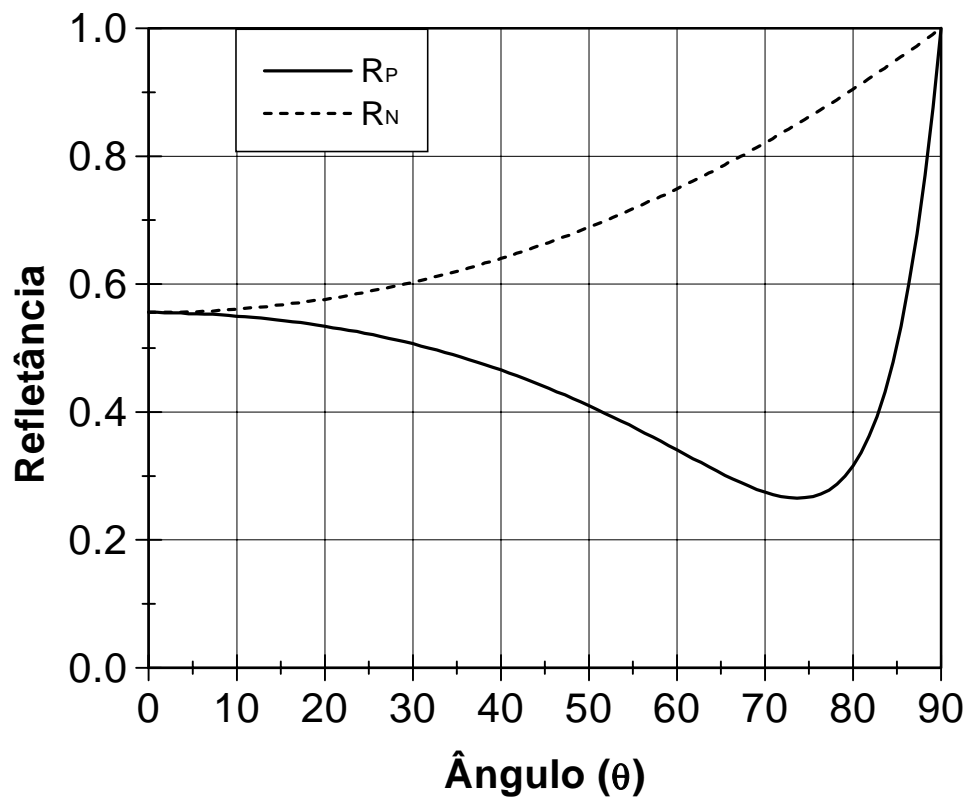


Figura 4.6 :Refletância para um feixe com polarização paralela (R_P) e para um feixe com polarização normal (R_N) ao plano de incidência para um material absorptivo. Neste caso, o coeficiente de extinção κ não é nulo ($\kappa=1,5 n$).

Vemos que, tanto para um meio absorptivo como para um meio transparente, o módulo do coeficiente de reflexão passa por um mínimo para uma polarização paralela do feixe. Uma vez que no método de varredura Z de Reflexão a distorção de fase e amplitude do sinal refletido pela superfície é inversamente proporcional à parte linear da reflexão (equação (3-50)), podemos esperar um aumento relativo desta distorção quando o feixe estiver incidindo com um ângulo próximo ao mínimo de intensidade refletida.

Mostraremos na próxima seção o efeito que os termos não-lineares da refração e da absorção irão ter sobre a reflexão. Em especial, estudaremos o comportamento da reflexão próximo ao ângulo de Brewster, ou o ângulo de mínima intensidade refletida considerando o meio absorptivo.

4.2. Reflexão não-linear próximo ao ângulo de Brewster

Estudaremos agora os efeitos que os termos não-lineares terão sobre um feixe polarizado que incida sobre uma amostra mantendo um ângulo θ com a normal. Em especial, estamos interessados nos efeitos que a não-linearidade pode induzir nas proximidades do ângulo de Brewster.

Para uma variação pequena no índice de refração ($\Delta\tilde{n} \ll \tilde{n}_0$) podemos expressar a reflexão por

$$\tilde{r} = \tilde{r}_0 + \frac{d\tilde{r}_0}{d\tilde{n}} \cdot \Delta\tilde{n} = \tilde{r}_0 [1 + \hat{r}(\theta) \Delta\tilde{n}(\rho, z)] \quad (4-4)$$

onde definimos \hat{r} como

$$\hat{r}(\theta) = \left[\frac{\partial \tilde{r}_0}{\partial \tilde{n}} \right] \cdot \frac{1}{\tilde{r}_0(\theta)} \quad (4-5)$$

Calculando esta razão para um feixe de polarização paralela concluímos que

$$\hat{r}_p(\theta) = \frac{2\tilde{n}^3 \cos(\theta) - 4\tilde{n} \cos(\theta) \sin^2(\theta)}{\tilde{n}^4 \cos^2(\theta) - \tilde{n}^2 + \sin^2(\theta)} \cdot [\tilde{n}^2 - \sin^2(\theta)]^{-1/2} \quad (4-6)$$

e com uma polarização normal

$$\hat{r}_n(\theta) = \frac{-2\tilde{n} \cos(\theta)}{\cos(\theta) - \sqrt{\tilde{n}^2 - \sin^2(\theta)}} \cdot [\tilde{n}^2 - \sin^2(\theta)]^{-1/2} \quad (4-7)$$

Como vimos, para a polarização paralela o módulo de \tilde{r}_0 passa por um valor mínimo para certos ângulos. Em uma medida de Varredura Z iremos observar a variação relativa da reflexão, a qual será proporcional ao valor de \hat{r} . Podemos dizer que quanto maior for \hat{r} , maior será a sensibilidade da medida. Definindo um fator de sensibilidade na montagem como o módulo de \hat{r} ($S = |\hat{r}|$), chegamos aos resultados mostrados na Figura 4.7 para um material transparente e na Figura 4.8 para um material absortivo.

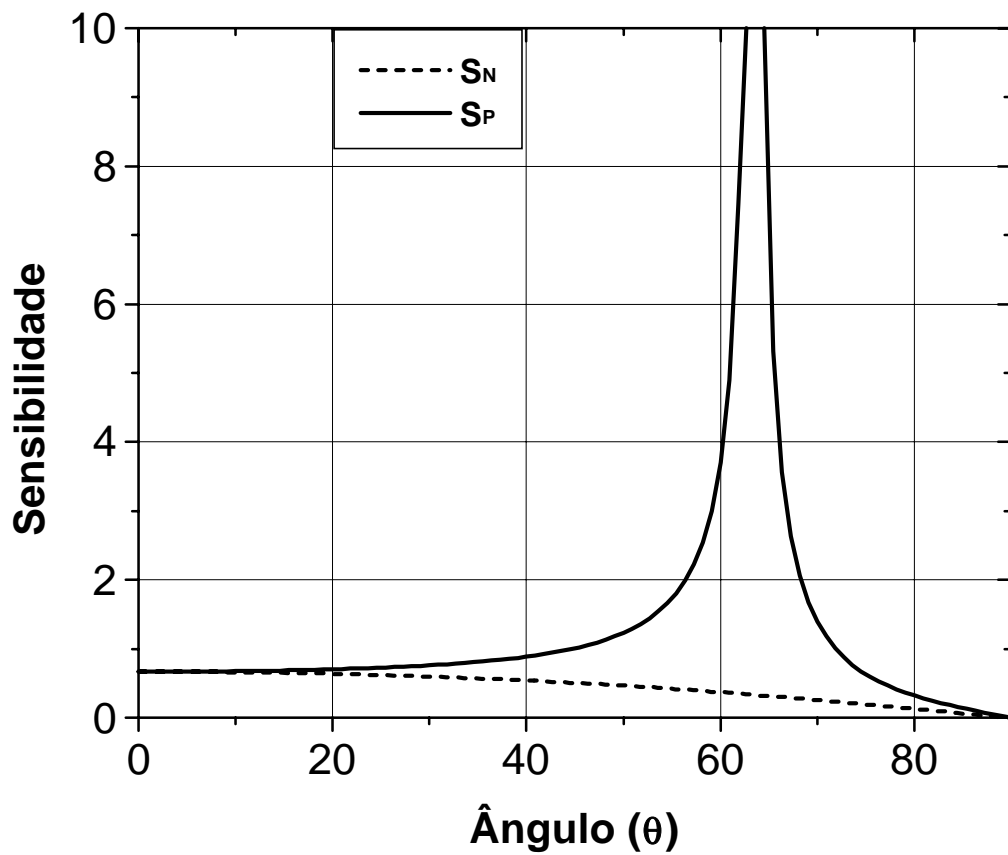


Figura 4.7: Sensibilidade (S) em uma medida de Varredura Z de Reflexão Inclinada para incidência paralela e perpendicular sobre uma amostra transparente, com $n_0=2$, para diferentes ângulos de incidência. Para incidência normal teremos $S_N(0) = S_P(0) = 0,67$.

Conforme nossa definição para a sensibilidade, esperamos ver um aumento dos efeitos não-lineares na reflexão quando \tilde{r}_0 passar por um mínimo. No caso de materiais absorptivos, vemos um aumento de 2,3 vezes na sensibilidade no ponto de $|\tilde{r}_0|$ mínimo. Este aumento é muito mais intenso em materiais transparentes (Figura 4.7) quando nos aproximamos do ângulo de Brewster. Neste caso, à medida que $|\tilde{r}_0|$ se aproxima de θ_B a sensibilidade aumenta bruscamente.

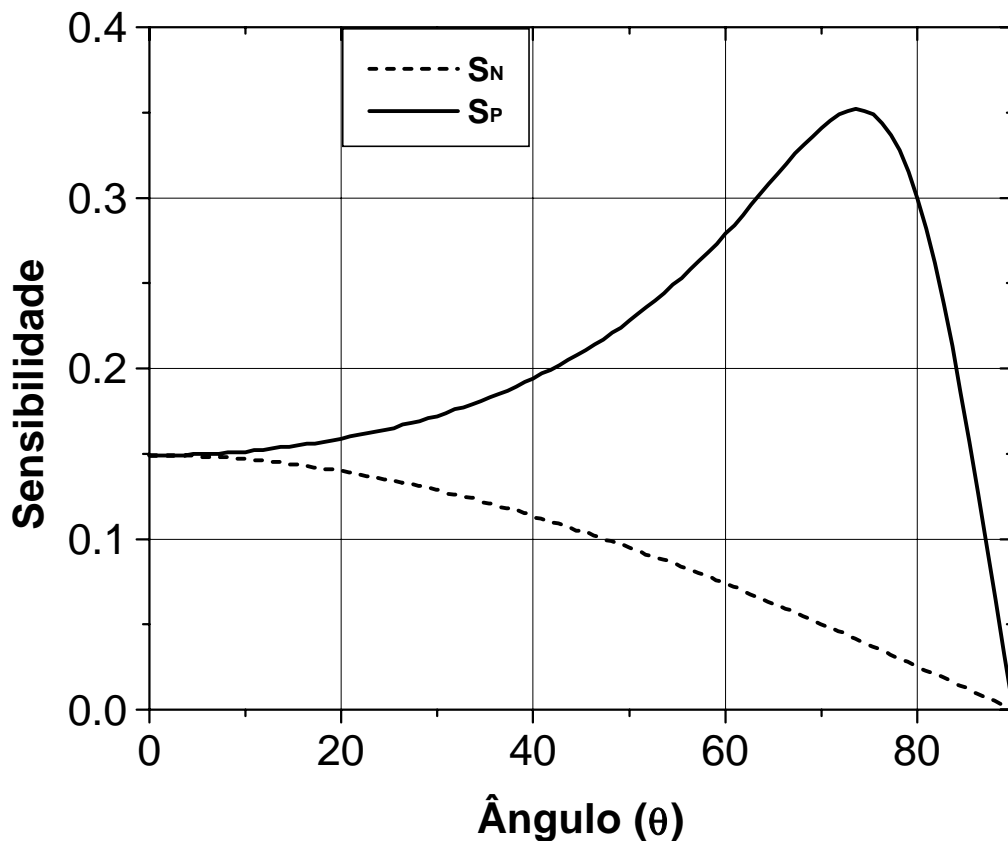


Figura 4.8: Sensibilidade (S) para incidência paralela e perpendicular sobre uma amostra absorptiva com $n_0=2$ e $\kappa_0=1,5 n_0$, para diferentes ângulos de incidência. $S_N(0) = S_P(0) = 0,149$.

Vemos ainda que em ambos os casos temos uma redução de sensibilidade para a polarização normal. Tal fato é coerente com a observação que a parte linear da reflexão nesta polarização sofre um aumento com o aumento do ângulo de incidência. Fica claro que a variação relativa da reflexão deve sofrer uma redução à medida que o ângulo aumenta.

Iremos em seguida analisar como se comportará o feixe gaussiano refletido por uma amostra em uma Varredura Z de Reflexão quando este feixe tem uma incidência inclinada e uma polarização paralela ao plano de incidência.

4.3. Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada

Iremos mostrar nesta seção como se comporta o feixe refletido em uma montagem semelhante à empregada na varredura Z de reflexão, porém empregando agora uma incidência inclinada do feixe, conforme vemos na Figura 4.9.

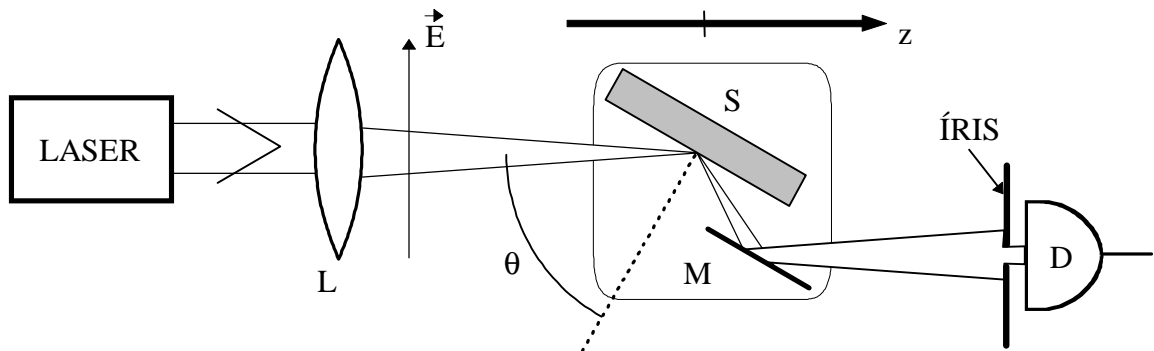


Figura 4.9: Montagem para medida de Varredura Z de Reflexão com incidência inclinada. Semelhante ao empregado na varredura Z de Reflexão, temos um detetor (D) e uma íris para medir as distorções de fase inseridas pela amostra (A). O feixe refletido é desviado para o detetor pelo espelho M, solidário à amostra. A seta (E) indica a polarização do feixe incidente.

No método de Varredura Z de Reflexão, fizemos a expansão da reflexão em um termo não-linear de primeira ordem, proporcional à mudança do índice de refração complexo. Iremos agora repetir o processo, lembrando que o coeficiente de reflexão depende da polarização do feixe e do ângulo de incidência.

Ignoramos no nosso caso a variação do raio do feixe gaussiano durante sua reflexão pela superfície. Tal aproximação é válida no caso de um pequeno caminho óptico percorrido pela frente de onda do feixe entre o começo e o fim da reflexão. Esta aproximação é válida enquanto $\tan(\theta) w_0 \ll z_0$.

Vamos considerar ainda que a divergência do feixe seja pequena, ou seja, a curvatura da frente de onda é pequena o suficiente para considerarmos esta onda como uma onda plana para efeitos de reflexão. Como vimos, o coeficiente de reflexão e a sensibilidade são funções do ângulo de incidência. Se a frente de onda for curva, cada ponto da frente de onda terá um valor diferente de reflexão e sensibilidade. Iremos tomar a aproximação de frente de onda plana, considerando que a inclinação da frente de onda na região da cintura do feixe, dada aproximadamente por

$$\varphi(\rho, z) \cong \rho/R(z)$$

(4-8)

seja muito pequena. Vemos que o valor máximo da curvatura ocorrerá em $z = z_0$, e neste caso $\varphi = (k w_0)^{-1}$. Valores típicos de k (10^6 m^{-1}) e w_0 ($10 \text{ }\mu\text{m}$) mostram que a curvatura típica de um feixe empregado em uma medida de varredura Z é menor que $0,5^0$.

Considere um feixe incidente $E(\rho, z)$ (descrito pelas equações (3-2) a (3-7)) sobre a superfície da amostra. O feixe por ela refletido será dado por

$$E_R(\rho, z) = E(\rho, z) \tilde{r}(\theta) \quad (4-9)$$

onde o coeficiente de reflexão depende do ângulo de incidência e da polarização do feixe incidente. Iremos considerar que a polarização do feixe incidente é totalmente paralela ou totalmente normal ao plano de incidência. Como qualquer onda incidente pode ser decomposta nestas duas polarizações ortogonais, podemos analisar o caso da reflexão para qualquer polarização incidente.

Expandindo o coeficiente de reflexão em primeira ordem, mostrando a dependência explícita com o índice de refração, temos

$$E_R(\rho, z) = E(\rho, z) \cdot \tilde{r}_0 \cdot [1 + \hat{r}(\theta) \Delta \tilde{n}(\rho, z)] \quad (4-10)$$

onde \hat{r} foi definido nas equações (4-6) e (4-7), e o termo linear de reflexão \tilde{r}_0 em (4-1) e (4-2).

Vamos considerar inicialmente que a dependência do termo não-linear do índice de refração seja linear com a intensidade. Neste caso $\Delta \tilde{n} = \tilde{n}_2 I(\rho, z)$, e o feixe refletido pode ser expresso pela soma de dois feixes gaussianos, semelhante à equação (3-50). A única diferença é que devemos levar em conta a dependência de \tilde{r}_1 e \tilde{r}_0 com o ângulo θ .

Propagando o feixe refletido até o conjunto formado pelo detetor e pela íris, situados a uma distância d da cintura do feixe, teremos sobre a íris um campo elétrico dado por

$$E_d(\rho, z, \theta) = E_0 \frac{e^{-ikd}}{(1 + iz/z_0)} \tilde{r}_0(\theta) \left[\frac{1}{G_0} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_0}\right) + \frac{1}{G_1} \hat{r}(\theta) \frac{\tilde{n}_2 I_0}{1 + (z/z_0)^2} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_1}\right) \right] \quad (4-11)$$

onde os termos das duas gaussianas somadas para expressar o campo são dados por

$$\frac{1}{q'_m} = \frac{1 - g(z)/|G_m|^2}{d - z} - i \frac{1}{d_m |G_m|^2} \quad (4-12)$$

$$g(z) = 1 + \frac{d - z}{R(z)} \quad (4-13)$$

$$d_m = \frac{\pi w^2(z)}{\lambda(2m+1)} \quad G_m = g(z) - i \frac{(d - z)}{d_m} \quad (4-14) \quad (4-15)$$

Note que os termos nesta expressão são iguais aos que tínhamos para a varredura Z de transmissão. O motivo é que a distância da cintura ao detetor se mantém constante, diferente do caso da varredura Z de reflexão, onde a distância à cintura sofria uma mudança com o deslocamento da amostra. Como consequência, esperamos eliminar a redução da intensidade medida pelo detetor à medida que movimentamos a amostra no sentido positivo do deslocamento, a qual era observada na Varredura Z de Reflexão.

A intensidade medida pelo detetor será novamente dada por

$$R(z) = \frac{4\pi \int_0^{r_a} |E_d(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{S |r_0|^2 P} \quad (4-16)$$

Esta expressão pode ser simplificada no limite $r_a \rightarrow 0$ e $d \gg z_0$. Neste caso chegamos a uma expressão muito mais simples, envolvendo a parte real e a imaginária do produto $\hat{r} \tilde{n}_2 I_0$

$$R(x) = 1 - \frac{4x}{(x^2 + 1)(x^2 + 9)} \text{Im}[\hat{r} \tilde{n}_2 I_0] + \frac{2(x^2 + 3)}{(x^2 + 1)(x^2 + 9)} \text{Re}[\hat{r} \tilde{n}_2 I_0] \quad (4-17)$$

onde $x = z/z_0$.

Se fizermos a medida removendo a íris na montagem da Figura 4.9 e medirmos toda a intensidade do feixe refletido, teremos a reflexão dada por

$$R(z) = \frac{4\pi \int_0^{\infty} |E_R(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{|r_0|^2 P}$$

(4-18)

onde a transmitância da íris (S) foi definida em (3-24).

Se o termo não linear é proporcional à intensidade, esta expressão pode ser resolvida, levando a uma resultado mais simples

$$R(x) = 1 - \frac{1}{1+x^2} \operatorname{Re}[\hat{r} \tilde{n}_2 I_0]$$

(4-19)

Podemos concluir que o procedimento a ser empregado neste caso é o mesmo das outras medidas de varredura Z.. Uma varredura executada com a íris aberta fornece um conjunto de dados aos quais realizamos o ajuste da equação (4-19), obtendo deste modo a parte real do produto $\hat{r} \tilde{n}_2 I_0$. Com os resultados de uma varredura Z com a íris fechada, podemos realizar o ajuste para a parte imaginária de $\hat{r} \tilde{n}_2 I_0$, empregando a equação (4-17).

Neste caso, tal qual na varredura Z de Reflexão, medimos a variação normalizada do coeficiente de reflexão para a partir deste valor obtermos o índice de refração não-linear. Para materiais transparentes, onde $\kappa_0 \ll n_0$, os termos da reflexão r_1 e r_0 serão números reais. Neste caso a parte real da variação relativa da reflexão será diretamente proporcional a n_2 e a parte imaginária desta variação será proporcional a κ_2 .

Note que o aumento da sensibilidade no método proposto ocorre por medirmos a variação da reflexão normalizada pela parte linear. A redução do termo linear na normalização leva ao aumento da variação relativa do sinal. Isto é interessante pois a dificuldade encontrada na prática não é medir sinais pequenos, mas medir flutuações pequenas do sinal quando temos sobreposto um grande número de efeitos que geram a flutuação da intensidade do sinal medido, como por exemplo flutuações da fonte (laser), perturbações mecânicas no deslocamento da amostra, ruído captado pela fiação, irregularidades na amostra, entre outros.

O método proposto se aplica à análise de amostras cuja mudança do índice de refração com a intensidade se dá de forma linear ($\Delta n = n_2 I$). Isto não é mais válido no caso de absorvedores saturáveis, onde a mudança do índice de refração apresenta um valor limite. Veremos agora uma extensão do método para sua aplicação a estes materiais.

4.4. Caso particular: aplicação a absorvedores saturáveis

Para absorvedores saturáveis, o campo sobre a íris não pode ser expresso pela equação (4-11), pois a decomposição em feixes gaussianos [40] não é mais válida. Iremos empregar agora a transformada de Hankel [39] para chegar ao campo sobre a íris.

No caso de um absorvedor saturável a mudança no índice de refração provocada por um feixe incidente é dada por

$$\Delta\tilde{n}(\rho, z) = \frac{\tilde{n}_2 I(\rho, z)}{1 + I(\rho, z)/I_s} \quad (4-20)$$

O campo sobre a íris é dado por uma transformada de Hankel do feixe refletido (4-10), que irá expressar a propagação do campo até o anteparo situado a uma distância d do centro do feixe gaussiano

$$E_d(\rho') = \int_0^\infty \rho d\rho J_0\left(\frac{k\rho'\rho}{d-z}\right) E_R(\rho, z) \quad (4-21)$$

onde ρ' é a coordenada radial do campo sobre o anteparo.

Conhecendo o campo sobre o anteparo, podemos calcular a intensidade normalizada, do mesmo modo que foi feito para o campo calculado a partir da decomposição em feixes gaussianos, como na equação (3-25). A integral do campo sobre a íris irá fornecer a reflexão normalizada

$$R(z) = \frac{\int_0^{r_a} |E_d(\rho', z')|^2 \rho' d\rho'}{S |\tilde{r}_0|^2 \int_0^\infty |E_t(\rho, z)|^2 \rho d\rho} \quad (4-22)$$

onde S foi definido em (3-24). Se fizermos uma medida com a íris aberta teremos neste caso

$$R(z) = 1 + 2 \cdot \text{Re}[\tilde{r} \tilde{n}_2 I_s] \cdot \frac{\int_0^\infty \frac{I^2(\rho, z)}{I(\rho, z) + I_s} \rho d\rho}{\int_0^\infty I(\rho, z) \rho d\rho} \quad (4-23)$$

Podemos repetir o procedimento descrito anteriormente para determinarmos o valor de n_2 e κ_2 na amostra, realizando uma medida com a íris aberta para obter o termo real da reflexão normalizada, seguida por uma medida com a íris fechada, para obter a parte imaginária da reflexão normalizada.

4.5. Resultados teóricos e análise do método proposto

Podemos mostrar diversas vantagens que o modelo proposto apresenta no estudo de efeitos não lineares em superfícies de materiais transparentes e opacos. O método apresenta, como vantagem inicial, eliminar a parte linear decrescente mostrada na Figura 3.13 e na Figura 3.14, provocadas pelo aumento do caminho ótico da cintura do feixe ao detetor. Torna-se assim mais evidente a ocorrência de um efeito não-linear na reflexão pela amostra.

A grande vantagem, no entanto, é o aumento da sensibilidade na montagem. Com a escolha adequada da cintura do feixe, podemos reduzir a divergência deste para $0,1^0$. Nesta situação, trabalhando em uma região onde a inclinação da curva de sensibilidade (Figura 4.7 e Figura 4.8) não seja muito grande e a aproximação onde tomamos um mesmo valor de \tilde{r} para toda a frente de onda seja válida, podemos aumentar a sensibilidade da medida em até 30 vezes para um material transparente.

Em materiais opacos, o aumento dependerá do valor da absorção do material. Quanto menor for a absorção, maior será o aumento. Nestes materiais, o aumento da sensibilidade próximo ao ângulo de reflexão mínima é menos acentuado que no caso de materiais transparentes. A restrição quanto à curvatura da frente de onda é facilmente satisfeita.

As curvas obtidas para medidas de Varredura Z de Reflexão com incidência inclinada são mostradas a seguir. Como observamos na Varredura Z de Reflexão, a variação do índice de refração passa a ser responsável pela variações da amplitude (Figura 4.11) enquanto que as variações no coeficiente de extinção da amostra levam a distorções de fase no feixe refletido (Figura 4.10). Vemos ainda o forte efeito que o ângulo de incidência passa a ter em nossas medidas. É interessante notar como o sinal da distorção induzida muda conforme estejamos acima ou abaixo do ângulo de Brewster no material.

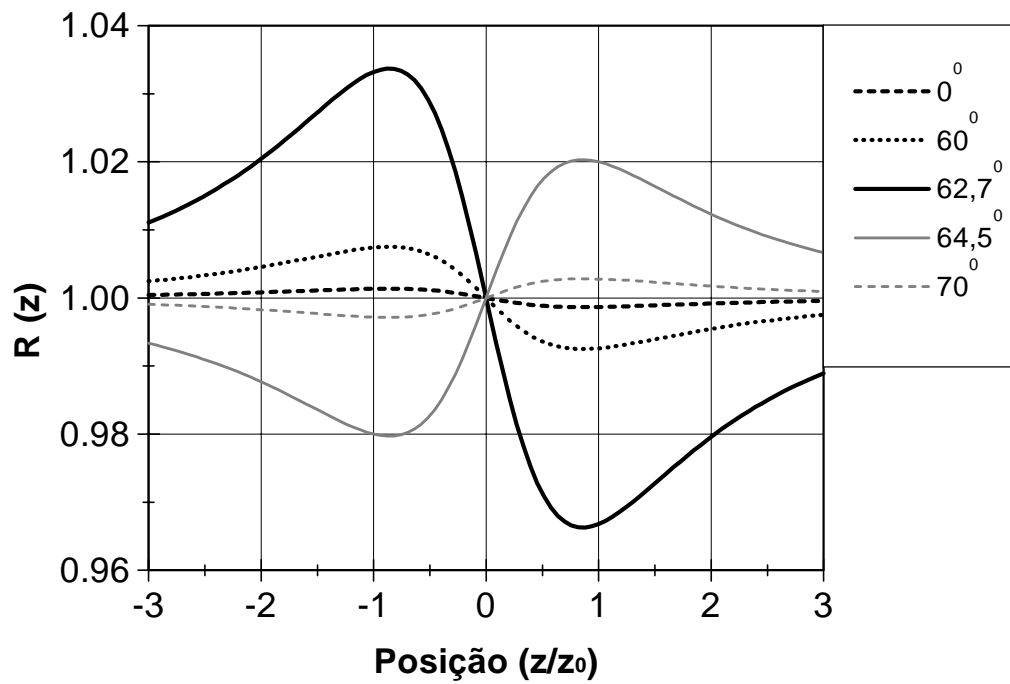


Figura 4.10 : Curvas teóricas para Varredura Z de Reflexão Inclinada usando uma íris fechada para um material com $n_0=2$, $\kappa_2 I_0=0.01$, $n_2 I_0=0$, com diferentes ângulos de incidência.

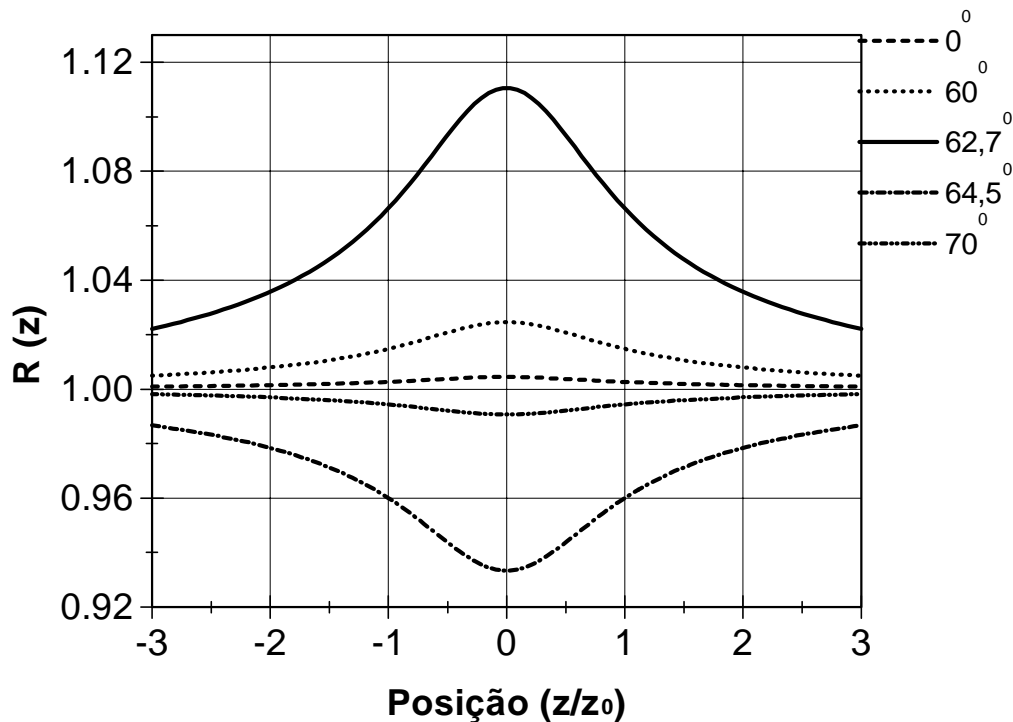


Figura 4.11: Curvas teóricas de Varredura Z de Reflexão Inclinada usando uma íris fechada para um material com $n_0=2$, $n_2 I_0=0.01$, $\kappa_2 I_0=0$, com diferentes ângulos de incidência.

Em materiais com forte absorção podemos esperar que o aumento obtido não será tão pronunciado. Devemos notar ainda que, como o coeficiente de reflexão apresenta uma parte real e uma parte imaginária, o resultado obtido para um termo não-linear puramente dispersivo ($\kappa_2=0$) incluirá tanto uma distorção de fase quanto uma variação de amplitude do sinal refletido (Figura 4.12). A distorção de fase e amplitude variam com o ângulo de incidência na amostra. O mesmo ocorre se a amostra tiver uma não-linearidade puramente absorptiva ($n_2=0$). Teremos então a situação da Figura 4.13.

O resultado neste caso não é tão imediato, como era a situação para um material transparente. Podemos porém realizar a medida em dois ângulos diferentes e através do ajuste da função nestes dois pontos obter o resultado para n_2 e κ_2 . As curvas mostradas irão diferir muito conforme a absorção do material, chegando ao limite das curvas obtidas para um material transparente quando $\kappa_0 \ll n_2$.

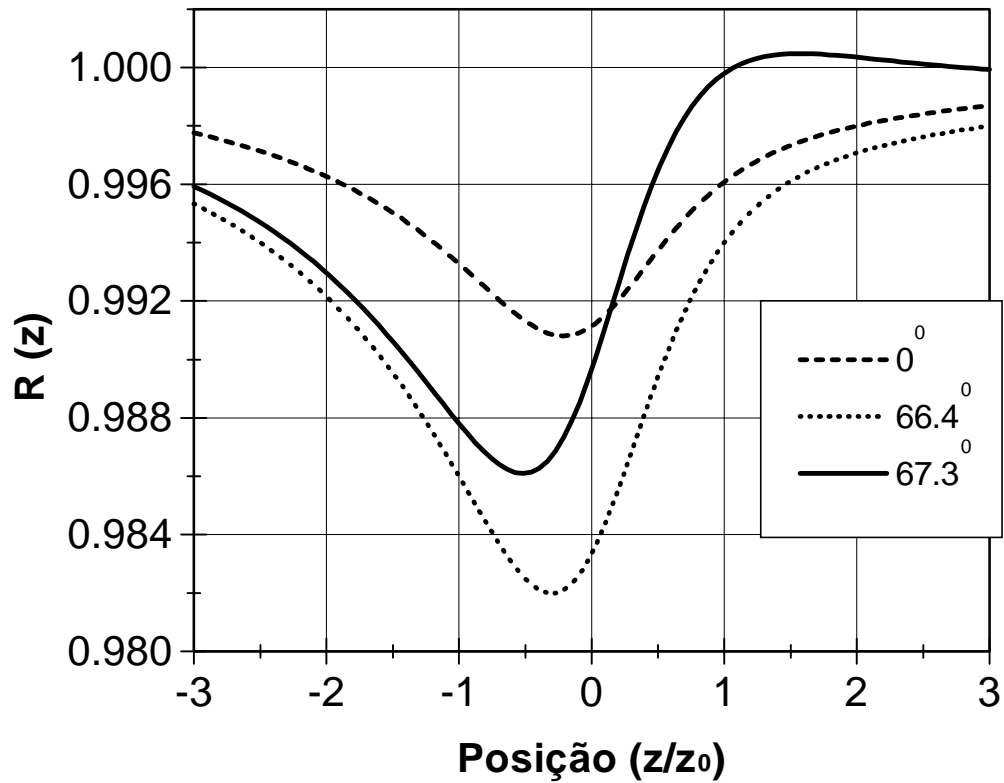


Figura 4.12: Curvas teóricas de Varredura Z de Reflexão Inclinada usando uma íris fechada para um material com $n_0=2$, $k_0=3$, $n_2I_0=0.1$, $\kappa_2I_0=0$, com diferentes ângulos de incidência. Podemos ver que a curva resultante refere-se a uma variação na fase e na amplitude do feixe refletido.

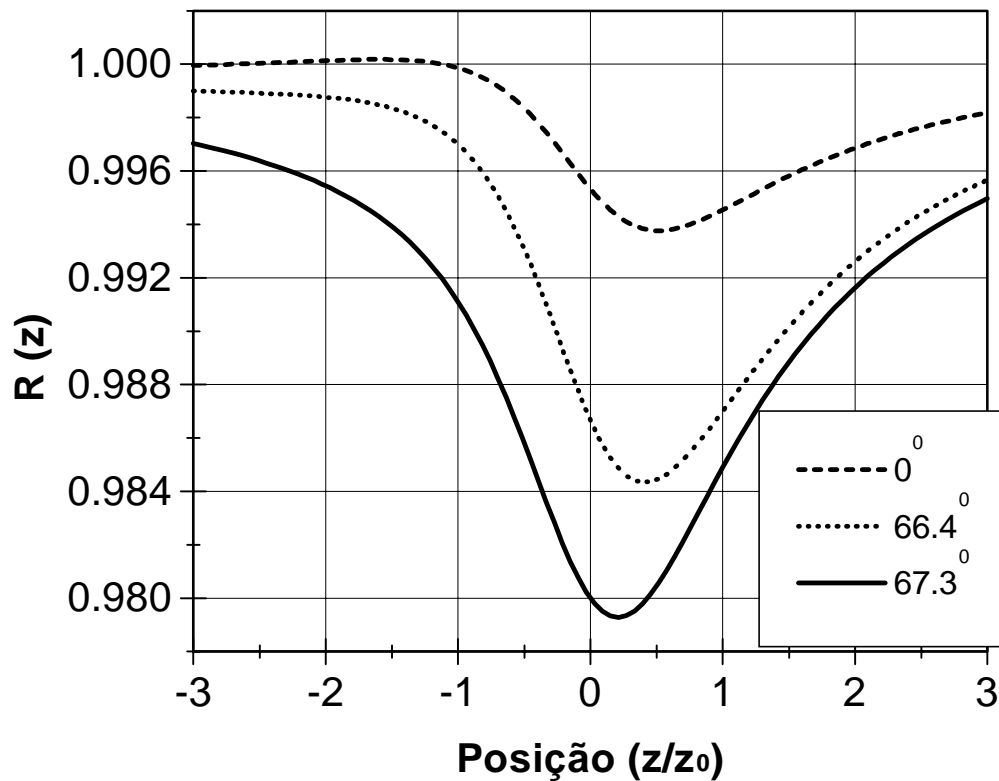


Figura 4.13: Curvas teóricas de Varredura Z de Reflexão Inclinada usando uma íris fechada para um material com $n_0=2$, $k_0=3$, $n_2I_0=0$, $\kappa_2I_0=0,1$, com diferentes ângulos de incidência. Comparando com as curvas da figura anterior, vemos que não se pode distinguir imediatamente uma não-linearidade absorptiva ou dispersiva no material.

Em uma medida de Varredura Z com Incidência Inclinada, a grande variação relativa no coeficiente de reflexão pode ser entendida como o afastamento da condição de Brewster para o feixe incidente no material, devido a mudança do índice de refração no meio. Esta mudança do índice de refração fará com que o feixe transmitido e o refletido não mantenham mais um ângulo reto entre si, desviando o feixe transmitido à medida que ocorre o aumento da intensidade. Com isso, os dipolos oscilantes não estarão mais ortogonais ao feixe refletido, e com isso a intensidade de irradiação por eles transmitida aumentará.

Note que o aumento previsto na sensibilidade não ocorre pelo aumento da intensidade do feixe penetrando no cristal. Ao nos aproximarmos do ângulo de Brewster, a redução na intensidade do feixe refletido corresponde a um aumento da intensidade do feixe no interior da amostra. Isto provocará um aumento na mudança do índice de refração e no coeficiente de absorção, porém tal mudança será pequena, e seu efeito bem menor que o esperado pela redução do termo linear da reflexão, na

qual se baseia nosso método. Nos cálculos consideramos a intensidade no interior da amostra ao invés da intensidade incidente, de modo a separar os dois efeitos.

Apresentamos no capítulo 5.3.3 deste trabalho resultados experimentais obtidos em medidas de Varredura Z de Reflexão Inclinada em absorvedores saturáveis, onde a limitação da mudança do índice de refração pela intensidade de saturação do material impede a realização de uma medida de Varredura Z de Reflexão com incidência normal. Tal medida não seria possível sem o desenvolvimento da técnica aqui apresentada, e este resultado poderá ser ampliado para o estudo de materiais semicondutores acima da energia de banda e efeitos de superfície em materiais transparentes como o cristal líquido, entre outras possibilidades.

5. Montagem Experimental

Apresentamos neste capítulo uma breve descrição dos equipamentos empregados nas medidas de não-linearidades óticas em cristais dopados com cromo. Mostramos ainda as montagens empregadas, e discutimos formas de contornar problemas relativos a instabilidades mecânicas na montagem, flutuação de potência do laser, irregularidades na amostra, através do emprego adequado de técnicas de normalização.

5.1. Equipamento

Nas diversas montagens realizadas para caracterização de amostras e desenvolvimento das técnicas, foram empregados diferentes tipos de equipamentos óticos, tais como lentes, espelhos, divisores de feixe e íris.

Para que a realização de medidas fosse automatizada, aumentando a velocidade e a confiabilidade das medidas, empregamos uma placa de aquisição de dados e programas específicos para esta placa por nós desenvolvidos. Uma breve descrição do equipamento é mostrada a seguir.

-Placa de Aquisição de Dados:

A placa por nós montada visa a automação em processos de controle e aquisição. ela é instalada diretamente no barramento XT de um microcomputador, através do qual realiza-se o controle e aquisição de dados.

A placa apresenta doze saídas digitais controladas pela CPU do computador, duas saídas analógicas e oito entradas analógicas multiplexadas.

A leitura de sinais analógicos é feita por um conversor A/D (AD574J) que converte sinais entre -5 e 5 V em 12 bits de dados, com uma incerteza igual ao bit menos significativo (2,4 mV). O tempo de conversão do dado é de cerca de 35 μ s. Por utilizarmos este conversor para medir o sinal de diversos detetores em uma mesma montagem, empregamos um sistema de multiplexação da entrada, que permitia a leitura de até oito sinais alternadamente. Nas medidas realizadas empregamos no máximo duas entradas analógicas, de modo que somando o tempo de conversão do dado para cada entrada temos um intervalo entre medidas de 70 μ s. A impedância de entrada do sistema é elevada pelo uso de um amplificador na entrada do conversor A/D, garantindo uma impedância de entrada de 1 M Ω .

As saídas digitais são empregadas para controlar o sistema de translado, responsável pelo deslocamento da amostra ao longo do feixe. Seu acesso, bem como o do conversor A/D, é feito pelo programa desenvolvido para medida.

As saídas analógicas podem ser usadas em algumas montagens como fonte para os fotodiodos, possibilitando uma montagem compacta e estável quanto a tensão de alimentação. O limite de corrente fornecido pelas saídas (25 mA) é

suficiente para tal aplicação, enquanto que o valor de tensão (entre 0 e 8 V) permite que o sinal obtido no fotodiodo estivesse dentro da faixa de valores medidos pelo conversor A/D.

-Sistema de Translado:

O sistema empregado para deslocar a amostra ao longo do feixe consiste de um motor de passo alimentado por uma fonte dedicada, a qual é controlada por duas saídas digitais da placa de aquisição. O motor de passo apresenta um grande torque aliado a uma boa precisão de posicionamento, sendo acoplado à parte mecânica do translador por um sistema de correia dentada.

Este sistema mecânico, acoplado ao motor, permite uma resolução de posição de 1/300 mm, muito menor que o intervalo de deslocamento típico entre duas posições sucessivas de aquisição. Deste modo temos uma precisão muito grande quanto ao posicionamento da amostra.

A base do translador é larga o suficiente para acoplar diversos equipamentos óticos ao conjunto, permitindo realizar a medida de Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada sem problemas de disposição dos componentes óticos e do cristal. Devido o elevado torque do motor, montagens mais pesadas podem ser empregadas no conjunto, conforme a necessidade da medida. Podemos, por exemplo, colocar uma amostra dentro de um pequeno forno para verificar o comportamento desta em diferentes temperaturas, ou mesmo empregar um criostato de pequenas dimensões.

-Sistema de Detecção:

Em todas as montagens foram empregados detetores de silício da Thorlabs (DET100). Tais detetores incluem no conjunto uma bateria de 12 V, necessitando apenas de uma terminação externa. O conjunto fotodiodo-fonte atua como uma fonte de corrente constante, cujo valor é proporcional à potência do feixe incidente. O valor da terminação determina a tensão de saída do detetor e a velocidade de resposta do conjunto.

O máximo de velocidade do detetor é obtido para uma terminação de 50 Ω , o que leva também a uma redução de ruído por casamento de impedância nos cabos coaxiais empregados na montagem. Neste caso a resposta é de 10 ns, porém a tensão obtida para uma potência de 1 mW (limite da região linear) é de 50 mV, muito abaixo, portanto, do fundo de escala do conversor A/D da placa de aquisição.

Empregando uma terminação de 10 k Ω perde-se a velocidade do detetor, caindo para 50 μ s. A resposta, porém sobe para 3 V, permitindo uma leitura com boa precisão (melhor que 0,1%) pela placa de aquisição.

Medidas de feixes menos intensos empregam um detetor com amplificador acoplado (PDA-50 da Thorlabs), que alia um baixo tempo de resposta (tipicamente < 50 μ s) a um nível de tensão de saída ajustável pelo ganho do amplificador. Com isso, a medida de feixes cuja intensidade forneceria uma resposta em tensão bem

menor que 1 V empregando os detectores DET100 passam a apresentar valores de tensão mais próximos do fundo de escala devido ao ganho do amplificador.

Para uma primeira análise do sinal, antes de iniciar a aquisição dos dados pela placa, empregamos um osciloscópio digital (TDS-320 da Tektronix) com uma resposta de 500 Msample/s (100 MHz) e uma resolução máxima de 5 mV.

Tal equipamento permite ainda a interface com o microcomputador através da interface serial, convertendo os dados em um arquivo para tratamento posterior em programas dedicados. Tal sistema permitirá a implantação futura de um sistema automatizado de medida de efeitos rápidos (da ordem de ns), aproveitando a resolução temporal dos detectores e a velocidade de aquisição do osciloscópio, muito superior à da placa de aquisição.

No entanto, como nas medidas realizadas observamos efeitos cuja escala de tempo é da ordem de ms, a placa de aquisição satisfaz as necessidades da experiência realizada.

-Programas de Aquisição:

Os programas foram desenvolvidos pelo Grupo de Ótica Quântica e Não-Linear, e executam o translado da amostra a partir da posição final até o ponto de início da aquisição, e realizavam alternadamente a leitura do sinal em até dois detectores, empregando as entradas analógicas, e o deslocamento da amostra em intervalos regulares ajustados pelo usuário. O processo era repetido até completar o deslocamento total, cuja extensão é determinada pelo operador.

Os valores adquiridos em cada posição da amostra podiam ser uma média de 1000 aquisições para um sinal contínuo, ou uma média de diversos ciclos, no caso de um sinal chaveado por um obturador mecânico (“chopper”). O número de ciclos para realizar a média é determinado pelo usuário. Neste caso, além de registrar a posição da amostra, ele realiza a aquisição de dados resolvidos no tempo, mostrando o valor médio da evolução temporal do sinal em cada posição z.

Os resultados são salvos em arquivos, permitindo o tratamento posterior dos dados adquiridos através de programas específicos.

-Laser:

Empregamos nas medidas lasers de Argônio (Ar^+), contínuos (CW), operando em potências entre 100 mW e 1,5 W. As medidas foram realizadas com o comprimento de onda de 514,5 nm, sendo tal comprimento de onda escolhido por estar próximo à ressonância de absorção do Cromo presente nas matrizes dopadas. Com isso, garantimos uma boa absorção no sinal e uma grande população no estado excitado dos átomos do dopante. Desse modo esperamos um valor relativamente alto de n_2 .

Para verificar o modo gaussiano do feixe deslocamos uma lâmina diante do feixe, medindo assim seu diâmetro. A potência transmitida era medida em cada

posição da lâmina, resultando em uma curva conhecida como função erro complementar

$$P(x) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^x I(x', y') dx' dy' = C \int_{-\infty}^x e^{-2x^2/w^2} dx' \quad (5-1)$$

onde C é uma constante multiplicativa, e w é o raio do feixe sobre a lâmina, cuja borda se situa na posição x.

A derivada de P(x) é uma gaussiana, de modo que pelo ajuste dos dados obtidos a esta curva, podemos estimar o diâmetro do feixe e verificar se este corresponde ao modo gaussiano (TEM₀₀).

Observamos que o tamanho do feixe muda para cada valor de potência, o que nos leva a preferir o uso de atenuadores de densidade neutra para controlar a intensidade sobre a amostra, mantendo o laser em uma potência fixa. Temos assim a vantagem de manter o laser fixo em uma certa potência, na qual ele mantém o comportamento mais estável do que seria obtido com a variação de tempo em tempo de sua potência. A estabilização térmica da cavidade se mantém, e como resultado a variação da intensidade ao longo da medida é menor.

5.2. Métodos de normalização do sinal

Como vimos no capítulo 3, as técnicas usando o método da varredura Z empregam um detetor para medir as variações de fase e amplitude provocadas pelos efeitos não-lineares da amostra. Estas medidas de intensidade estão sujeitas a diversas fontes de erro.

Uma das fontes é a própria flutuação de potência do laser empregado na medida. Esta flutuação pode ser periódica, em pequenos intervalos, causada principalmente por instabilidades no circuito eletrônico. Tais flutuações periódicas foram experimentalmente observadas, geralmente com frequências ligadas à alimentação da rede elétrica.

Outra forma de flutuação da potência do laser é a que ocorre em intervalos de tempo mais longos. Neste caso, o aquecimento do laser e do circuito eletrônico, problemas variação da pressão do gás, alinhamento inadequado do laser, entre outras fontes, fazem com que a potência sofra uma variação ao longo do tempo, durante todo o intervalo da medição.

Tais problemas tornam necessário o emprego de técnicas para normalização do sinal. Apresentamos a seguir duas dessas técnicas.

5.2.1. Normalização por dois detetores

Na impossibilidade de uso de um laser perfeitamente estabilizado, o uso de um segundo detetor, monitorando a potência do laser, permite normalizar o sinal do primeiro detetor, minimizando a flutuação do sinal medido (Figura 5.1).

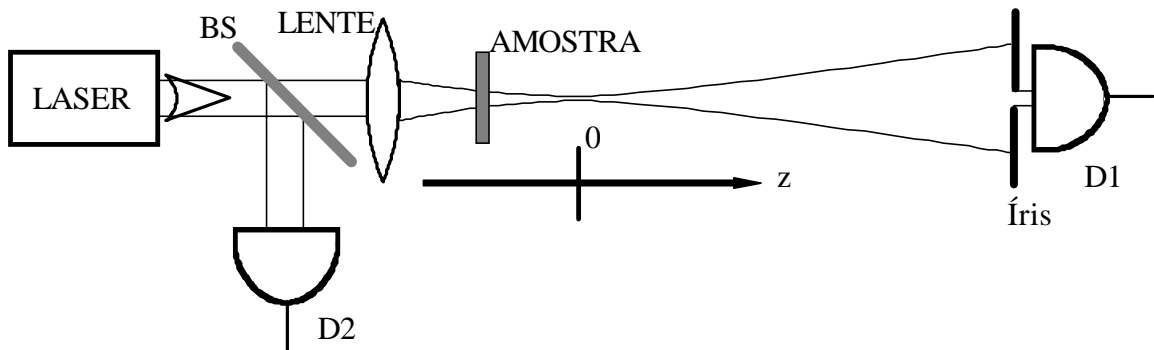


Figura 5.1 :Montagem básica da experiência de Varredura Z. O detetor que foi adicionado à montagem (D2) irá monitorar a potência do laser incidente. O sinal do detetor D1 será normalizado pelo sinal medido por D2 para compensar as flutuações de potência. O divisor de feixe (BS) irá desviar uma pequena parte do feixe para o segundo detetor.

Para as flutuações de intensidade em intervalos pequenos de tempo, a aquisição repetida do sinal e a média entre as diversas aquisições irá reduzir os efeitos desta flutuação.

Ainda que estas medidas possam compensar o efeito em primeira ordem, a flutuação em si irá gerar variações na amplitude do termo não linear $\Delta n(I)$. Por este motivo a estabilidade do laser é fundamental para as medidas, e um pré-aquecimento antes de iniciar a tomada de dados, além de um cuidadoso alinhamento do equipamento, são indispensáveis.

A normalização empregada não compensa perturbações causadas por imperfeições da amostra. Danos à face da amostra ou partículas de pó na sua superfície podem gerar figuras de difração que se sobrepõem ao sinal medido e provocam diminuição ou aumento na intensidade medida por D1. Além disso, se as faces do cristal não forem paralelas, o feixe sofrerá um desvio ao atravessar a amostra. Quando a deslocarmos, iremos deslocar o feixe que incide sobre a íris, tirando o conjunto fora do alinhamento. Neste caso, o estudo da resposta temporal do sinal pode controlar tal problema.

5.2.2. Resolução temporal

Para eliminar o erro e a flutuação do sinal medido, provocada por efeitos lineares da amostra, Sheik-Bahae sugeriu [35] a realização de duas medidas de Varredura Z separadamente, uma a baixa potência e outra em potência mais alta. A diferença entre as duas medidas, devidamente normalizadas, iria apresentar apenas o efeito não-linear, eliminando a parte linear do sinal medido.

Tal processo torna a medida mais demorada, e nem sempre apresenta bons resultados. No caso de amostras fluidas, por exemplo, este método se torna inviável, pois a difusão da amostra irá introduzir variações ao longo da medida, e não adiantará repetir o experimento em duas potências diferentes. Este fato é bem visível, por exemplo, no estudo de cristais líquidos.

Em alguns materiais, no entanto, o estudo da resolução temporal do sinal permite eliminar os termos lineares [47]. Tomando como exemplo os absorvedores saturáveis, vemos pela equação (2-64) que o efeito não-linear leva algum tempo para se manifestar após ligarmos o feixe sobre a amostra. Este atraso do efeito não-linear ocorre devido ao tempo que leva para a população do estado metaestável atingir o equilíbrio entre bombeio e decaimento. A variação do índice de refração em um dado ponto é uma exponencial, cuja constante de tempo depende do tempo de vida (τ) do estado metaestável e da razão entre a intensidade incidente e a intensidade de saturação.

Considerando uma medida de Varredura Z de Transmissão em um absorvedor saturável (Figura 5.2), se a amostra estiver na posição correspondente ao pico de intensidade ($z = -0,85 z_0$) e empregarmos um obturador para ligar e desligar o feixe sobre a amostra, iremos ver a evolução temporal do termo não-linear da refração.

Neste caso, ao ligarmos o feixe no instante $t=0$, a população do estado metaestável é nula, e o feixe que atinge a íris apresenta apenas efeitos lineares. Sobre este feixe está o resultado do espalhamento por dano e sujeira no cristal, nos elementos óticos da montagem e a inclinação do feixe provocada pelo cristal. À medida que a população do estado excitado aumenta, o efeito de autofocalização vai aumentando, concentrando o feixe sobre a íris e gerando assim um aumento na intensidade medida pelo detetor até a população atingir o equilíbrio.

Se a amostra estiver posicionada na posição de mínimo, o mesmo efeito irá ocorrer, porém devido a posição da amostra o efeito de autofocalização irá gerar um mínimo de intensidade.

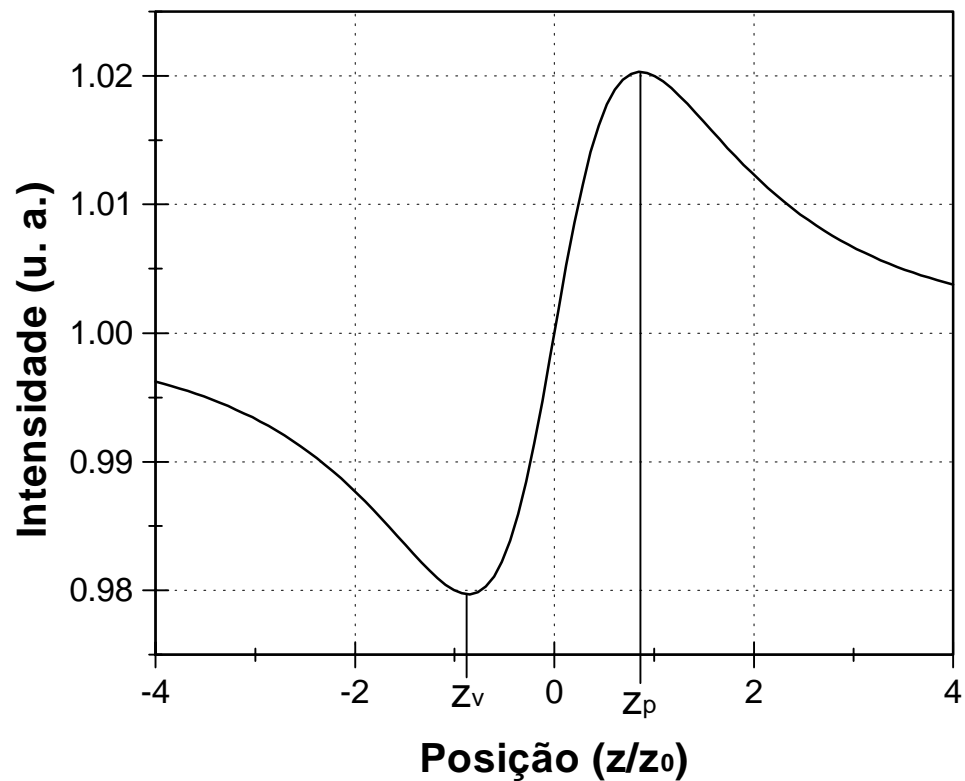


Figura 5.2 : Curva teórica de Varredura Z de Transmissão para um absorvedor saturável (no caso, $n_2 > 0$), mostrando as posições de pico e vale de intensidade z_p e z_v .

A evolução temporal do sinal é mostrada na Figura 5.3. Para eliminar a parte real do sinal, normalizamos a intensidade em um instante $t > \tau$, quando nos aproximamos do estado estacionário (por exemplo, em 30 ms), e dividimos pela intensidade na instante inicial. A própria evolução temporal do sinal já apresenta informação suficiente para que possamos obter o índice de refração não-linear empregando uma medida com a amostra parada. Se a colocarmos na posição do máximo de intensidade da curva de transmissão (Figura 5.2), o valor do pico será proporcional ao efeito não-linear e à intensidade do sinal. Podemos obter assim n_2 em vários valores de intensidade para obter uma média do valor, ou podemos ainda investigar o comportamento de n_2 em vários comprimentos de onda, empregando um laser sintonizável.

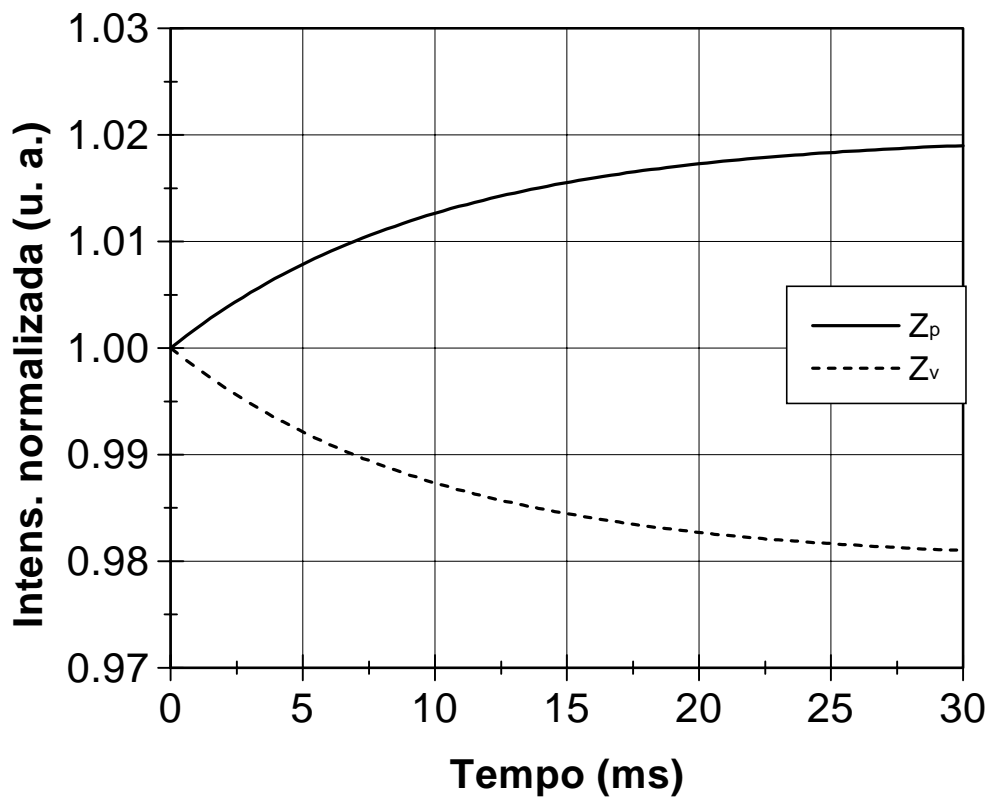


Figura 5.3: Evolução temporal teórica do sinal medido pelo detetor D1, ao ligar o feixe sobre a amostra no instante $t = 0$. A linha contínua representa a evolução do sinal a partir do instante $t=0$ com a amostra na posição z_p , e a linha tracejada a mesma situação com a amostra na posição z_v .

Este método pode ser aplicado a qualquer efeito linear que seja mais lento que o tempo de chaveamento do sinal, e não apenas a absorvedores saturáveis. Pode ser empregado, por exemplo, na medida de efeitos térmicos sobre o índice de refração.

Vale lembrar que a evolução temporal não será necessariamente uma exponencial, o que é válido apenas em baixa intensidade ($I \ll I_S$). Para intensidades mais altas, a população do estado excitado irá estabilizar primeiro no centro do feixe, onde a intensidade é maior. A população nas bordas do feixe irá estabilizar algum tempo depois, conforme vemos na equação (2-59).

Quanto ao desvio provocado por amostras de faces não-paralelas, o resultado pode ser minimizado pela resolução temporal se o desvio for pequeno. Se este desvio for muito grande, a distorção provocada irá alterar totalmente o resultado obtido, pois se temos uma variação positiva de intensidade no centro do feixe propagado até a íris, esta variação será negativa para a borda do feixe, pois ao

concentrarmos o feixe sobre a íris iremos reduzir a intensidade nas bordas. Tal idéia é inclusive empregada na medida de Varredura Z Eclipsante [49]. Se a amostra provocar realmente uma grande deflexão do feixe, devemos considerar o uso de um valor menor de z_0 , provocando um menor deslocamento do feixe com o translado da amostra.

A resolução temporal pode ser empregada em outras variantes da técnica, e não apenas na medida de Varredura Z de Transmissão. Por permitir um aumento na sensibilidade da montagem, torna-se particularmente interessante na medida de Varredura Z de Reflexão, a qual empregamos em nosso trabalho.

5.3. Montagens empregadas

Durante nosso trabalho, aplicamos a técnica de varredura Z de transmissão e o método por nós desenvolvido (Varredura Z de Reflexão Inclinada), em amostras de Aluminato de Gadolínio ($\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$) e Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$). Apresentamos a seguir as configurações empregadas nestas medidas de não-linearidades óticas.

5.3.1. Caracterização linear do absorvedor saturável

Procuramos medir inicialmente o índice de refração linear e o coeficiente de absorção linear das amostras. Em seguida, o termo não linear do índice de refração e a intensidade de saturação do cristal foram estudadas empregando a técnica de Varredura Z de Transmissão

Após esta caracterização, aplicamos à amostra de Aluminato de Gadolínio por nós caracterizada a técnica de Varredura Z de Reflexão Inclinada. Procuramos com isso analisar a aplicação e a utilidade do método proposto, comparando-o à Varredura Z de Transmissão.

-Índice de refração (n_0):

Para medir o índice de refração do cristal, empregamos um feixe de baixa intensidade ($\sim 30 \text{ mW/cm}^2$) incidindo sobre a amostra inclinada, polarizado paralelamente ao plano de incidência. Variando o ângulo de incidência, girando o cristal, podemos medir a intensidade do feixe refletido com o detector (D), medindo o ângulo para o qual esta intensidade é mínima (Figura 5.4).

Este ângulo corresponde à condição de Brewster, onde o feixe polarizado paralelamente ao plano de incidência é nulo. Neste condição, a intensidade refletida resultante é provocada por efeitos de desalinhamento entre a polarização do feixe e o plano de incidência da amostra, polarização elíptica do feixe de laser incidente (menor que 1:100) ou absorção da amostra. Os dois primeiros fatores podem ser controlados empregando-se polarizadores que garantam o alinhamento da polarização do feixe com a amostra.

Com o ângulo de Brewster podemos, através da equação (4-3), calcular o índice de refração linear da amostra.

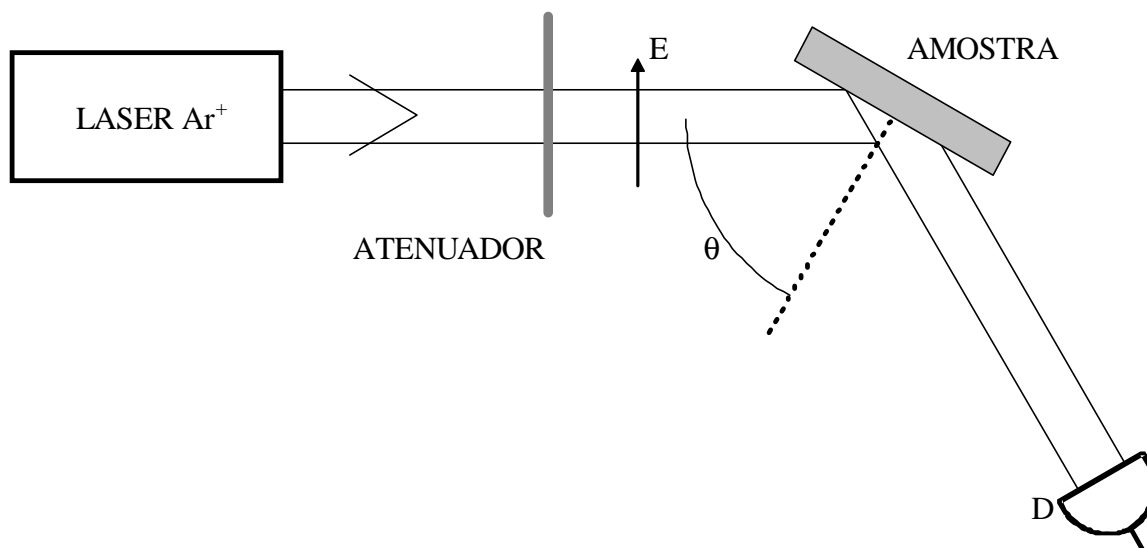


Figura 5.4: Montagem empregada na medida do termo linear do índice de refração. O detetor mede a intensidade do feixe refletido para diversos ângulos (θ). A partir da intensidade mínima podemos determinar θ_B .

-Absorção da amostra (α)

Neste caso, medimos a transmitância da amostra para um feixe de baixa intensidade incidindo perpendicularmente à superfície da amostra. Esta transmitância será calculada considerando uma atenuação linear $e^{-\alpha L}$, onde L é a espessura da amostra, além da reflexão de Fresnel nas duas faces do cristal. Temos portanto

$$T = \left(\frac{n_0 - 1}{n_0 + 1} \right)^4 \exp(-\alpha L) \quad (5-2)$$

e podemos assim calcular o valor de α , se conhecido o índice de refração n_0 , a espessura L e a Transmitância da amostra, que é medida para um feixe de baixa intensidade para evitar a ocorrência de efeitos não-lineares.

5.3.2. Varredura Z de Transmissão para medida de n_2

Para realizar a medida do índice de refração não-linear pela Varredura Z de Transmissão nas duas amostras de Aluminato de Gadolínio ($GdAlO_3:Cr^{+3}$) e da amostra de Rubi ($Al_2O_3:Cr^{+3}$), empregamos a montagem da Figura 5.5.

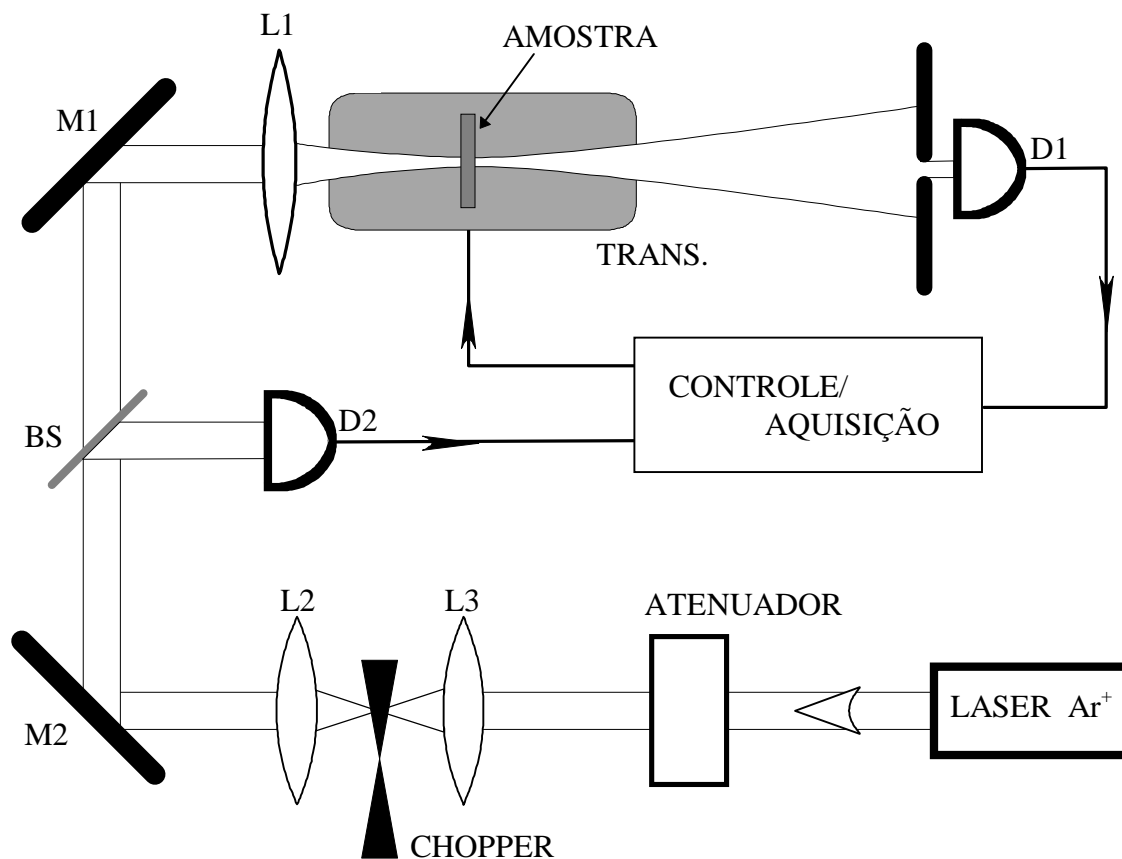


Figura 5.5: Montagem completa do sistema de Varredura Z de Transmissão. Os detectores D1 e D2 incluem as fontes de alimentação e as terminações de 10 k Ω . O conjunto formado por L2, L3 e o “chopper” compõem o obturador mecânico. O atenuador é composto de três lâminas de densidade neutra, com atenuação de 5%, 25% e 50%. O sistema de aquisição e controle permite mover a amostra sobre o translador (TRANS) e monitorar o sinal dos dois detectores. Os espelhos empregados (M1 e M2) são espelhos dielétricos para o Argônio (514,5 nm).

O detector D2 monitora o feixe incidente, vindo do laser, enquanto o detector D1 mede a intensidade do feixe que atravessa a amostra e a íris. A Placa de Aquisição mede alternadamente o sinal em cada um dos detectores, com um intervalo de 70 μ s entre as aquisições. Empregamos o sinal de D2 como referência de tempo (“trigger”), enquanto que o detector D1 fornece o sinal proporcional à transmitância normalizada, o qual será resolvido no tempo.

O conjunto de atenuadores permite variar a potência do feixe incidente sem provocar alterações no perfil gaussiano ou nas dimensões do feixe, que foram observadas ao aumentarmos ou reduzirmos a potência do laser de Argônio. Este conjunto é composto de três atenuadores, com transmitância de 5%, 25% e 50%. Podíamos variar a potência sobre a amostra em uma faixa entre 100 e 0,6 % da potência total.

O obturador mecânico é composto de um par de lentes ($f=60$ mm) e um “chopper”. O par de lentes permite diminuir o diâmetro do feixe incidindo sobre o “chopper”, diminuindo o tempo de obturação para um valor abaixo do tempo de aquisição de dados (tempo de obturação < 70 μ s).

A lente L1 irá determinar o valor de z_0 e w_0 sobre a amostra. Empregamos uma lente de $f=150$ mm, resultando em um valor medido de $z_0= (16 \pm 4)$ mm. A íris possui um diâmetro de 1 mm, e está situada a uma distância de 0,39 m da cintura do feixe. Com isso, a transmitância da íris sem a amostra, dada pela equação (3-24), é de 9,2%.

5.3.3. Varredura Z de Reflexão Inclinada

Aplicamos nossa proposta de Varredura Z de Reflexão Inclinada ao cristal de Aluminato de Gadolínio ($\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$) caracterizado pela montagem anterior. Esta amostra se aplica bem à técnica, pois as suas faces não são perfeitamente paralelas e o feixe refletido pela segunda face mantém uma divergência de $0,6^\circ$ em relação ao feixe refletido pela primeira face. Fica fácil eliminar a segunda reflexão, a qual traz informação do volume do cristal.

Realizamos a medida em duas etapas. Na primeira, com a amostra posicionada na cintura do feixe, empregamos a resolução temporal para obter a variação relativa da intensidade do feixe refletido. Repetimos então este procedimento para vários ângulos, fazendo uma varredura angular em lugar de uma varredura longitudinal, obtendo a curva de sensibilidade (Figura 4.7) e o valor de n_2 .

Pela resolução temporal, empregando a média de 1000 ciclos de “chopper” para reduzir os efeitos de flutuação do laser, variações na intensidade refletida da ordem de 10^{-4} puderam ser medidas.

Na etapa seguinte, mantivemos a amostra em um ângulo fixo e realizamos a varredura Z com a amostra inclinada, demonstrando a viabilidade da técnica na medida de Varredura Z de Reflexão. Podemos desse modo aplicá-la a amostras e obter o valor de n_2 . Neste caso a resolução temporal foi empregada para aumentar a resolução do sinal medido, porém em outros materiais, onde não há limitação no valor de Δn , podemos dispensar a resolução temporal, e assim medir efeitos rápidos no material.

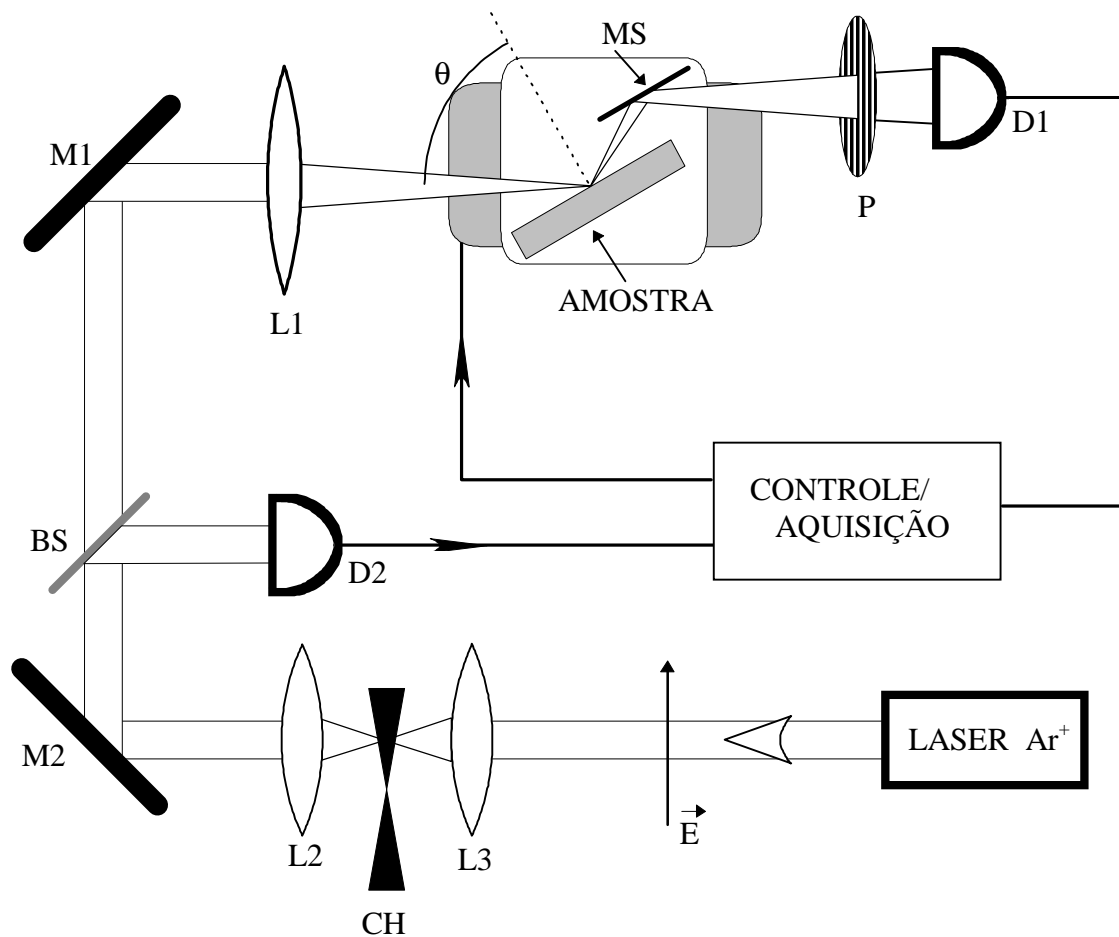


Figura 5.6: Montagem para medida de Varredura Z de Reflexão com incidência inclinada. O conjunto L2,L3 e CH (“chopper”) faz a obturação do sinal incidente sobre a amostra. Temos indicado o sentido da polarização do campo incidindo sobre a amostra. O polarizador (P) é alinhado paralelamente ao plano de incidência. O espelho MS move-se junto com a amostra.

Os resultados obtidos com estas medidas são apresentados no próximo capítulo, no qual discutiremos alguns efeitos observados.

6. Resultados Obtidos

Apresentamos neste capítulo os resultados obtidos em nosso trabalho para os cristais de Aluminato de Gadolínio e Rubi. Tais resultados demonstram a viabilidade do método por nós proposto no capítulo 4.1.

Para demonstrar nosso método, começamos pela caracterização das amostras disponíveis, empregando para isso a técnica de Varredura Z de Transmissão (capítulo 3). Por se tratar de absorvedores saturáveis, aplicamos a eles a teoria desenvolvida por L. C. Oliveira para medir o termo não-linear do índice de refração (descrita no capítulo 3.3).

6.1. *Medida de não-linearidades óticas por Varredura Z de Transmissão - caracterização inicial*

Para iniciarmos os trabalhos com a técnica de Varredura-Z, realizamos medidas em dois cristais de Aluminato de Gadolínio ($\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$) e um cristal de Rubi ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$). Os objetivos no estudo de tais amostras foram desenvolver o equipamento para aquisição de dados e os programas necessários à aquisição, para então empregar tais equipamentos na medida dos termos não-lineares de refração de absorvedores saturáveis.

Tais cristais são adequados por apresentarem um valor de n_2 relativamente alto (da ordem de $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$) quando comparados a outros materiais não-lineares, como o CS_2 ($\approx 5 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ [35]), o qual além do pequeno valor requer um laser pulsado para a medida da mudança do índice de refração por efeito eletrostrictivo.

A caracterização de cada amostra incluiu a medida do termo linear do índice de refração (n_0), da absorção linear do cristal (α), do termo não-linear do índice de refração (n_2), e a estimativa da intensidade de saturação (I_S), empregando as montagens descritas na seção 5.3.1.

6.1.1. Aluminato de Gadolínio

Empregamos duas amostras de espessura e coeficiente de absorção diferentes. Como o coeficiente de absorção depende da densidade de átomos de Cromo no cristal, e esta densidade será responsável pelo valor de n_2 , esperamos que o valor do índice de refração não-linear varie de uma amostra para outra.

6.1.1.1. Resultados para a Amostra 1

Este cristal apresenta as duas faces com uma inclinação de aproximadamente $0,3^\circ$. Por este motivo, na montagem empregada (Figura 5.5), o feixe transmitido sofre um desalinhamento de aproximadamente 0,2 mm com relação ao centro da íris à medida que ocorre o deslocamento da amostra. Tal valor é menor que o diâmetro da íris, de modo que, ainda que introduza algum erro na medida, tal efeito possa ser minimizado pelo uso da resolução temporal.

Na análise deste cristal, começamos pela determinação dos termos lineares da refração e absorção do cristal conforme descrito na seção 5.3.1, obtendo os valores apresentados na Tabela 3. Todas as medidas dos termos lineares foram feitas com intensidade baixa ($\sim 30 \text{ mW/cm}^2$), garantindo o regime linear no meio.

Para medir o valor de n_2 realizamos primeiramente uma série de medidas em baixa potência, buscando operar assim fora da região de saturação, e dentro da aproximação da equação (3-26). Neste caso, a amplitude da variação entre pico e vale é proporcional a n_2 , conforme a equação (3-29).

Realizamos medidas de Varredura Z de Transmissão em três valores diferentes de potência entre 2 e 8 mW, correspondendo a intensidades entre 48 e 190 W/cm^2 . Na Figura 6.1 vemos a curva da varredura Z obtida para uma potência incidente no cristal de 2 mW. Note que o uso da resolução temporal permitiu uma sensibilidade menor que 1% em nosso sinal, o que equivale a uma distorção de fase de $\lambda/250$. Valores maiores podem ser obtidos aumentando o número de ciclos de “chopper” empregado para obter a média. Como a principal fonte de erro em cada ponto é a flutuação da intensidade do laser, a média obtida em vários ciclos reduz a incerteza da medida.

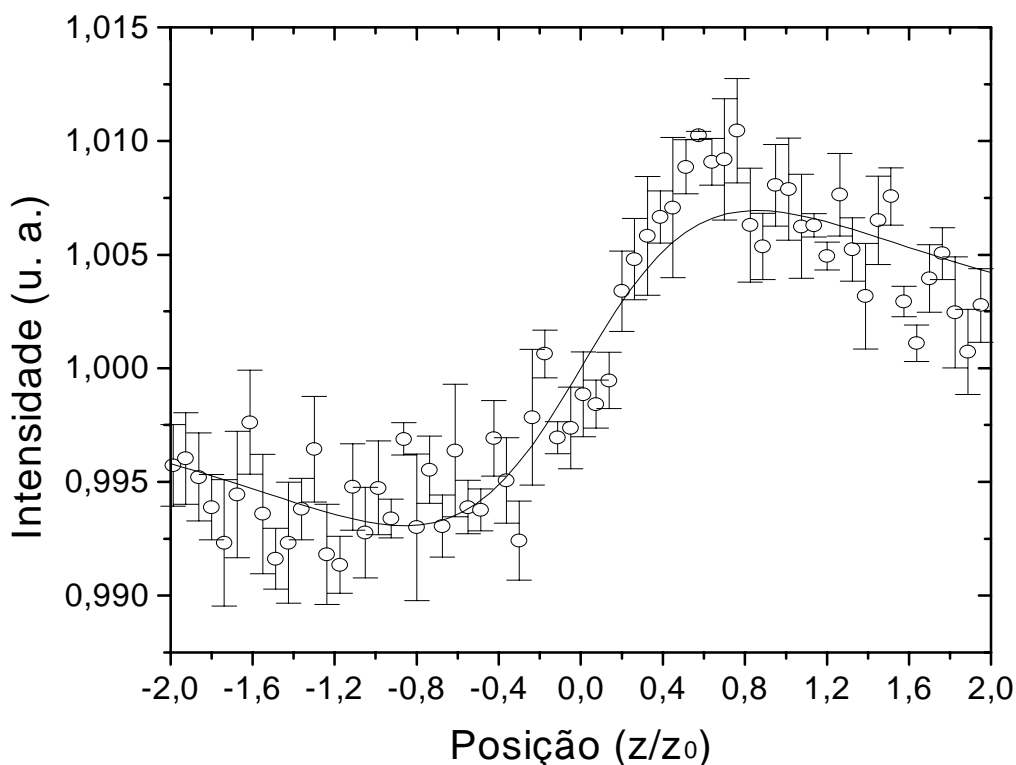


Figura 6.1 Curva de Varredura Z para amostra de Aluminato de Gadolínio, com espessura de $(2,34 \pm 0,06)$ mm, obtida com um laser de Argônio CW ($\lambda = 514,5$ nm), empregando a normalização por resolução temporal do sinal. $I_0 = (48 \pm 10)$ W/cm²; $z_0 = (16 \pm 4)$ mm; $\Delta\phi = (0,034 \pm 0,011)$, ajustado pela equação (3-26).

Na Figura 6.2 temos os resultados da distorção de fase ($\Delta\phi = k n_2 I_0 L_{ef}$) medidos para três potências. O valor da intensidade no interior do cristal (I_0) foi calculado tomando a potência incidente, descontando-se a reflexão pela primeira face do cristal, e o valor medido de z_0 . O comprimento efetivo (L_{ef}) empregou o valor medido da espessura e da absorção do cristal.

Ajustando uma reta por mínimos quadrados, obtemos a partir do coeficiente angular o valor de n_2 . O valor obtido foi $n_2 = (3,4 \pm 0,9) 10^{-8}$ cm²/W. Na Tabela 3 comparamos este valor com o obtido em outras referências.

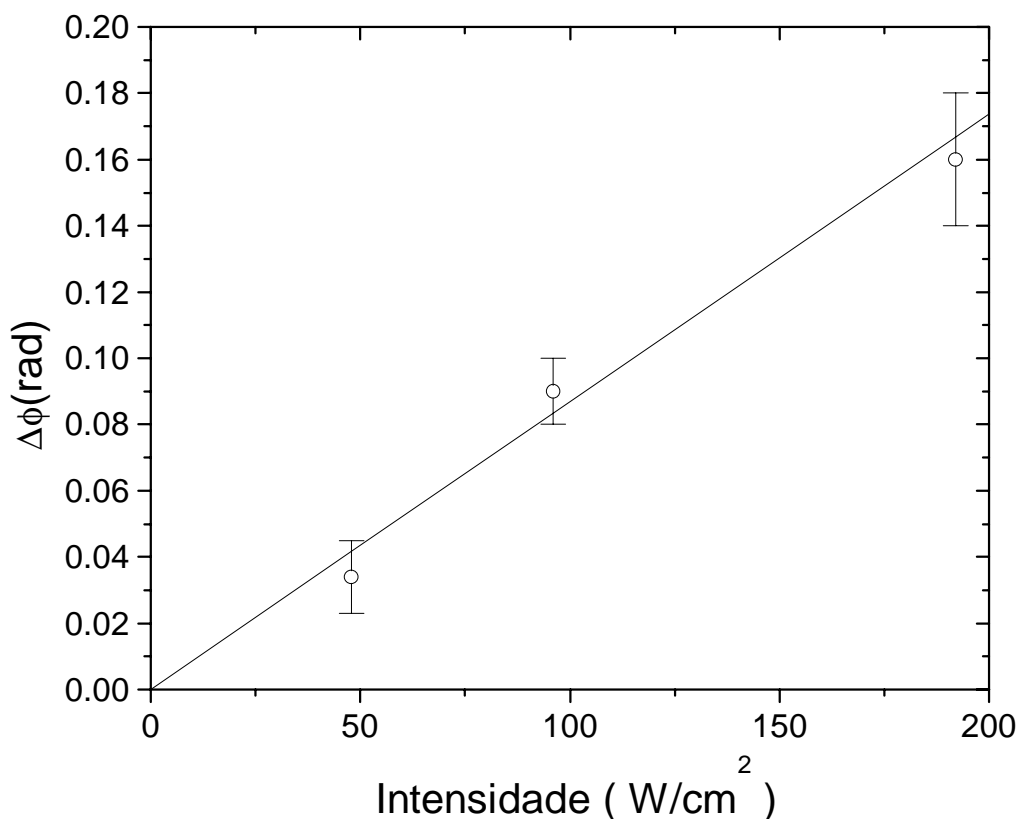


Figura 6.2 Distorção de fase em função da potência incidente, para um valor de $z_0 = (16 \pm 4)$ mm, $\lambda = 514,5$ nm. O valor de n_2 o ajuste é $(3,4 \pm 0,9) 10^{-8}$ cm²/W. A faixa de valores de potência corresponde a uma intensidade máxima de 190 W/cm².

Podemos considerar válida a aproximação linear para a mudança do índice de refração, e empregar esta aproximação no cálculo de n_2 .

Para esta amostra, realizamos ainda medidas com intensidade maiores, buscando valores acima da intensidade de saturação I_s , para aplicar o modelo de absorvedores saturáveis [47] mostrado no capítulo 3.3. Um exemplo de curva obtida para a Varredura Z nesta situação é mostrada na Figura 6.3, para uma intensidade de $(1,6 \pm 0,3)$ kW/cm².

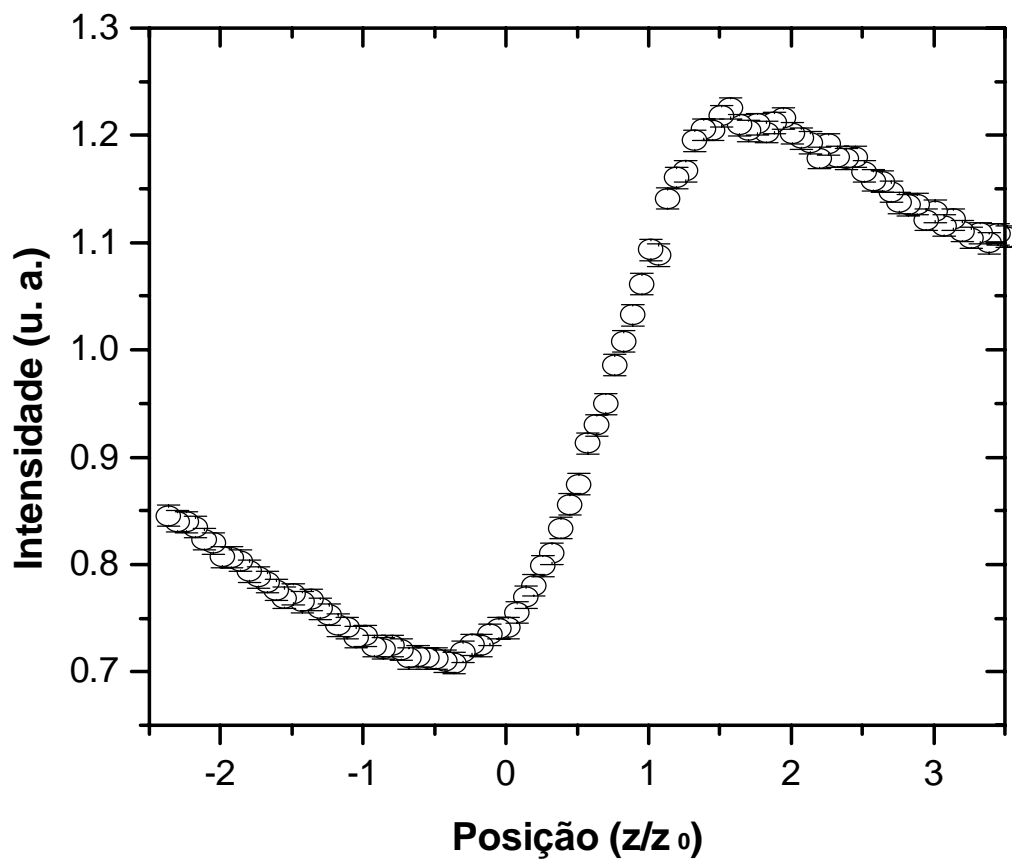


Figura 6.3: Curva de Varredura Z para uma amostra de Aluminato de Gadolínio, com espessura de $(2,34 \pm 0,06)$ mm, obtida com um laser de Argônio CW ($\lambda = 514,5$ nm), empregando a normalização por resolução temporal do sinal. Potência de 74 mW, $I_0 = (1,6 \pm 0,3)$ kW/cm²; $z_0 = (16 \pm 4)$ mm.

Na Figura 6.4 vemos o resultado da amplitude ΔT_{pv} obtida em diversas intensidades a partir de medidas semelhantes à da Figura 6.3. Sobre estes resultados fizemos o ajuste da curva teórica dada pela equação (3-69), obtendo um valor de $n_2 = (3,7 \pm 0,4) 10^{-8}$ cm²/W e $I_S = (6 \pm 2)$ kW/cm².

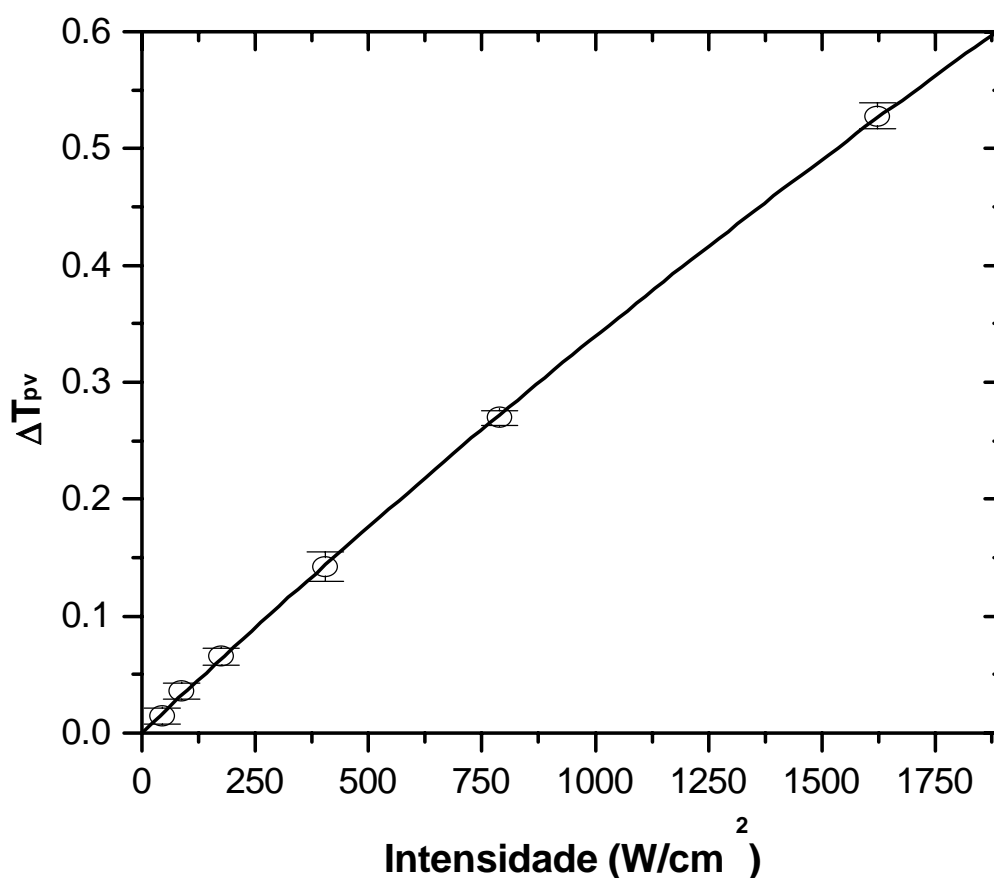


Figura 6.4: Variação da relação pico-vale com a intensidade para uma amostra de Aluminato de Gadolínio, obtida a partir de uma série de medidas com um laser de Argônio CW ($\lambda = 514,5$ nm). O ajuste foi feito a partir da equação (3-69), obtendo os valores de $n_2 = (3,7 \pm 0,4) 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$ e $I_S = (6 \pm 2) \text{ kW}/\text{cm}^2$.

O valor de n_2 obtido na Figura 6.4 concorda com o valor obtido a partir da série de medidas feitas em potências mais baixas.

Vemos na Tabela 3 os resultados obtidos para este cristal, comparado com valores obtidos da literatura. Podemos observar que o valor obtido para o termo linear da refração concorda com o valor da literatura, assim como os valores obtidos para o termo não-linear da refração n_2 . Como este valor deve variar com a concentração, empregamos a razão entre n_2 e o coeficiente de absorção do material. Esta razão não deve sofrer grandes variações com a absorção do cristal.

Note que a intensidade de saturação obtida ficou muito distante da encontrada teoricamente. A origem de tal efeito pode estar na absorção não-linear, que foi desconsiderada no modelo empregado na equação (3-69). Temos ainda que o termo não-linear da absorção do Aluminato de Gadolínio, conforme estudos realizados por diversos autores [50], apresenta uma dependência mais complexa

devido a absorção de fótons pelo estado excitado, de modo que o modelo de saturação de absorção apresentado em 2.4.5 não é suficiente para uma descrição adequada do sistema.

Tabela 3: Resultados obtidos para amostra de Aluminato de Gadolínio:

	Medidos	Literatura
Índice de refração - n_0	$1,95 \pm 0,07$	$2,0^1$
Espessura do Cristal - L (mm)	$2,34 \pm 0,06$	—
Coefficiente de absorção - α (cm^{-1})	$1,11 \pm 0,10$	—
Reflexão de Fresnel - r_0	$0,322 \pm 0,016$	0,33
Refração não linear - n_2 ($10^{-5} \text{ cm}^2/\text{kW}$)	$3,4 \pm 0,9$	—
n_2/α ($10^{-5} \text{ cm}^3/\text{kW}$)	$3,1 \pm 0,7$	$3,8 \pm 0,6^2$
Refração não linear* - n_2 ($10^{-5} \text{ cm}^2/\text{kW}$)	$3,7 \pm 0,4$	—
n_2/α ($10^{-5} \text{ cm}^3/\text{kW}$)*	$3,3 \pm 0,4$	$3,8 \pm 0,6^2$
I_s (kW/cm^2)*	6 ± 2	$1,6^3$

*Conforme ajuste da Figura 6.4.

6.1.1.2. Resultados para a Amostra 2:

Nesta amostra a inclinação entre as faces é mais acentuada, sendo de aproximadamente $0,6^0$. Com tal desvio o deslocamento do feixe sobre a íris com o deslocamento da amostra ainda está abaixo do raio do orifício da íris.

Empregamos a medida direta da relação entre pico e vale na medida de Varredura Z de Transmissão para, a partir de uma série de valores em diferentes intensidades, obter o índice de refração não-linear da amostra e estimar sua intensidade de saturação empregando o modelo desenvolvido para absorvedores saturáveis [47].

Os termos lineares, cuja medida foi feita do mesmo modo empregado na amostra anterior, são apresentados na Tabela 4. O índice de refração apresenta boa concordância com valores da literatura.

Esta amostra de Aluminato de Gadolínio foi estudada com potências incidentes entre 6 e 156 mW, resultando em intensidades entre 0,14 e 3,4 kW/cm^2 . Na Figura 6.5 temos os resultados obtidos para dois valores de potência distintos.

¹ Optical Properties of $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; M. A. Aegerter, H. C. Basso, H. J. Scheel; in Proceedings, International Conference on Lasers, Vol. 80 (1983) pg.383.

² Differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; T. Catunda, J. P. Andreetta, J. C. Castro; Appl. Opt., **25**, 2391-2395, (1986).

³ Transverse self-phase modulation in ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ crystals; T. Catunda, L. A. Cury; J. Opt. Soc. Am. B; **7**, 1445-1455, (1990).

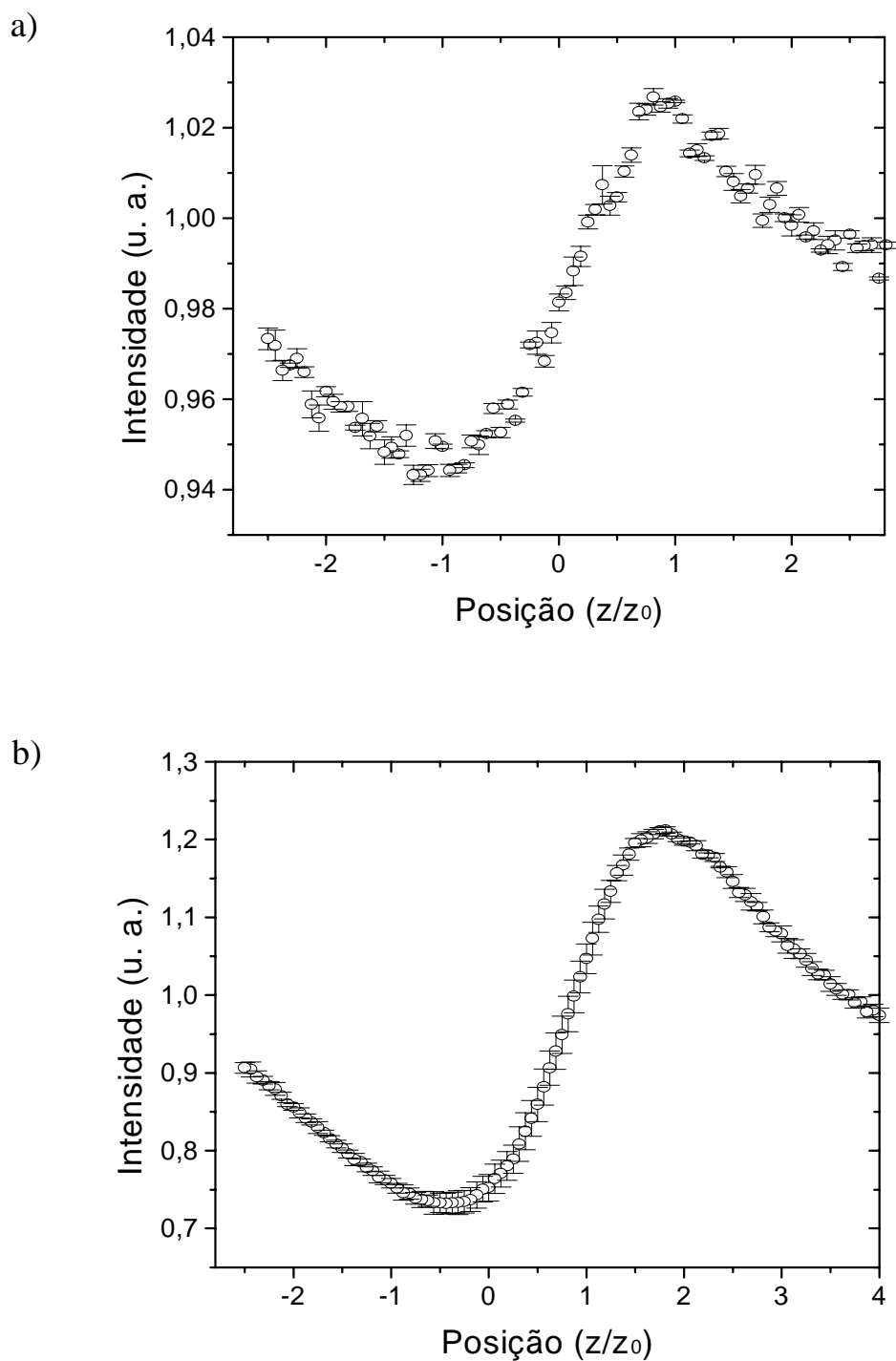


Figura 6.5 Curvas de Varredura Z obtida para uma amostra de Aluminato de Gadolínio com espessura de $(0,94 \pm 0,04)$ mm. Laser de Argônio CW ($\lambda = 514,5$ nm) e $z_0 = (16 \pm 4)$, empregando a normalização por resolução temporal do sinal. a) $P = 6$ mW, $I_0 = (0,41 \pm 0,04)$ kW/cm². b) $P = 156$ mW, $I_0 = (3,4 \pm 0,4)$ kW/cm².

A partir de uma série de resultados semelhantes obtemos a curva da transmitância pico-vale em função da intensidade, mostrada na Figura 6.6. O melhor ajuste foi obtido para um valor de $I_s = (2,5 \pm 0,7) \text{ kW/cm}^2$, e $n_2 = (5,4 \pm 0,9) 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$.

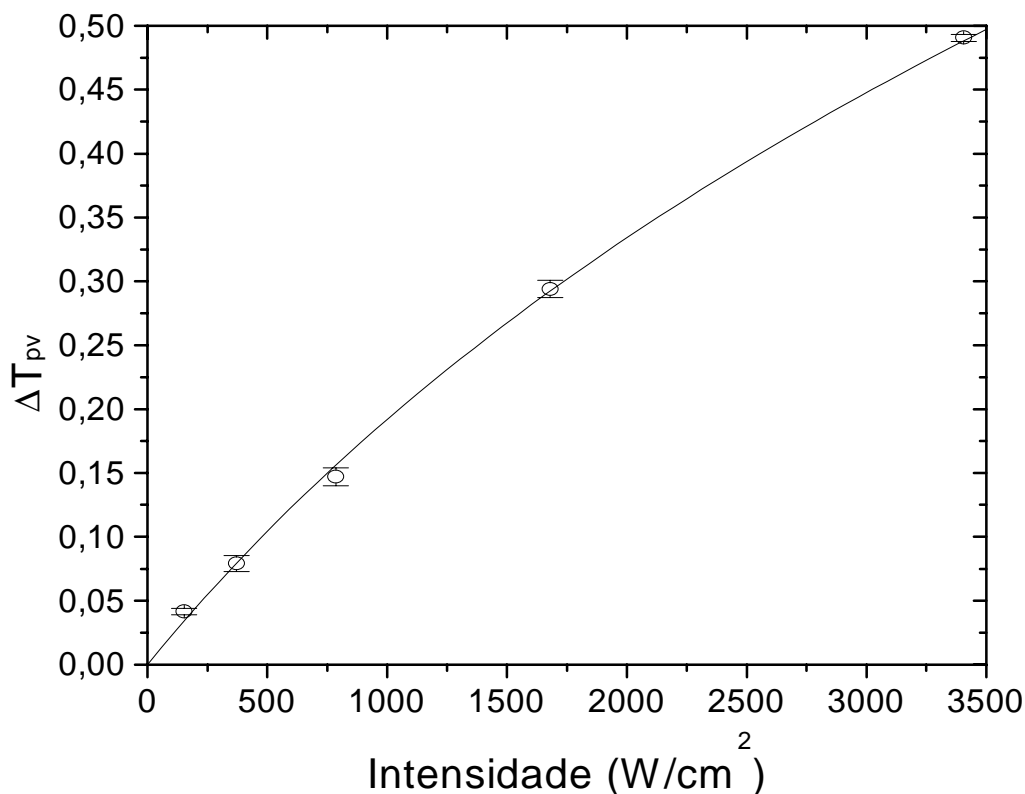


Figura 6.6 Curva mostrando a variação da relação pico vale em uma curva de varredura Z para diferentes valores de intensidade em uma amostra de gadolínio. A curva foi ajustada a partir da equação (3-69), obtendo $I_s = 2,5 \text{ kW/cm}^2$ e $n_2 = 5,4 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Semelhante à primeira amostra, o resultado para o termo linear e o termo não-linear da refração estão em concordância com os valores encontrados na literatura. Quanto a intensidade de saturação, o resultado obtido se aproximou mais do valor da literatura, mas ainda assim se situa além da faixa de erro obtida no ajuste da curva teórica.

Tabela 4: Resultados obtidos para amostra de Aluminato de Gadolínio.

	Medidos	Referências
Índice de refração - n_0	$1,98 \pm 0,08$	$2,0^4$
Espessura do Cristal - L (mm)	$0,94 \pm 0,04$	—
Coefficiente de absorção - α (cm^{-1})	$1,37 \pm 0,24$	—
Reflexão de Fresnel - r_0	$0,329 \pm 0,018$	0,33
Refração não linear - n_2 ($10^{-5} \text{cm}^2/\text{kW}$)	$5,4 \pm 0,9$	—
n_2/α ($10^{-5} \text{cm}^3/\text{kW}$)	$3,9 \pm 0,7$	$3,8 \pm 0,6^5$
I_s (kW/cm^2)	$2,5 \pm 0,7$	$1,6^6$

6.1.2. Rubi:

Para este cristal, realizamos a medida dos termos lineares pelo mesmo processo empregado nos cristais de Aluminato de Gadolínio. Os resultados obtidos estão na Tabela 5.

Passamos então a uma série de medidas de Varredura-Z de Transmissão resolvida no tempo. Empregamos potências incidentes variando em uma faixa entre 6 mW e 150 mW, para um comprimento de Rayleigh medido de (16 ± 4) mm. Trabalhando com um comprimento de onda de 514,5 nm, temos um diâmetro de (51 ± 6) μm na cintura do feixe. Portanto, a faixa de valores para a intensidade varia entre $140 \text{ W}/\text{cm}^2$ e $3,5 \text{ kW}/\text{cm}^2$. Na Figura 6.7 temos duas curvas obtidas em diferentes condições de intensidade.

Por estarmos trabalhando com valores próximos a intensidade de saturação do cristal, empregamos novamente a teoria desenvolvida para absorvedores saturáveis [47] para medir o valor de n_2 .

⁴ Optical Properties of $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; M. A. Aegerter, H. C. Basso, H. J. Scheel; in Proceedings, International Conference on Lasers, Vol. 80 (1983) pg.383.

⁵ Differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; T. Catunda, J. P. Andreetta, J. C. Castro; Appl. Opt., **25**, 2391-2395, (1986).

⁶ Transverse self-phase modulation in ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ crystals; T. Catunda, L. A. Cury; J. Opt. Soc. Am. B; **7**, 1445-1455, (1990).

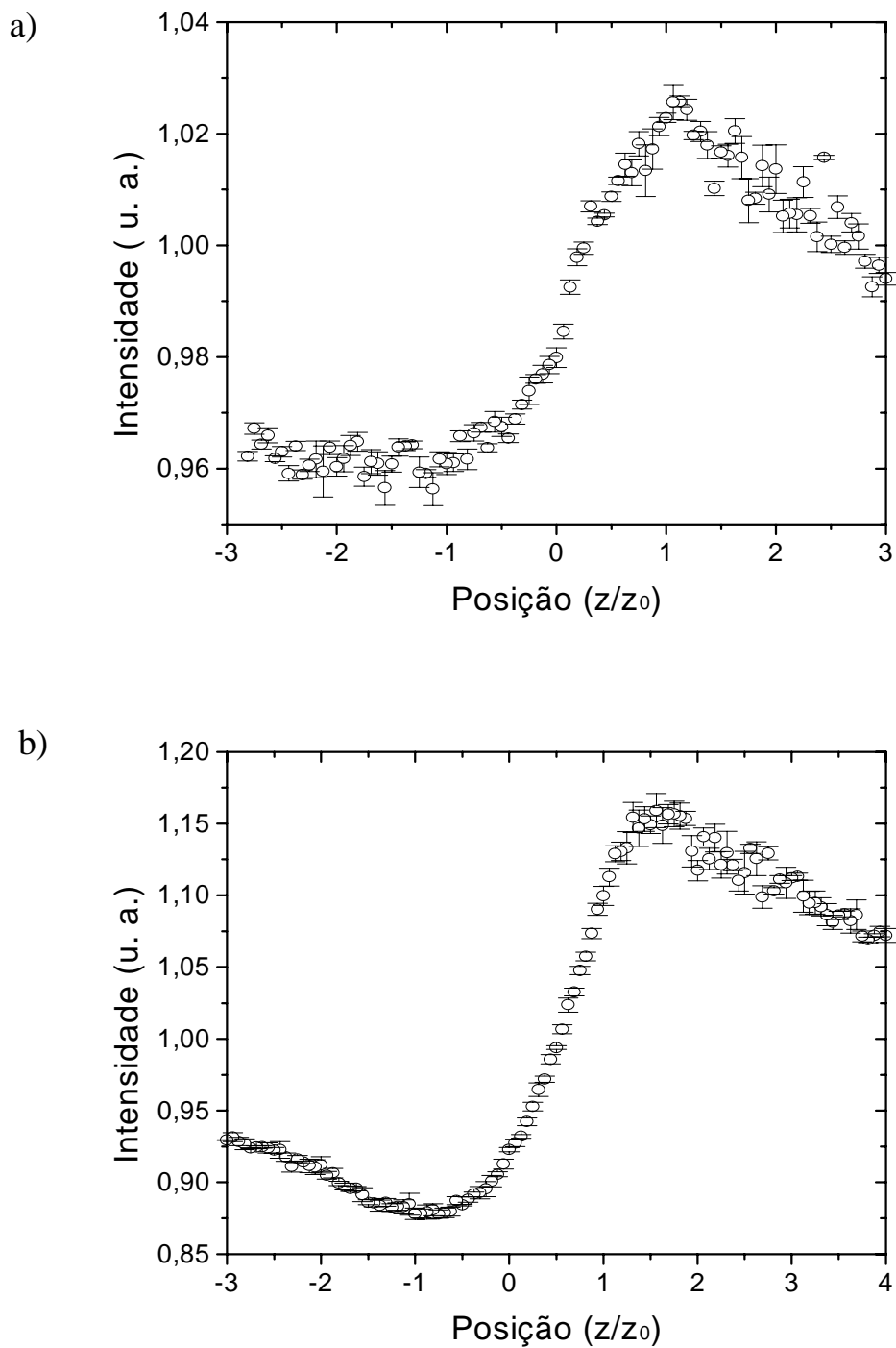


Figura 6.7 Curvas de Varredura Z para amostra de Rubi, obtidas com um laser de Argônio (514,5 nm), empregando a normalização por resolução temporal. $z_0=(16 \pm 4)$ mm. a) $P = 18$ mW, $I_0 = 0,43$ kW/cm². b) $P = 150$ mW, $I_0 = 3,5$ kW/cm².

A partir de uma série de cinco medidas de varredura Z obtemos os valores para a variação entre o pico e o vale da transmitância normalizada, mostrada na Figura 6.8. Ajustamos então a equação (3-69) aos valores experimentais, obtendo os valores de I_s e n_2 mostrados na Tabela 5.

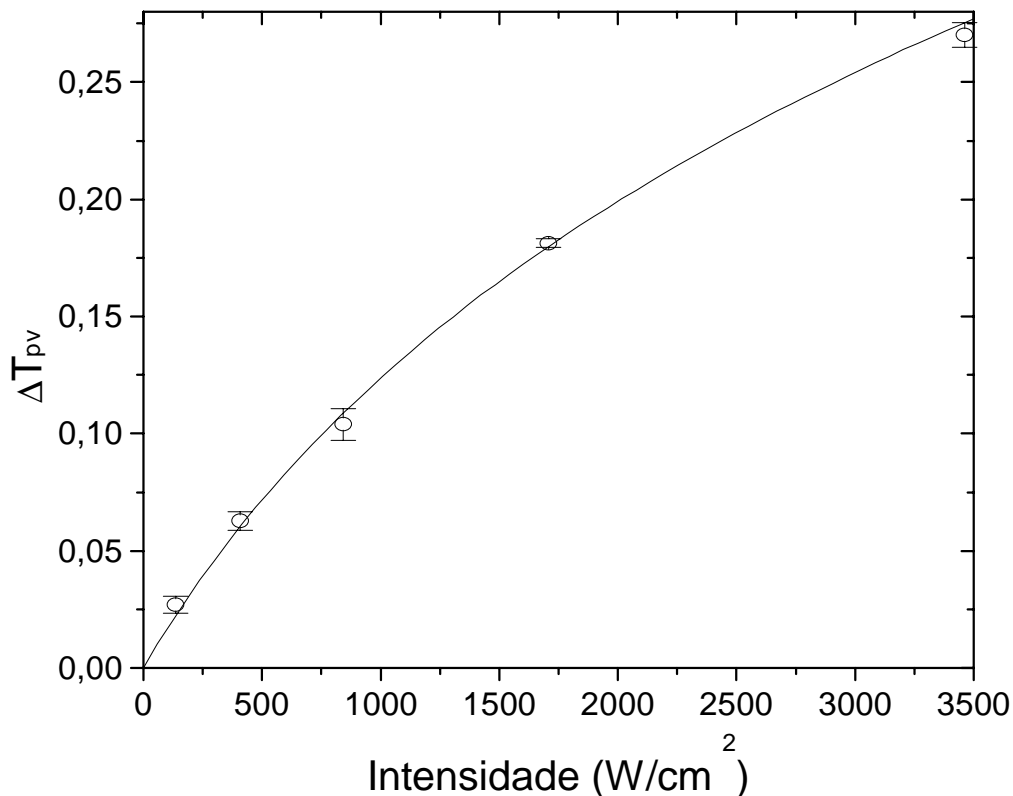


Figura 6.8 Curva mostrando a variação da relação pico vale em uma curva de varredura Z para diferentes valores de intensidade em uma amostra de rubi. Podemos observar o comportamento do absorvedor saturável. A curva foi ajustada a partir da equação (3-69), obtendo $I_s=1,2 \text{ kW/cm}^2$ e $n_2=1,33 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$.

O valor da intensidade de saturação obtido para o Rubi, ao contrário do que ocorria para o Aluminato de Gadolínio, concorda com os valores fornecidos na literatura. O mesmo ocorre para o termo linear e o termo não-linear do índice de refração.

O modelo proposto na referência [47] parece adequada para descrever o efeito de saturação do Rubi, enquanto se mostra insuficiente para explicar o efeito da saturação do Aluminato da Gadolínio, ainda que neste caso forneça um valor adequado para o índice de refração não-linear.

Tabela 5: Resultados obtidos para amostra de Rubi

	Medidos	Referências
Índice de refração - n_0	$1,72 \pm 0,06$	$1,77^7$
Espessura do Cristal - L (mm)	$3,10 \pm 0,02$	—
Coefficiente de absorção - α (cm^{-1})	$0,89 \pm 0,06$	—
Reflexão de Fresnel - r_0	$0,265 \pm 0,016$	0,28
Refração não linear - n_2 ($10^{-5} \text{cm}^2/\text{kW}$)	$1,33 \pm 0,12$	—
n_2/α ($10^{-5} \text{cm}^3/\text{kW}$)	$1,50 \pm 0,15$	$1,7^8$
I_s (kW/cm^2)	$1,2 \pm 0,4$	$1,5^9$

Vimos portanto que a medida de Varredura Z permite caracterizar o índice de refração não-linear em absorvedores saturáveis, obtendo uma resolução melhor que $\lambda/250$ para a distorção de fase pelo emprego da resolução temporal. Os valores obtidos concordam com as referências, mostrando o desenvolvimento e operação do equipamento montado para medida de tais efeitos.

Estas medidas permitiram ainda caracterizar as amostras, permitindo a escolha de uma delas para realizar a medida de Varredura Z de Reflexão com incidência inclinada. Esperamos, com a caracterização de uma amostra conhecida pelo método proposto, demonstrar a aplicação deste método. Por apresentar um valor maior de n_2 escolhemos a segunda amostra de Aluminato de Gadolínio.

Quanto a discrepância entre os valores de intensidade de saturação obtidos para o Aluminato de Gadolínio, vale lembrar que neste material temos a ocorrência de efeitos não previstos na teoria empregada para desenvolver o modelo. Por ocorrer a população de estados superiores por transferência de energia foto-assistida fora da ressonância (PAORET - referência [42]), o modelo de átomo de três níveis não é adequado para descrever corretamente os efeitos em Aluminato de Gadolínio. No entanto, tal modelo descreve de forma razoável o caso do Rubi, no qual este efeito não é observado.

⁷ Optical Properties of $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; M. A. Aegerter, H. C. Basso, H. J. Scheel; in Proceedings, International Conference on Lasers, Vol. 80 (1983) pg.383.

⁸ Differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; T. Catunda, J. P. Andreetta, J. C. Castro; Appl. Opt., **25**, 2391-2395, (1986).

⁹ Transverse self-phase modulation in ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ crystals; T. Catunda, L. A. Cury; J. Opt. Soc. Am. B; **7**, 1445-1455, (1990).

6.2. *Demonstração do método proposto: medidas de não-linearidades óticas por Varredura Z de Reflexão Inclinada*

Na seção anterior empregamos a técnica de Varredura Z de Transmissão para analisar o termo não-linear da refração em absorvedores saturáveis. No entanto, tal estudo poderia ser feito empregando a técnica de Varredura Z de Reflexão. Neste caso, comparando as equações (3-18) e (3-51), podemos esperar que a variação de intensidade observada na Varredura Z de Reflexão será bem menor que a obtida pela Varredura Z de Transmissão. Esta redução na distorção do feixe medido entre uma e outra técnica pode ser dada por

$$\frac{\Delta T_{\text{Ref}}}{\Delta T_{\text{Trans}}} = \frac{r_1}{r_0} (k L_{\text{ef}})^{-1}$$

(6-1)

Para o Aluminato de Gadolínio e o Rubi, tal redução no sinal será da ordem de 10^{-4} . Considerando os resultados obtidos no capítulo 5.3.1, podemos esperar uma variação observável em uma medida de Varredura Z de Reflexão da ordem de 10^{-4} . Observando o gráfico na Figura 6.1, vemos que a sensibilidade da nossa montagem é limitada em cerca de 1%. Podemos concluir, portanto, que a aplicação da Varredura Z de Reflexão não traria nenhum resultado observável em nossa medida.

No entanto, pelo uso da Varredura Z de Reflexão Inclinada, obtém-se um aumento de 20 vezes no efeito observado na reflexão normal. Com isso, a variação esperada no sinal aproxima-se de 1%, atingindo o limite obtido nas medidas realizadas na seção anterior.

Aliado a isso, um aumento da sensibilidade pode ser obtido realizando a média sobre vários ciclos de chaveamento do sinal pelo obturador mecânico (chopper), permitindo a aplicação desta técnica aos absorvedores saturáveis.

Esperamos com estas medidas mostrar a utilidade do nosso método e avaliar sua aplicabilidade no estudo de propriedades óticas não-lineares.

Empregamos para nosso estudo a amostra de Aluminato de Gadolínio caracterizada na seção 6.1.1.2, por esta apresentar o maior índice de refração não-linear entre as amostras estudadas. Outra vantagem do uso desta amostra está na inclinação entre suas faces. Não sendo perfeitamente paralelas, como é o caso do cristal de Rubi, o feixe refletido pela segunda face não será paralelo ao refletido pela primeira face. Como este feixe traz informação do volume do cristal sobreposta à informação da reflexão, ele apresenta uma distorção semelhante à obtida em uma Varredura Z de Transmissão. Não sendo nosso objetivo, no presente trabalho, a análise de tal efeito na segunda reflexão, queremos eliminar este feixe para evitar interferências com o feixe refletido pela primeira face. A divergência entre os dois feixes permite adquirir apenas o sinal da primeira reflexão com o uso de uma íris.

Para testar o método, medimos pela resolução temporal a variação de amplitude do feixe refletido pela amostra situada na cintura do feixe. Realizando a medida desta variação de intensidade em diversos ângulos, esperamos observar se a variação relativa da refletância sofre um aumento nas proximidades do ângulo de Brewster, conforme a curva da sensibilidade da medida apresentada na Figura 4.7.

6.2.1. Variação da reflexão com o ângulo de incidência

Mesmo com aumento da sensibilidade obtido pelo uso da incidência inclinada, temos ainda uma variação muito pequena no sinal. Queremos portanto atingir uma resolução que seja menor que a variação do sinal.

Para atingir uma resolução de 0,1% foi necessário tomar a média sobre vários ciclos de chaveamento do obturador mecânico. A média sobre mil ciclos mostrou ser suficiente para esta resolução. Com isto, conseguimos observar a variação sobre o sinal de reflexão para diversos ângulos de incidência, empregando a montagem da Figura 5.6.

Na Figura 6.9 vemos a variação temporal da intensidade do feixe refletido pela superfície para um feixe de 10 kW/cm^2 , incidindo com um ângulo de $61,9^\circ$ sobre a amostra. No instante $t=0$, o obturador mecânico é aberto e o feixe incide sobre a amostra. Como nesse instante a população do estado excitado é nula, todo o efeito da reflexão será devido a efeitos lineares. A intensidade esperada pode ser calculada a partir do coeficiente de reflexão (4-2), e desvios desse valor correspondem a efeitos de espalhamento provocados por danos à superfície do cristal.

À medida que a população do estado excitado vai aumentando, a susceptibilidade do meio muda, e com ela o índice de refração do material. Essa mudança do índice de refração irá provocar uma alteração no coeficiente de reflexão, resultando em uma variação temporal da intensidade refletida. Após um tempo suficientemente longo ($\sim 25 \text{ ms}$) a intensidade refletida já se estabilizou, e a reflexão é agora resultado da soma do efeito linear com o efeito não linear. A amplitude da mudança da intensidade refletida fornecerá a informação sobre o termo não linear da reflexão, não sendo necessário, neste caso, efetuar uma medida de Varredura Z para obter a amplitude desta variação.

Como colocamos a amostra na cintura do feixe, a variação da intensidade do feixe refletido, calculada a partir da equação (4-23) e normalizada pelo termo linear, será dada por

$$R - 1 = 2 \cdot \text{Re}[\hat{r}(\theta) \tilde{n}_2 I_s] \cdot \zeta(I_0/I_s) \quad (6-2)$$

onde a função ζ depende da razão entre a intensidade no centro da cintura do feixe e a intensidade de saturação do material, e é dada por

$$\zeta(I_0/I_s) = \frac{\int_0^{\infty} \frac{I^2(\rho, z)}{I(\rho, z) + I_s} \rho d\rho}{\int_0^{\infty} I(\rho, z) \rho d\rho} \quad (6-3)$$

A dependência radial da intensidade do feixe gaussiano é dada pela equação (3-7). No caso, para a amostra posicionada na cintura do feixe, calculamos ζ com $z=0$.

Temos agora as condições para obter o valor de n_2 a partir da resposta temporal da intensidade do feixe refletido. A partir do gráfico obtemos o valor de R-1. Com a intensidade do feixe e a intensidade de saturação fornecida pela referência [27] ($I_s = 1,6 \text{ kW/cm}^2$), obtemos o valor de ζ , e portanto o valor de $\text{Re}[\hat{r} \tilde{n}_2 I_s]$.

A partir do ângulo de incidência ($61,9^\circ$) obtemos o valor de $\hat{r} = (16 \pm 2)$, empregando a equação (4-6). Obtemos assim o valor de $n_2 = (4.4 \pm 0.5) \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$.

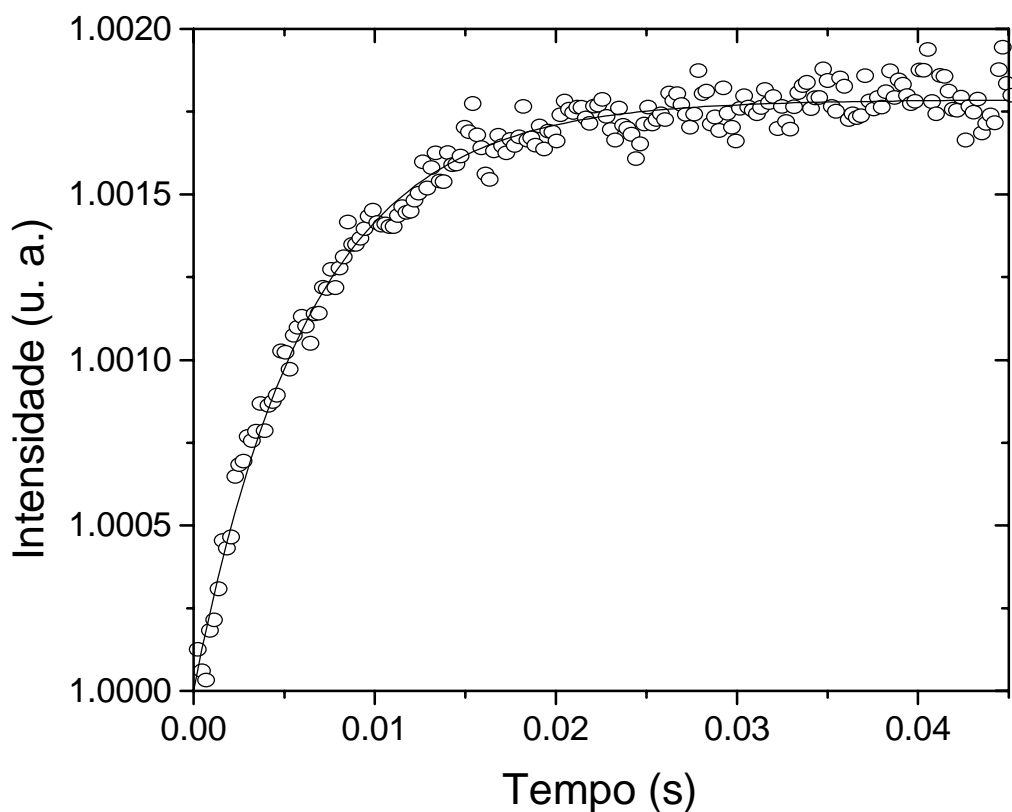


Figura 6.9 Intensidade do feixe refletido resolvido no tempo, empregando uma medida de Reflexão Inclinada com a amostra de Aluminato de Gadolínio na cintura do feixe. Curva para um ângulo de incidência de $62,7^\circ$. $\lambda = 514,5$ nm. $I_0 = 10$ kW/cm², $w_0 = 50$ μ m.

Empregando o mesmo procedimento para um ângulo maior que o ângulo de Brewster, obtemos o resultado da Figura 6.10. Neste caso a mudança do índice de refração provoca uma redução na intensidade do feixe refletido. Temos neste caso um valor de $\hat{r} = -(17 \pm 2)$ para um ângulo de incidência de $64,1^\circ$. Obtemos assim um valor de $n_2 = (4,0 \pm 0,5) \times 10^{-8}$ cm²/W.

Observe que a variação da intensidade refletida pode ser positiva ou negativa conforme o ângulo de incidência. Para compreender este fato, devemos retornar à curva da refletância mostrada na Figura 4.4. Reproduzimos aqui a curva da refletância para um feixe polarizado paralelamente ao plano de incidência, ampliando a curva para a região próxima ao ângulo de Brewster (Figura 6.11).

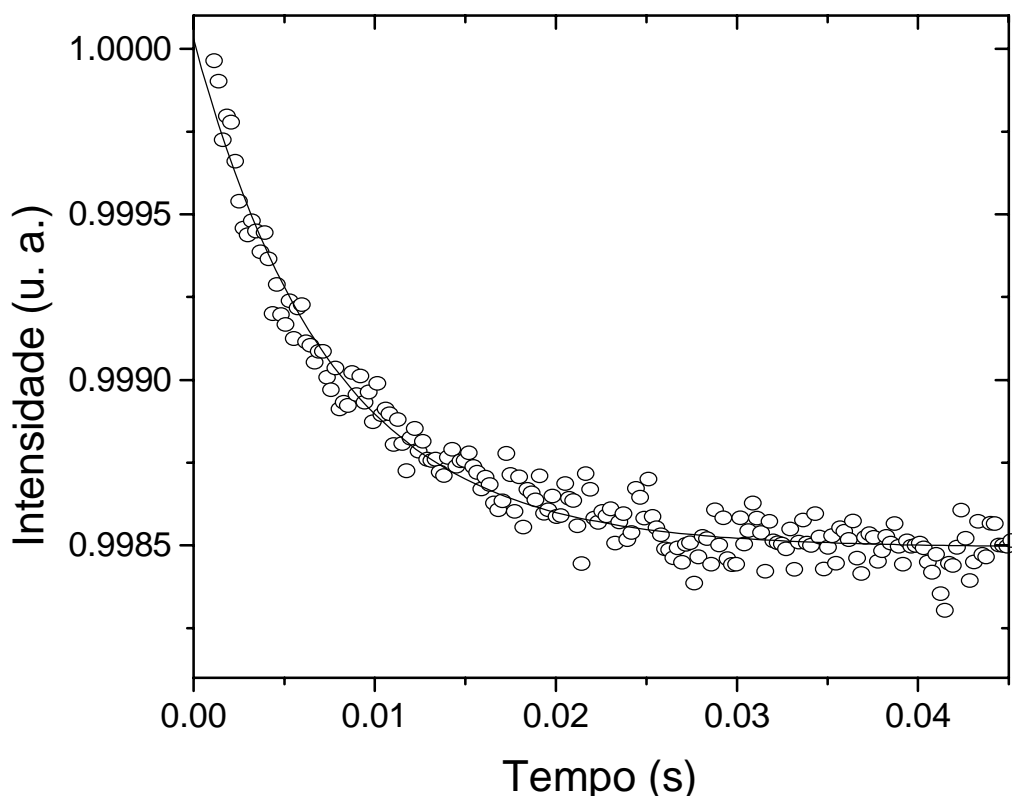


Figura 6.10 Intensidade do feixe refletido resolvido no tempo, empregando uma medida de Reflexão Inclinada com a amostra de Aluminato de Gadolínio na cintura do feixe. Curva para um ângulo de incidência de $64,1^\circ$. $\lambda = 514,5 \text{ nm}$. $I_0 = 10 \text{ kW/cm}^2$, $w_0 = 50 \text{ }\mu\text{m}$.

Na Figura 6.11 a linha contínua representa a refletância na ausência de efeito não-linear, e a linha tracejada a refletância considerando uma pequena variação positiva (2,5%) no índice de refração do meio. Observe que com esta variação, a condição de Brewster mudou, sendo satisfeita em um ângulo ligeiramente maior que o valor inicial de θ_B . Se um feixe incidente em um ângulo menor que o ângulo que θ_B (por exemplo, 62°) provocar um aumento do índice de refração, esta variação irá provocar um aumento da refletância, e portanto da intensidade do feixe refletido (Corte A).

Tomemos agora um ângulo maior que o ângulo de Brewster. Pela figura vemos que para um valor de θ_B de 65° , esta mesma mudança do índice de refração irá provocar uma redução na refletância. Teremos portanto uma diminuição na intensidade do feixe refletido (Corte B).

Não é de se estranhar, portanto, que a mudança do índice de refração provoque um aumento ou uma redução na intensidade do feixe refletido. Podemos considerar que, para um ângulo menor que θ_B , o aumento no índice de refração irá afastar o sistema da condição de Brewster. Por outro lado, se o ângulo for maior que

θ_B , o aumento irá aproximar o sistema deste condição, e conseqüentemente a intensidade do feixe refletido sofrerá uma redução.

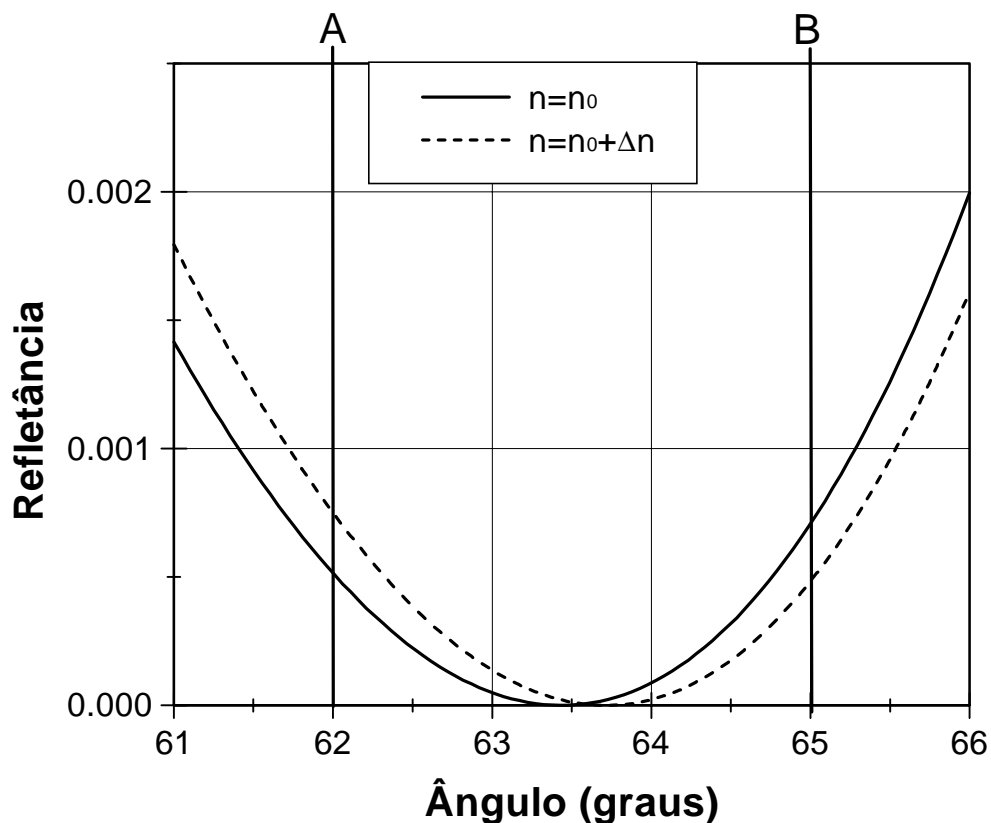


Figura 6.11: Variação da reflexão com o índice de refração próximo ao ângulo de Brewster. Nesta curva teórica, a linha contínua representa a refletância obtida para um dado índice de refração $n_0 = 2$. A linha tracejada é a mesma curva, porém considerando que o índice de refração sofreu um acréscimo de 2,5% provocado por efeitos não lineares (Δn). No ponto A ocorre uma variação positiva na refletância, enquanto que no ponto B esta variação é negativa.

Vimos então como a partir de uma única medida em uma posição fixa podemos obter o valor de n_2 . Aplicamos neste caso o método da resolução temporal, que garantiu uma resolução em intensidade melhor que 0,1%, e a incidência inclinada, que permitiu um aumento de 28 vezes no efeito, quando comparado à incidência normal.

Pudemos assim medir uma mudança no índice de refração da ordem de 10^{-4} . Uma variação tão pequena pode ser facilmente medida em Varredura Z de Transmissão, pois neste caso a cada comprimento de onda no interior da amostra temos uma variação de fase no sinal de 10^{-4} . Somando-se o número de ciclos em um

material de espessura macroscópica ($L \gg \lambda$), o efeito resultante será muito grande, correspondendo a uma variação de intensidade no detector de mais de 10 %.

Na reflexão tal variação é pequena, pois ocorre na interface entre os meios. Não temos neste caso a soma sobre vários comprimentos de onda, e a variação total na amplitude do sinal para incidência normal se mantém em 0,01%. Somente com o aumento da sensibilidade de 1% para 0,1%, e o aumento provocado pela incidência inclinada em pelo menos uma ordem de grandeza permitem que tal medida possa ser feita.

A partir de diversas medidas semelhantes às realizadas nas Figura 6.9 e Figura 6.10, conseguimos obter a relação entre a variação de amplitude do sinal refletido e o ângulo de incidência do feixe. Na Figura 6.12 vemos o resultado experimental, onde mostramos a variação relativa de R ($R-1$) obtido pela resolução temporal para diversos ângulos de incidência, próximos ao ângulo de Brewster.

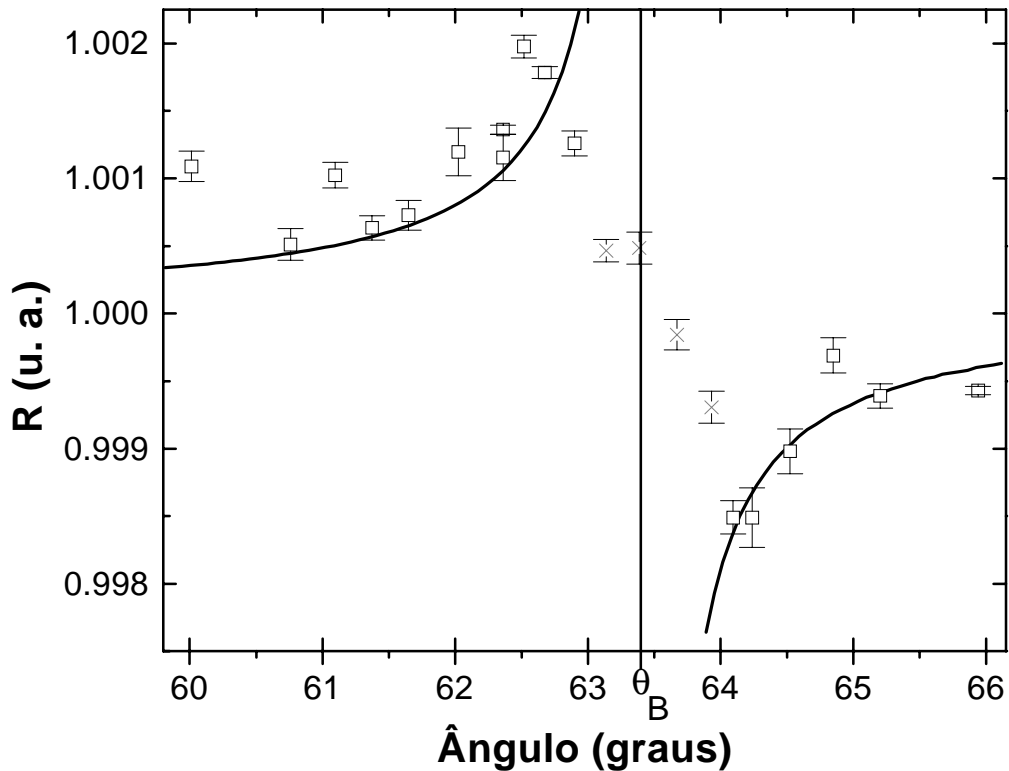


Figura 6.12 Variação da intensidade do feixe refletido em função do ângulo de incidência. A linha contínua representa o melhor ajuste para a equação (4-6), considerando uma amostra de Aluminato de Gadolínio ($n = 2$). Os pontos marcados como \times não foram considerados no ajuste por estarem muito próximos ao ângulo de Brewster. Dados obtidos para $\lambda = 514,5$ nm, $I_0 = 10$ kW/cm², $w_0 = 50$ μ m.

Vemos no resultado mostrado na Figura 6.12 que a variação de amplitude é positiva para $\theta < \theta_B$ e negativa para $\theta > \theta_B$ conforme explicamos anteriormente.

Para determinar o valor de n_2 , ajustamos a reflexão normalizada $\hat{r}(\theta)$, conforme a equação (4-6), aos dados da Figura 6.12. A curva de $R - 1$ deve ser igual esta curva multiplicada por uma constante. Este fator multiplicativo contém a informação de n_2 que procuramos, multiplicada por ζI_S . Com este ajuste, conseguimos um valor de $n_2 = (4.2 \pm 0.5) \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$. Observe que os valores medidos apresentam uma discrepância de 20 % com o valor medido pela Varredura Z de Transmissão. Tal divergência está coerente com a incerteza na medida de n_2 .

Temos nas medidas realizadas a observação dos efeitos previstos de inversão da variação da intensidade conforme estejamos acima ou abaixo do ângulo de Brewster. Vemos ainda o aumento da sensibilidade, obtido com nossa montagem. Na Figura 6.13, mostramos a dependência do módulo de $(R-1)$ com o ângulo de incidência, evidenciando o ganho obtido no sinal para valores próximos ao ângulo de Brewster. Note que esta curva é semelhante à curva do aumento da sensibilidade com o emprego da incidência inclinada, mostrada na Figura 4.7.

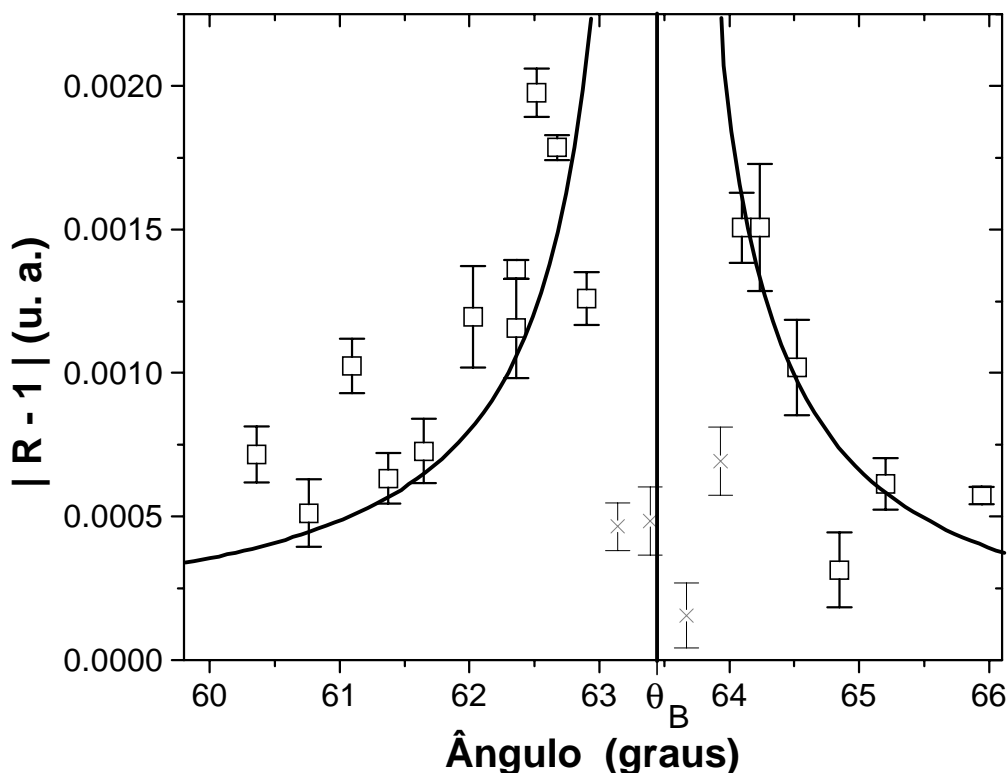


Figura 6.13 Aumento da sensibilidade com a variação do ângulo de incidência. A linha contínua representa o melhor ajuste para a equação (4-6). Os pontos marcados como \times não foram considerados no ajuste por estarem muito próximos ao ângulo de Brewster. Dados obtidos para $\lambda = 514,5 \text{ nm}$, $I_0 = 10 \text{ kW/cm}^2$, $w_0 = 50 \text{ }\mu\text{m}$, em uma amostra de Aluminato de Gadolínio.

Concluimos que a análise da variação de intensidade do feixe refletido permite medir o índice de refração não-linear de uma amostra. Tal medida em um absorvedor saturável somente foi possível pelo uso do método aqui proposto, o qual garantiu um aumento de 28 vezes na sensibilidade, comparado à incidência normal do feixe.

Além da do ganho com a reflexão inclinada, vimos que a combinação da medida de resolução temporal com a Varredura angular da reflexão permite obter o valor de n_2 em amostras onde a não-linearidade é lenta (ou pelo menos mais lenta que o sistema de aquisição).

Para casos em que esta variação do índice de refração é mais rápida que o sistema de aquisição, a variação de R com o tempo não pode ser medida. Não podemos, portanto, levantar o valor de $R-1$ mantendo a amostra fixa na cintura do feixe. Neste caso, uma Varredura Z é necessária para determinar qual a contribuição do termo linear e qual a variação que a não-linearidade está provocando em nossa amostra. Realizamos portanto uma medida de Varredura Z para demonstrar a aplicação do método a outros materiais que não sejam absorvedores lentos. Os resultados são mostrados na próxima seção.

Retornando aos resultados das Figura 6.12 e Figura 6.13, vemos que para alguns pontos a discrepância entre a curva teórica ajustada e o valor real medido é muito grande. Tal efeito ocorre principalmente nas proximidades do ângulo de Brewster, em valores na faixa de $0,4^\circ$ acima ou abaixo de θ_B . Na descrição que fizemos da medida com incidência inclinada, no capítulo 4.1, consideramos uma frente de onda plana incidindo sobre a amostra. No entanto, temos um feixe gaussiano, e como tal existe uma curvatura na frente de onda. Para a amostra exatamente na cintura do feixe, a frente de onda é plana, porém devido a inclinação da amostra ou então a erros de posicionamento, a frente de onda sobre a amostra apresenta uma curvatura. Para o valor utilizado de w_0 , esta curvatura é menor que $0,1^\circ$.

Se esta curvatura pode ser desprezada para valores de θ onde a variação de \hat{r} com o ângulo é lenta, o mesmo não ocorre para regiões onde esta variação é mais abrupta. Em especial, no ângulo de Brewster a variação é repentina, saltando de um valor extremamente positivo para um valor extremamente negativo. Em ambos os casos, o limite de \hat{r} no ângulo de Brewster tende a $+\infty$ para $\theta < \theta_B$ e $-\infty$ para $\theta > \theta_B$ para um material de absorção nula.

Esta variação brusca em \hat{r} limita o uso da montagem a ângulos nos quais o aumento da sensibilidade é limitado a cerca de 30 vezes. Podemos considerar que como a frente de onda da amostra é curva, parte da frente de onda incidirá com um ângulo menor que θ_B e a outra parte com um ângulo maior que θ_B . Como em um caso temos o aumento e no outro a diminuição da intensidade do feixe refletido, a soma dos dois efeitos terá uma resultante nula sobre a intensidade total medida. Por isso temos alguns pontos próximos a θ_B onde o valor de $(R-1)$ medido cai próximo a zero.

6.2.2. Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada

A aquisição dos dados com a amostra fixa na cintura do feixe empregando a resolução temporal permite medir, a partir da variação do feixe refletido, não-linearidades óticas que evoluam lentamente com o tempo. Tal método pode ser aplicado a um absorvedor saturável ou qualquer outro material no qual o termo não-linear apresente uma evolução temporal que seja mais lenta que o sistema de aquisição de dados. Para materiais onde a resposta do termo não-linear é mais rápida, este método não pode ser empregado, e devemos aplicar a Varredura Z para realizar a medida.

Apresentamos nesta seção resultados de Varredura Z de Reflexão Inclinada para a amostra de Aluminato de Gadolínio estudada. Tais resultados demonstram a possibilidade de aplicação da técnica em materiais com efeitos eletrônicos rápidos (em ns ou menores), como é o caso de semicondutores ou vidros dopados com semicondutores, sem que seja necessário empregar a resolução temporal para fazer a medida.

Tal medida envolve certas dificuldades, como o alinhamento preciso da amostra, alterações do ângulo de incidência provocadas por instabilidades mecânicas no sistema e a própria divergência do feixe fora da cintura, que acaba por provocar efeitos não previstos no modelo proposto.

Procedendo a um cuidadoso alinhamento do feixe refletido, empregando a montagem da Figura 5.6, mantendo o feixe refletido pelo conjunto espelho-amostra paralelo ao feixe incidente e este paralelo ao deslocamento do translador. Garantimos assim o alinhamento ótico do sistema.

Para evitar problemas devido a divergência do feixe, escolhemos um valor adequado de z_0 , garantindo uma divergência máxima de $0,1^\circ$. Operamos ainda em uma região onde a variação de \hat{r} com o ângulo seja pequena para variações no ângulo deste ordem. Posicionando a amostra de forma que o feixe incidente tenha um ângulo de 65° , obtemos um valor de $\hat{r} = -(7,0 \pm 0,5)$, onde a incerteza no valor foi calculada com base na incerteza do ângulo, dada pela curvatura da frente de onda.

A função da resposta normalizada da intensidade refletida, conforme a equação (4-23), foi ajustada aos resultados obtidos. Para o feixe incidente, empregamos uma potência de 370 mW e um comprimento de Rayleigh (z_0) de $(14,8 \pm 0,4)$ mm. Neste caso temos a intensidade incidente de $I_0 = 9,7 \text{ kW/cm}^2$. Obtivemos a curva apresentada na Figura 6.14 empregando para cada ponto de medida uma média de 250 ciclos do obturador mecânico, e aplicando a resolução temporal para garantir pela normalização uma resolução de intensidade melhor que 0,1 %.

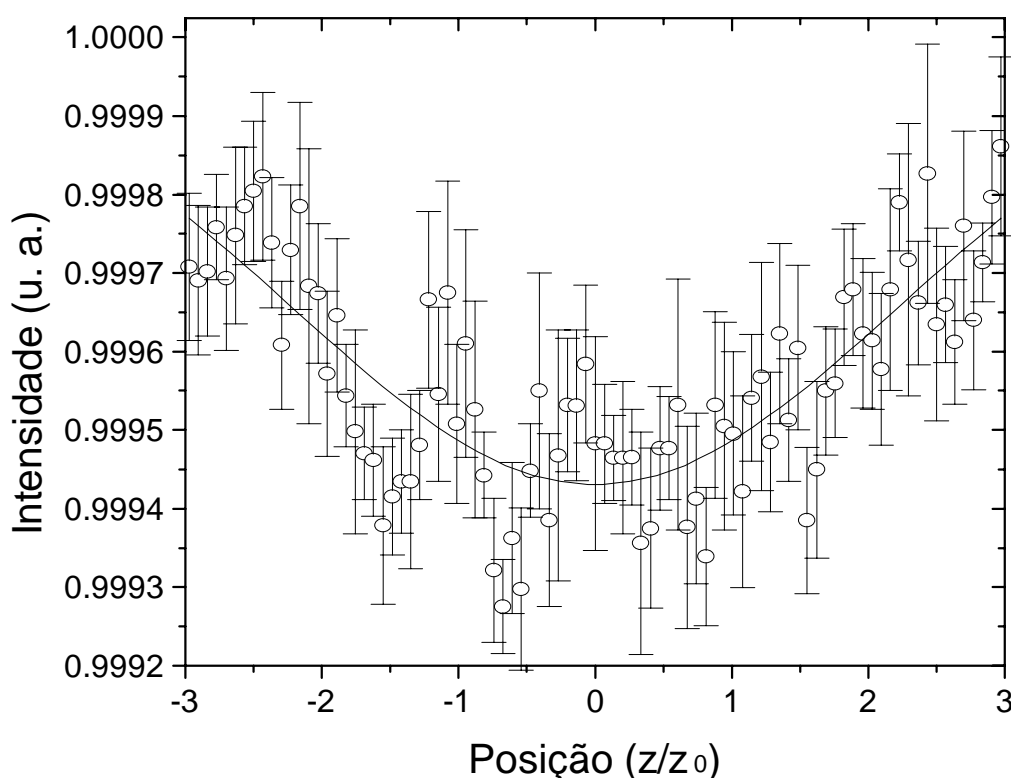


Figura 6.14 Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada em uma amostra de Aluminato de Gadolínio, para um ângulo de incidência de 65° , $I_0 = 9,7 \text{ kW/cm}^2$, $z_0 = (14,8 \pm 0,4) \text{ mm}$. Neste ângulo, devemos obter um mínimo de intensidade na reflexão para a amostra situada na cintura do feixe, conforme observa-se acima.

Apesar da flutuação dos dados obtidos, é visível a diminuição da intensidade para a amostra situada na cintura do feixe. Tal redução é coerente com o esperado no caso de uma não-linearidade positiva estudada com um feixe incidindo com um ângulo maior que o ângulo de Brewster. O ajuste realizado permite calcular o valor de $n_2 = (4.0 \pm 0.4) \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$. Tal valor é coerente com os valores obtidos na seção anterior, e encontra-se dentro da incerteza da medida feita com a técnica de Varredura Z de Transmissão.

Note que neste caso a aplicação da resolução temporal não visava a obtenção direta do valor de n_2 , como na seção 6.2.1, mas apenas a normalização do feixe refletido para garantir a resolução necessária para a medida de Varredura Z com um absorvedor saturável.

Tal método poderá ser empregado em materiais onde a variação de n é muito pequena para permitir uma medida de Varredura Z de Reflexão com Incidência normal. Mesmo em materiais onde a absorção é mais intensa, podemos empregar este método para permitir um ganho de até vinte vezes comparado à técnica tradicional de Varredura Z de Reflexão.

6.3. Sensibilidade da técnica

A medida de efeitos óticos não-lineares envolve o estudo de pequenas variações nas propriedades óticas de um meio. Para a medida destas variações pelos diversos métodos de Varredura Z temos três fatores determinantes:

- a intensidade máxima do feixe empregado;
- a resolução de intensidade do sistema de medida;
- a perturbação que a amostra produz no feixe refletido.

No primeiro caso, devemos considerar que para uma dada potência do laser, a intensidade sobre a amostra pode ser aumentada pela redução de w_0 . Surgem então dois fatores limitantes. Para as medidas de Varredura Z de Reflexão e Transmissão, não podemos aumentar indefinidamente a intensidade pelo dano que podemos causar à amostra ou pela saturação do termo não-linear estudado. Neste último caso o aumento da intensidade não nos dá um aumento significativo na distorção do feixe analisado. Temos portanto um fator limitante que dependerá do material em estudo. O limite de dano dependerá ainda de estarmos trabalhando com um laser contínuo ou pulsado. A intensidade máxima que o material pode suportar sem dano depende do tempo de aplicação do feixe, sendo menor para feixes contínuos.

Sem considerar o limite de dano no material, o aumento da intensidade pela diminuição de w_0 é limitado na Varredura Z de Transmissão. Neste caso a análise do feixe transmitido considera que a espessura da amostra deve ser menor que z_0 . Valores muito baixos de z_0 tornarão inválido o tratamento proposto [12] e não podem ser empregados. No caso da Varredura Z de Reflexão, o efeito de distorção será observado no feixe refletido. A geração deste feixe ocorre logo nas primeiras camadas da interface do meio com o ar, e portanto não há na análise realizada um limite no valor de z_0 . Tais fatores devem ser levados em conta no dimensionamento da experiência.

Nas medidas de Varredura Z, estudamos as distorções de fase e amplitude na onda refletida ou transmitida provocadas pelos efeitos óticos não-lineares. O uso do conjunto íris-detetor no campo distante transforma as distorções de fase em variações de intensidade, enquanto que as variações de amplitude podem ser estudadas pela integração do feixe refletido ou transmitido, observando a variação da potência deste feixe.

Neste caso, a resolução do sistema de medida é fundamental. Diversos são os fatores que limitam esta resolução. Flutuações de 1% a potência foram observadas para lasers contínuos, enquanto que para lasers pulsados estas variações chegam a 30%. Outro fator limitante é a resolução do sistema de aquisição. No nosso caso, temos uma resolução de 0,04% do fundo de escala na placa de aquisição de dados empregando um conversor A/D de 12 bits. Este valor pode ser menor em osciloscópios digitais, onde a conversão A/D é de 8 bits (0,4 %).

As variações no sinal medido também podem ser provocadas por efeitos mecânicos no sistema de traslado da amostra, tais como trepidações, instabilidades,

e falhas na reprodutibilidade do posicionamento. Estes efeitos são especialmente importantes na medida de distorção de fase, pois levam a deslocamentos do feixe sobre a íris e podem mascarar a perturbação causada pelo termo não-linear. Devemos portanto levar todos estes fatores em conta para determinar a resolução de uma montagem experimental, e avaliar qual o menor valor de Δn que conseguiremos medir.

A principal distinção entre os métodos de Varredura Z apresentados é a forma pela qual a amostra introduz a perturbação no feixe. Na Varredura Z de Transmissão, a alteração ocorre em todo o volume da amostra. Temos portanto a soma da perturbação sobre vários ciclos do sinal, o que resulta em um efeito maior que o observado na Varredura Z de Reflexão. Nesta última, a perturbação ocorre na interface, e não temos a sobreposição do efeito de vários ciclos. Podemos neste caso obter um aumento na distorção relativa do sinal pelo uso da Reflexão Inclinada de luz polarizada. Como mostramos, este método permite um aumento de cerca de 30 a 20 vezes no efeito não-linear da reflexão.

Para termos uma idéia da capacidade de cada método, vamos comparar os valores limites da variação do índice de refração que cada método permite. Considerando que o sistema tem uma resolução de 0,1% da intensidade, o valor de Δn que cada montagem pode medir é mostrado na Tabela 6.

Tabela 6: Comparação entre a resolução dos diversos métodos de Varredura Z:

Método de Varredura Z:	Transmissão	Reflexão com Incidência Inclinada	Reflexão com Incidência Normal
Δn	10^{-7}	10^{-4}	10^{-3}

Os valores para a Varredura Z de Transmissão foram estimados para uma amostra de 1 mm de espessura, com um comprimento de onda de 500 nm.

Podemos concluir que a grande sensibilidade da Varredura Z de Transmissão justifica seu uso no estudo de não-linearidades óticas em materiais transparentes. A Varredura Z de Reflexão possui uma sensibilidade muito menor, e seu emprego se justifica no caso de amostras onde a Varredura Z de Transmissão não é possível, como é o caso de materiais absorptivos, ou no caso de estudo de efeitos óticos em superfície.

A Varredura Z de Reflexão Inclinada amplia em pelo menos uma ordem de grandeza o alcance da Varredura Z de Reflexão. Podemos por este método ampliar a resolução e medir variações dos termos óticos não-lineares que não poderiam ser observadas pela Varredura Z de Reflexão com incidência normal.

7. Conclusão

Durante nosso trabalho no mestrado, apresentamos e demonstramos experimentalmente uma nova técnica de medida de efeitos óticos não-lineares, baseada nas distorções de fase e amplitude sofridas por um feixe gaussiano quando este é refletido por um meio que apresente não-linearidades óticas. Empregando este método pudemos medir variações do índice de refração induzidas pelo feixe incidente menores que 10^{-4} .

Além disso, como consequência deste trabalho, desenvolvemos e implantamos em nosso Laboratório um sistema de aquisição de dados para realização de medidas de efeitos óticos não lineares, empregando as diversas técnicas baseadas no método de Varredura Z.

O sistema implementado permite o estudo de não-linearidades óticas no índice de refração e no coeficiente de absorção de diversos materiais. Realizamos inicialmente medidas do termo não-linear do índice de refração em amostras de Aluminato de Gadolínio e Rubi empregando a medida de Varredura Z de Transmissão com resolução temporal. Obtivemos com esta medida valores de n_2 que concordam com os encontrados na literatura.

Nosso interesse no estudo de efeitos óticos não-lineares em materiais opacos e superfícies nos levou à implantação da Varredura Z de Reflexão. Tal método permite o estudo de amostras opacas, caso em que não é possível o uso da Varredura Z de Transmissão. Conseguimos um aumento de 28 vezes na sensibilidade desta técnica pelo uso de um feixe polarizado com incidência oblíqua sobre a superfície do material em estudo.

Para comprovar o aumento e demonstrar a aplicação deste novo método (Varredura Z de Reflexão com Incidência Inclinada) aplicamos a técnica a um cristal ótico previamente caracterizado. Deste modo, comprovamos os efeitos previstos teoricamente.

Os resultados mostram que a variação da refletância provocada pelos efeitos óticos não-lineares muda de sinal conforme realizemos a medida com ângulos acima ou abaixo do ângulo de Brewster.

Observamos ainda o aumento relativo no efeito não-linear da reflexão quando nos aproximamos deste ângulo. Por este aumento, pudemos medir variações do índice de refração que não poderiam ser medidas por uma Varredura Z de Reflexão tradicional, qual emprega um feixe com incidência perpendicular.

O sistema de aquisição de dados desenvolvido permite uma resolução de 0,1 % na intensidade. As flutuações do laser e a resolução do sistema de aquisição de dados dificultam a obtenção de resultados confiáveis abaixo deste limite. No entanto, uma Varredura Z de Reflexão com incidência normal resultaria em variações de intensidade abaixo do limite de detecção. Pelo uso da Varredura Z de

Reflexão Inclinada aumentamos a variação relativa na intensidade, possibilitando esta medida.

A grande vantagem no uso desta técnica está na possibilidade do emprego de uma intensidade menor no estudo de efeitos óticos não lineares de superfície e em materiais absorptivos. Podemos desse modo nos manter afastados dos regimes críticos de dano à amostra pelo emprego de lasers de menor potência, ou analisar amostras onde a mudança do índice de refração é limitada por saturação.

A técnica desenvolvida se mostrou eficiente no estudo de absorvedores saturáveis, porém sua principal aplicação será em materiais que não possam ser analisados pela Varredura Z de Transmissão, como é o caso do GaAs e outros semicondutores do grupo III-V estudados com fótons de energia acima da energia de banda. Existem diversos estudos de efeitos óticos não lineares em energias próximas à energia de banda do material [51], porém não temos conhecimentos de estudos com fótons acima desta energia. Esperamos que o método proposto se mostre adequado a estas medidas, suprimindo a falta de observações de não-linearidades óticas nesta situação.

Outra possibilidade interessante é o estudo de estruturas de baixa dimensionalidade nestes semicondutores e seus efeitos óticos, como poços quânticos (“quantum-wells”) e pontos quânticos (“quantum-dots”). Tais estruturas são crescidas próximo à superfície de um cristal semiconductor, sendo adequado o uso da técnica de Varredura Z de Reflexão para sua análise.

O emprego da técnica de Varredura Z de Reflexão envolveu até o momento estudo da reflexão pela primeira face de um cristal. Temos porém análises teóricas indicando que o estudo da segunda reflexão pode ser aplicado no estudo de filmes finos [52]. Tal linha de pesquisa também se mostra interessante, e estudos poderão ser feitos no futuro empregando esta técnica.

Apresentamos no Apêndice estudos preliminares de efeitos óticos não-lineares em um cristal de GaAs. Entre as metas deste estudo estão as observações de efeitos não-lineares em estruturas semiconductoras, além da observação de efeitos térmicos nestes materiais.

8. Apêndice I: Medidas de não-linearidades óticas em Arseneto de Gálio

Apresentamos neste apêndice resultados preliminares obtidos no estudo de efeitos óticos não-lineares em Arseneto de Gálio em energias maiores que a energia de banda. Medidas preliminares apontam para efeitos óticos não-lineares de cerca de $8 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$ para n_2 e de $-3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$ para κ_2 . A operação em regime pulsado não pôde eliminar totalmente os efeitos térmicos, pois a duração do pulso (10 ns) é maior que o tempo de termalização dos portadores no semiconductor (2,3 ns). A magnitude do efeito, no entanto, é maior que a esperada se tivéssemos apenas a contribuição térmica.

8.1. Efeitos térmicos estudados pela Varredura Z de Reflexão

Na apresentação do método de Varredura Z de Reflexão, mostramos como os efeitos óticos não lineares irão provocar distorções em um feixe refletido por sua superfície. No entanto, na primeira apresentação deste método [43], foi mostrada a distorção do feixe refletido provocada por dilatações do material, como consequência do aquecimento resultante da absorção do feixe.

No caso apresentado, considerou-se que um feixe incidente sobre uma superfície provoca por aquecimento uma dilatação que seja proporcional à intensidade no ponto de incidência.

$$H(\rho) = UI(\rho) \tag{8-1}$$

onde ρ é da coordenada radial do feixe incidente, e U é uma constante de proporcionalidade.

Considerando um feixe gaussiano incidindo sobre uma superfície, o feixe refletido por esta estará sujeito a uma distorção provocada pela dilatação térmica. A dilatação irá fazer com que a superfície se mostre curvada, de modo que a reflexão será semelhante à obtida para um espelho esférico (Figura 8.1).

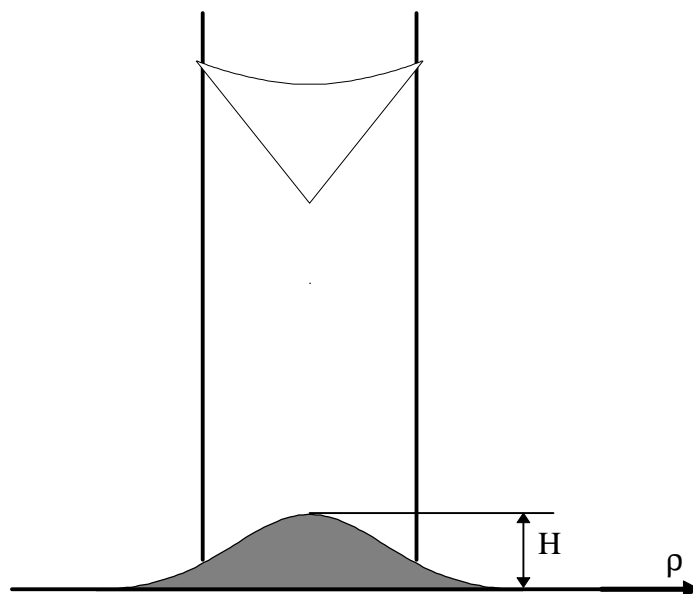


Figura 8.1: Elevação da superfície provocada pela incidência de um feixe. A dilatação térmica fará com que o feixe refletido sofra uma distorção de fase, o que não ocorreria em uma superfície plana.

Retornando à montagem da Varredura Z de Reflexão, que reproduzimos na Figura 3.12, a amostra atingida pelo feixe apresentará uma elevação da superfície que será maior quanto maior for a intensidade. Neste caso, esperamos que a dilatação seja maior na região próxima à cintura do feixe, resultando em uma divergência no sinal refletido.

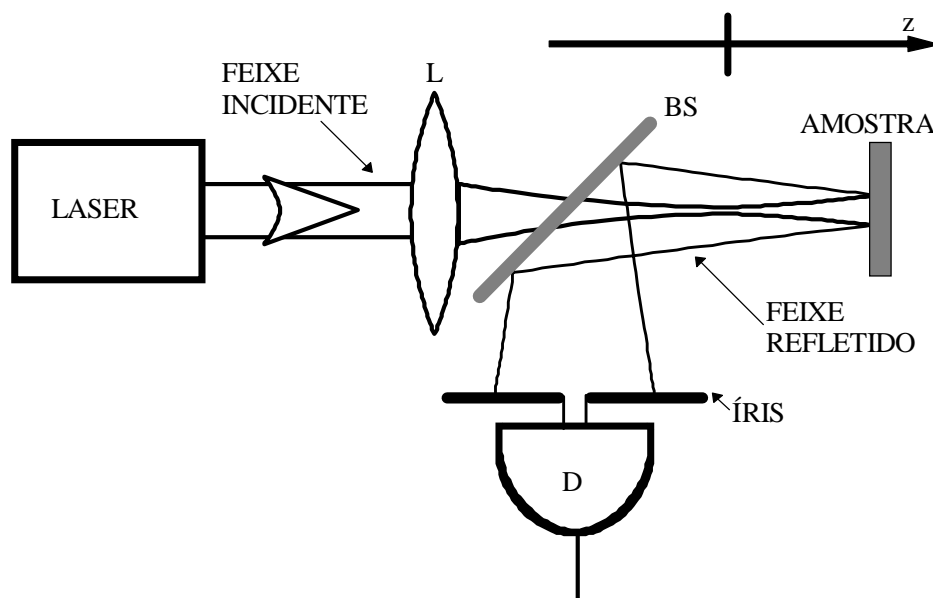


Figura 8.2:Montagem para uma Varredura Z de Reflexão, onde mostramos o detetor e a íris para medir distorções de fase. A posição z da amostra é definida a partir da distância à cintura do feixe. O divisor de feixe (BS) desvia o feixe refletido para o detetor D e a íris.

Para a amostra situada antes do foco, o aumento da divergência irá concentrar o feixe sobre o centro da íris, provocando um aumento na intensidade sobre o detector. Posicionando a amostra além da cintura, a divergência irá provocar agora um mínimo de intensidade. O resultado será semelhante ao observado para uma amostra com uma não-linearidade positiva do coeficiente de absorção, como vimos no capítulo 3.2.

Analisando matematicamente a distorção provocada na superfície da amostra, iremos considerar que a dilatação do feixe refletido irá gerar uma distorção de fase na frente de onda incidente, produzindo um avanço de fase no centro do feixe comparado às bordas. Iremos ignorar o desvio sofrido pela inclinação em um dado ponto ρ do material, por esta ser muito pequena (da ordem de 10^{-4} rad). Podemos deste modo expressar a reflexão do feixe por

$$r(\rho, z) = r_0 \exp[i 2k UI(\rho, z)] \quad (8-2)$$

O termo linear da reflexão (r_0) corresponde à reflexão de Fresnel, expressa pela equação (3-44). Neste caso a dependência da reflexão com a posição de incidência radial ρ sobre a amostra posicionada a uma distância z da cintura do feixe será dada por um termo de fase, o qual representa o avanço de fase inserido na frente de onda pelo deslocamento da superfície.

Considere então o feixe Gaussiano incidente dada pelas equações (3-2) a (3-7). Neste caso o feixe refletido será dado por

$$E_R(\rho, z) = E(\rho, z)r_0 \exp[i\Delta\phi(\rho, z)] \quad (8-3)$$

onde a distorção de fase é dada por

$$\Delta\phi(\rho, z) = 2k UI(\rho, z) \quad (8-4)$$

A propagação do feixe refletido pode ser feita pelo emprego da decomposição em múltiplos feixes gaussianos, como foi feito para a Varredura Z de Transmissão. O campo sobre o anteparo será dado por

$$E_d(\rho, z, t) = \frac{E'_0(t)e^{-ikd}}{1 + iz/z_0} \sum_{m=0}^{\infty} \left[\frac{i\Delta\phi_0}{1 + (z/z_0)^2} \right]^m \frac{1}{m! G_m} \exp\left(-i \frac{k\rho^2}{2q'_m}\right) \quad (8-5)$$

onde

$$\frac{1}{q'_m} = \frac{1 - g(z)/|G_m|^2}{d + 2z} - i \frac{1}{d_m |G_m|^2}$$

(8-6)

$$g(z) = 1 + \frac{d + 2z}{R(z)}$$

(8-7)

$$d_m = \frac{\pi w^2(z)}{\lambda(2m+1)}$$

(8-8)

$$G_m = g(z) - i \frac{(d + 2z)}{d_m}$$

(8-9)

A intensidade da íris pode ser normalizada pela intensidade obtida para uma amostra situada na cintura do feixe na ausência de efeitos de distorção. Esta intensidade normalizada pode ser expressa por

$$R(z) = \frac{4\pi \int_0^{r_a} |E_d(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{S |r_0|^2 P}$$

(8-10)

onde a transmitância S da íris é expressa na equação (3-24).

A curva teórica esperada é mostrada na Figura 8.3. Vemos que o resultado é idêntico ao obtido com uma amostra onde κ_2 é positivo e o coeficiente de reflexão é puramente real (ou sua parte imaginária é desprezível). Nestes casos não podemos distinguir o efeito térmico do efeito ótico não-linear pelo resultado da Varredura Z.

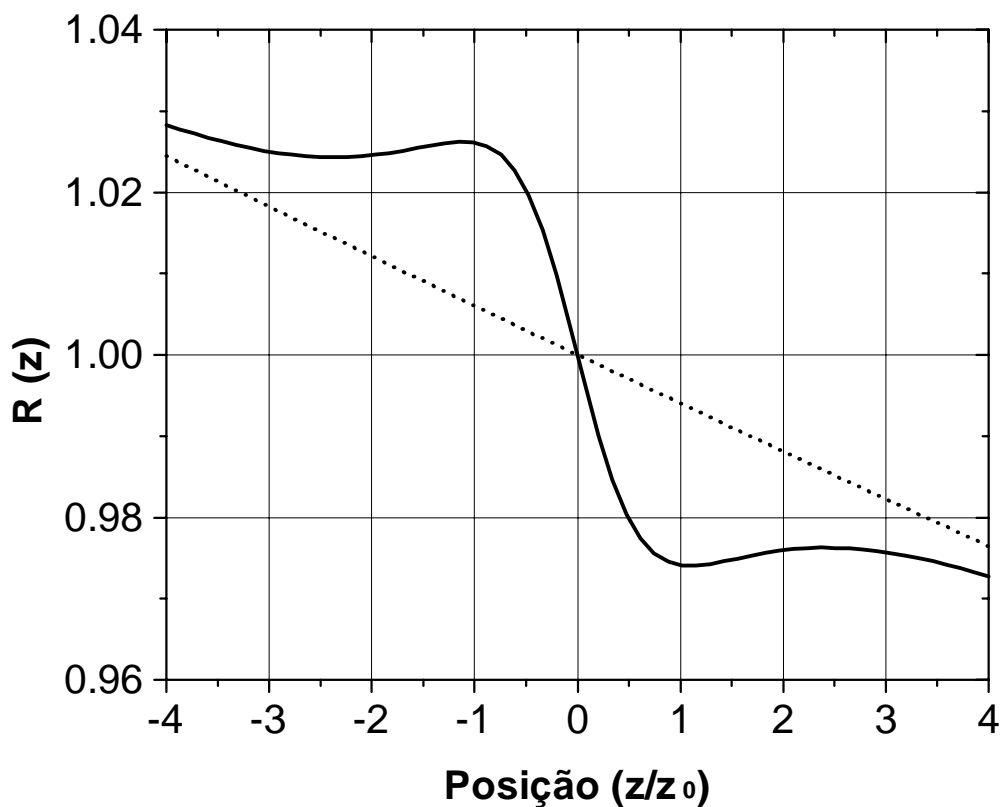


Figura 8.3: Curva teórica para medida de Varredura Z de Reflexão na observação de efeitos térmicos em superfícies. A linha pontilhada mostra o resultado esperado na ausência de efeitos de dilatação. A linha contínua mostra o resultado teórico para uma distorção de fase de 0,1 rad (8 nm de elevação para um comprimento de onda de 514 nm).

Aplicamos a medida de Varredura Z de Reflexão em amostras de GaAs. Os resultados obtidos para os ajustes empregando a teoria desenvolvida na referência [43] são mostrados na próxima seção.

8.1.1. Resultados obtidos

Aplicamos o método de Varredura Z de Reflexão para analisar a elevação da superfície de amostras de GaAs. Para isso, empregamos a montagem da Figura 3.12. Neste caso, tivemos o cuidado de introduzir uma leve inclinação na amostra para que o feixe refletido não retorne para o interior da cavidade, produzindo variações do modo do feixe e de sua intensidade devido a esta realimentação. Os dados foram obtidos com um laser de Argônio, contínuo, com $\lambda = 514,5$ nm. O valor de z_0 medido foi de $(2,20 \pm 0,15)$ mm.

Para medir a elevação térmica para diversos valores de potência incidentes, ajustamos aos dados obtidos Medimos então a elevação térmica para diversos valores de potência. Na Figura 8.4 vemos o resultado experimental para uma intensidade $I_0 = 51$ kW/cm². A linha contínua representa o ajuste efetuado para estes resultados a partir da equação (8-10), pela qual obtemos uma elevação de superfície no centro do feixe ($\rho = 0$) de (20 ± 1) nm.

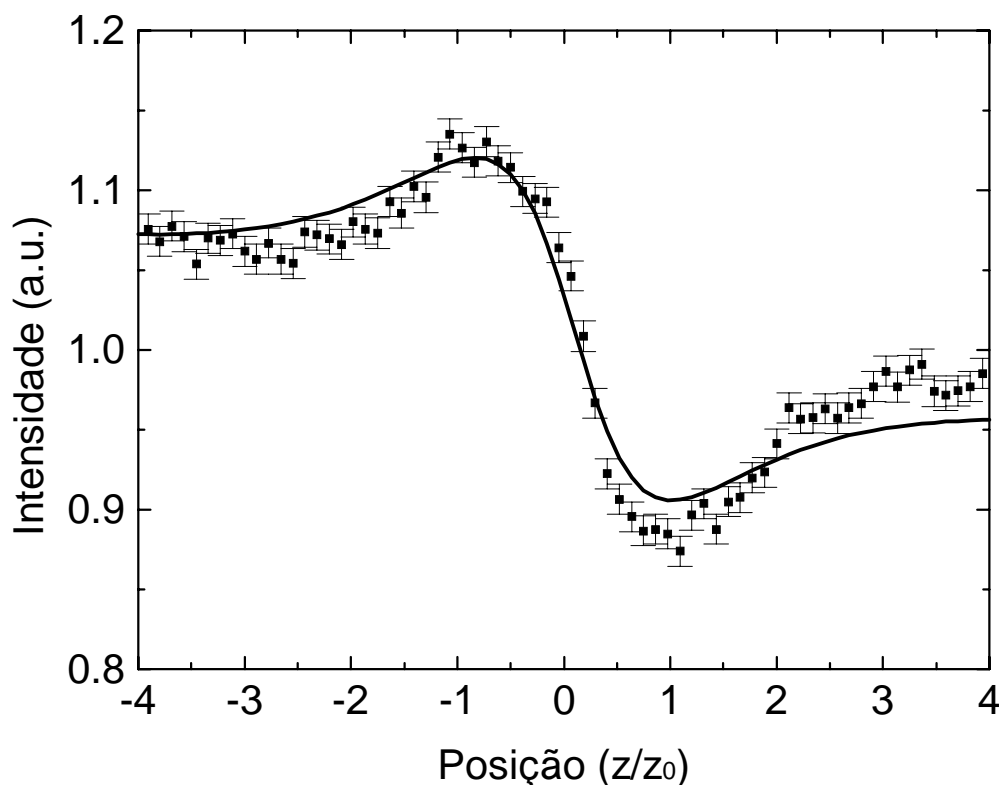


Figura 8.4 : Resultado de Varredura Z obtido para uma potência incidente de 291 mW e um valor de $z_0 = 2,20 \pm 0,15$ mm. $\lambda = 514,5$ nm.

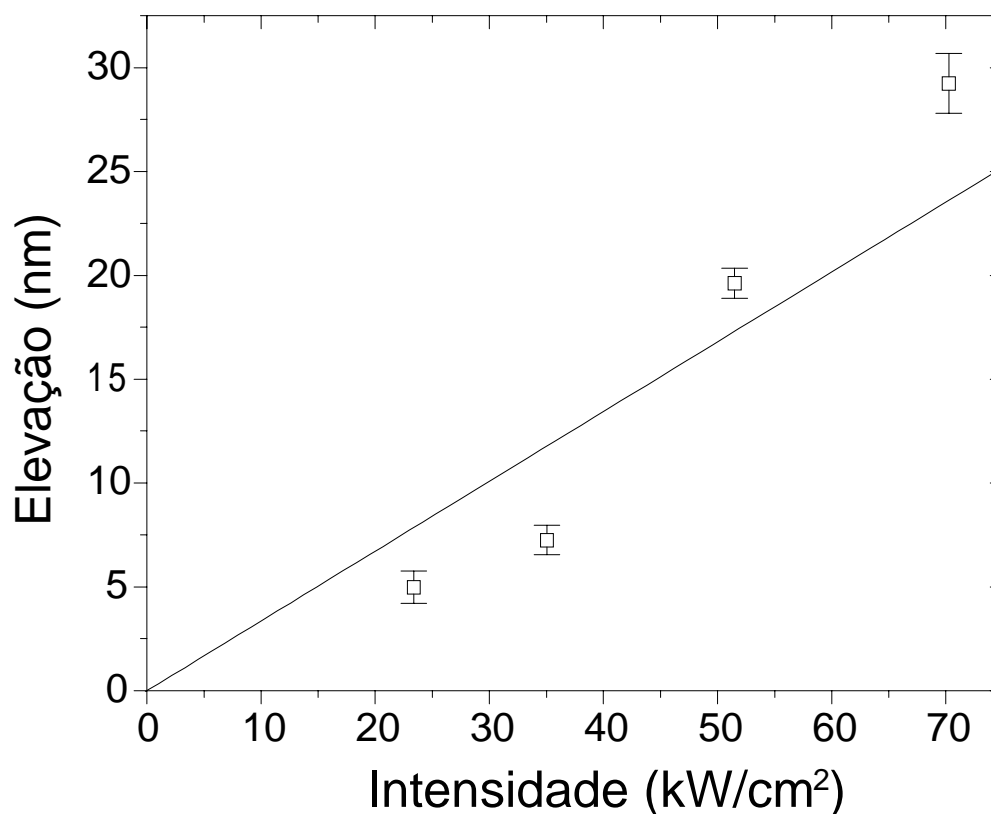


Figura 8.5 : Elevação em função da intensidade incidente. O ajuste refere-se a um coeficiente angular $U = (0.34 \pm 0.05) 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{kW}$

Temos na Figura 8.5 os valores das elevações medidas, tomando o modelo como base, para diversos valores de intensidade. Como vemos no ajuste obtido para a relação entre H e I (equação (8-1)), a descrição linear para a elevação com a intensidade não é satisfatória.

Poderemos empregar este efeitos de dilatação térmica em materiais para estudar sua absorção, seus parâmetros térmicos e especialmente a eficiência da conversão do feixe incidente em calor. Parte do feixe absorvido pela amostra converte-se em luz, emitida por fotoluminescência, enquanto que o restante se converte em calor. Se pudermos obter de forma precisa a fração convertida em calor, podemos medir a eficiência quântica de uma transição da banda. Este método pode portanto ser empregado em espectroscopia de expansão fototérmica [53], entre outros já existentes para medir efeitos de absorção, difusão e expansão térmica.

Observamos ainda que o tempo necessário para que ocorra a elevação é da ordem de μs , medido experimentalmente. Tal tempo deve-se à velocidade de condução de calor no material. Logo que o feixe incide sobre a amostra temos a absorção e conversão de luz em calor em uma região superficial da amostra (cerca de 110 nm). Com o passar do tempo, o calor gerado nessa região irá sendo conduzido para o interior do material levando ao aquecimento do volume e à dilatação térmica do material. Como a distorção do feixe ocorre em um intervalo de tempo muito maior que o tempo de decaimento dos portadores de carga no semiconductor, é

razoável esperar que o efeito seja devido à expansão térmica do material, e não a mudanças no coeficiente de absorção.

Procurando minimizar os efeitos de dilatação térmica do material, empregamos após estas medidas um feixe pulsado. Esperamos assim observar os efeitos que a população da banda de condução terá sobre os termos óticos da absorção e refração.

8.2. Regime pulsado:

Tendo iniciado nossos estudos sobre não-linearidades óticas em semicondutores em regime contínuo, observamos que o efeito de aquecimento da amostra predomina neste regime. Deste modo, o que poderemos observar é a dilatação do material pela absorção de parte do feixe incidente. Esperando reduzir os efeitos térmicos, estudamos a amostra em regime pulsado. Neste regime temos uma maior disponibilidade de potência, incidindo sobre a amostra em um tempo mais curto que o necessário para a propagação de calor no material e a dilatação em seu volume.

O laser empregado foi um laser de corante bombeado por um laser de Nitrogênio. Este último laser produz pulsos intensos no ultravioleta, de largura de 10 ns, com uma taxa de repetição entre os pulsos de cerca de 10 Hz, ajustável em uma faixa de 5 a 20 Hz. Este feixe é usado para bombear o laser de corante, cuja cavidade é sintonizável, permitindo ajustar continuamente o comprimento de onda da emissão. Empregamos o comprimento de onda de 538 nm neste laser, para manter a energia próxima ao caso estudado em feixe contínuo.

Com o bombeio do laser de Nitrogênio pulsado, o laser de corante fornece pulsos de 3 mJ, com largura de 10 ns. Isto representa uma potência de pico da ordem de 300 kW. Como o feixe de bombeio possui uma forma ovalada, o feixe emitido pelo laser de corante possui esta forma alongada, e deste modo não podemos considerá-lo um feixe gaussiano de modo TEM_{00} , o qual é necessário para as medidas de Varredura Z.

Neste caso, podemos empregar uma variante da Varredura Z, através do uso de um feixe “top-hat” [54]. Este feixe possui a forma de uma frente de onda plana, de amplitude uniforme dentro de uma região circular de raio a . Uma forma de obter tal feixe consiste em incidir uma frente de onda plana em uma abertura circular.

Para obter uma região aproximadamente plana da frente de onda do feixe de bombeio, expandimos o feixe através de uma lente divergente, e empregamos uma íris para retirar uma amostra pequena deste feixe. O resultado se aproxima do esperado. Uma lente convergente pode ser empregada para colimar novamente o feixe transmitido pela íris.

A montagem empregada é descrita na Figura 8.6. O feixe proveniente do laser é expandido por uma lente divergente L3 (distância focal $f = -25$ mm). A íris S2 é posicionada no centro do feixe. Desse modo, a intensidade atravessando a íris é aproximadamente a mesma em toda a frente de onda. A lente L2 ($f = 250$ mm) faz a colimação do feixe transmitido, o qual é direcionado para uma segunda lente convergente L3 ($f = 150$ mm). Esta lente irá produzir um foco com o máximo de intensidade a ser empregado na medida de Varredura Z. A polarização do feixe é horizontal, paralela ao plano de incidência.

Colocamos a amostra sobre um translador, de modo a posicioná-la ao longo do feixe nas proximidades de sua cintura. O feixe é refletido pela amostra inclinada, de modo que incida sobre um espelho solidário à amostra. o conjunto amostra-espelho é translado, e a distorção em fase e amplitude sofrida pelo feixe refletido é analisada pelo detetor D1 para cada posição z da amostra ao longo do feixe. Para observar as variações de intensidade do feixe refletido retiramos a íris S1, integrando toda a intensidade do feixe.

O detetor D2 realiza a normalização do sinal. O sinal dos dois detetores é medido por um osciloscópio digital, o qual realiza a média de 10 pulsos do laser, visando minimizar os efeitos de flutuação que, para o laser pulsado empregado, são da ordem de 30%.

A energia incidente sobre a amostra é reduzida pelo uso da íris. Neste caso, a energia cai para cerca de $2,8 \mu\text{J}$ por pulso, correspondendo a um pico de potência de 280 W.

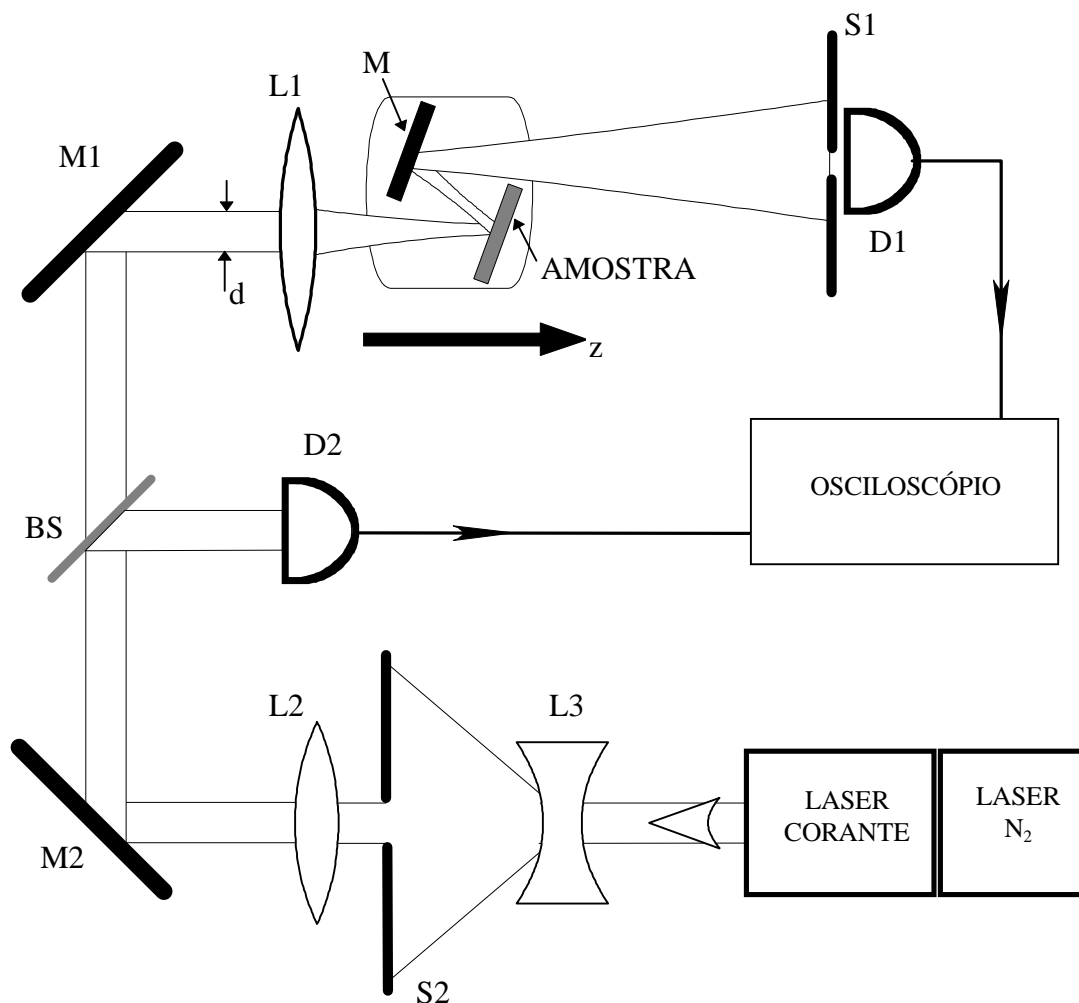


Figura 8.6: Montagem para Varredura Z de Reflexão em amostra de GaAs. O laser de corante é bombeado pelo laser de Nitrogênio, fornecendo pulsos de 3 mJ, 10 ns, em uma taxa de 10 Hz. $\lambda = 538$ nm. A lente divergente L3 e a íris S2 formam o feixe “top-hat” de cerca de 2,8 μ J. A lente L2 confere o feixe sobre L3, com um diâmetro d sobre esta lente .

O feixe concentrado pela lente irá produzir um disco de Airy [38] próximo ao foco. Seguindo a nomenclatura empregada em [54] vamos definir o raio do feixe no foco como

$$w_0 = \lambda \frac{f}{d}$$

(8-11)

Neste caso temos que o raio do disco de Airy é igual a 1,22 w_0 , f é o foco da lente, d é o diâmetro do feixe circular (“top-hat”) incidindo sobre a lente.

Empregando a difração de Fresnel, podemos descrever o feixe nas proximidades do foco. Neste caso temos que o campo elétrico é dado por [38]

$$E(\rho, z) = E_0 e^{ikz} \int_0^1 J_0\left(\frac{\pi}{w_0} \rho \eta\right) \exp\left[-i \frac{\pi\lambda}{4w_0} z \eta^2\right] \eta d\eta \quad (8-12)$$

onde ρ é a coordenada radial do feixe propagante, k é o módulo do vetor de onda, λ é o comprimento de onda e η é uma variável auxiliar empregada na integral.

Retomando a teoria da Varredura Z de Reflexão, podemos calcular a amplitude do feixe refletido por uma superfície com uma não linearidade ótica pela equação (4-10). O campo refletido será então dado por

$$E_R(\rho, z) = E(\rho, z) \tilde{r}_0 [1 + \hat{r} \Delta\tilde{n}(\rho, z)] \quad (8-13)$$

onde os termos \tilde{r}_0 e \hat{r} estão definidos nas equações (4-4) e (4-5). Iremos assumir neste caso que a variação do índice de refração $\Delta\tilde{n}$ é linear com a intensidade incidente.

Propagando o feixe refletido até a íris podemos calcular a intensidade no centro deste. Iremos considerar que a distância da íris à amostra é muito maior que z_0 , e que o tamanho da abertura da íris é muito menor que o raio. Neste caso, fazendo um cálculo pela difração de Fraunhofer, podemos expressar a intensidade normalizada medida pelo detector D1 aproximadamente por

$$R(z) = 1 + \frac{\int_0^\infty E(\rho, z) \hat{r} \Delta\tilde{n}(\rho, z) \rho d\rho}{\int_0^\infty E(\rho, z) \rho d\rho} \quad (8-14)$$

Para calcular o valor medido por D1 sem a íris podemos integrar diretamente o valor do campo refletido. Neste caso teremos

$$R(z) = 1 + \frac{\int_0^\infty |E(\rho, z) \hat{r} \Delta\tilde{n}(\rho, z)|^2 \rho d\rho}{\int_0^\infty |E(\rho, z)|^2 \rho d\rho} \quad (8-15)$$

Nestas condições realizamos uma série de medidas com a íris fechada e aberta. O resultados e os ajustes são apresentados na Figura 8.7.

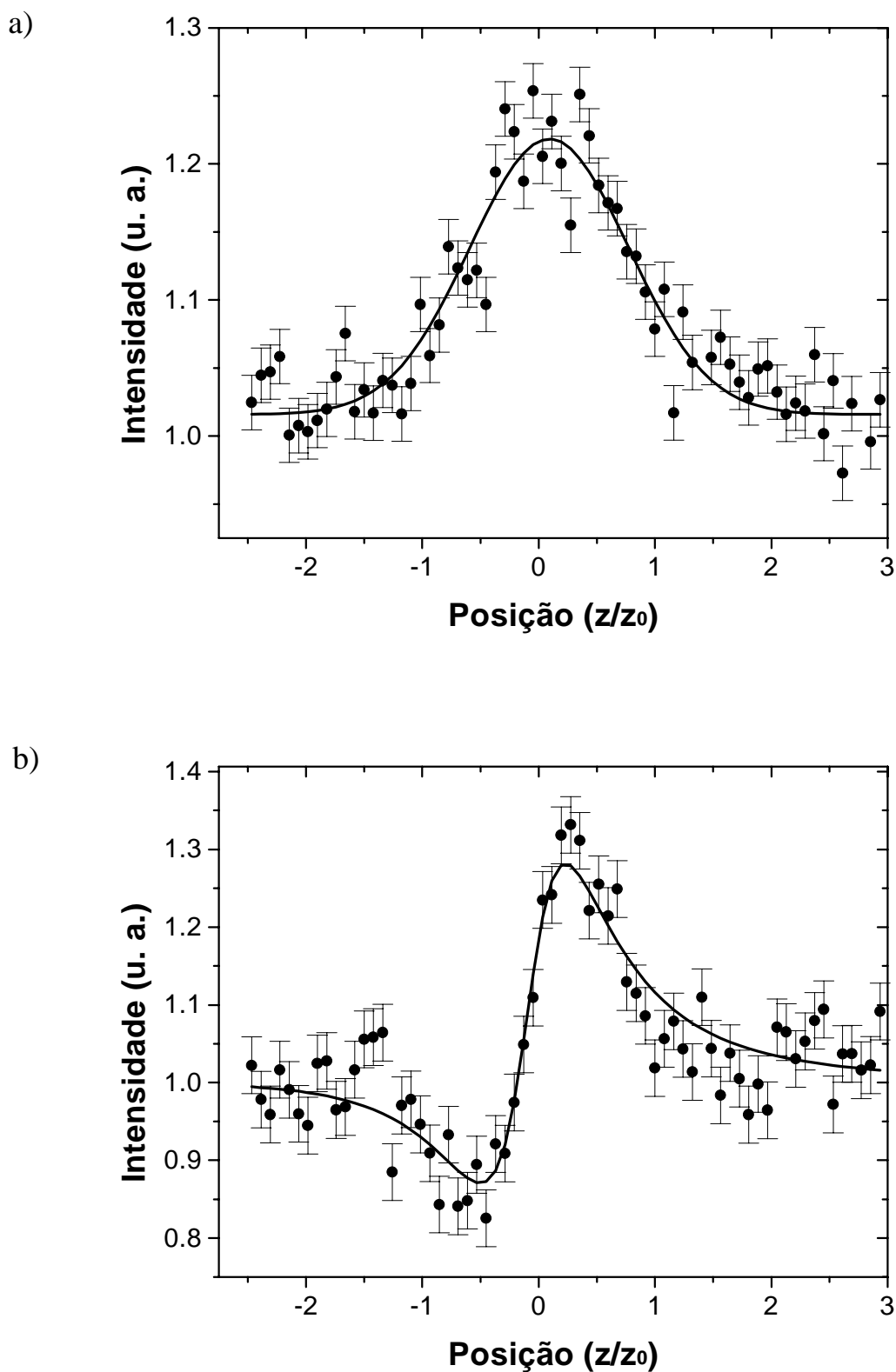


Figura 8.7: Resultados de Varredura Z com feixe “top-hat” de 2,8 μJ , 10 ns. $\lambda = 538$ nm. $z_0 = (6,2 \pm 1,2)$ mm. a) Medida com íris aberta. b) Medida com íris fechada.

Conforme vemos nas figuras, ocorre realmente um efeito não-linear no material, como mostra a distorção sofrida pelo sinal nas proximidades da cintura do feixe. Obtivemos uma variação de $(0,86 \pm 0,05)$ na parte real de reflexão e de $(-1,1 \pm 0,1)$ na parte imaginária. Dado os coeficiente lineares da amostra: $n_0 = 4,3$ e $\kappa_0 = 0,363$ [55], estimamos para os termos não-lineares da refração $n_2 = (7,8 \pm 0,6) 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$ e $\kappa_2 = (-2,8 \pm 0,7) 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Quanto à validade de tais observações, podemos observar que no caso presente a variação total de n e κ é da ordem do termo linear. Neste caso, a aproximação empregada ($\Delta n \ll n_0$ e $\Delta \kappa \ll \kappa_0$) não é mais válida, e a medida vale apenas como estimativa do valor. Por outro lado, o feixe incide durante um intervalo de tempo de 10 ns, o qual é da ordem do tempo de recombinação dos pares elétron-lacuna gerados pela absorção do feixe incidente, que é de 2,3 ns [56]. Neste caso, durante a incidência do feixe, alguns elétrons irão recombinar com as lacunas, provocando o aquecimento do material.

Podemos esperar neste caso a soma da contribuição eletrônica e da contribuição térmica neste regime. Para avaliar a contribuição térmica vamos considerar que o feixe incidente é parcialmente refletido (39 % conforme referência [55]). Da parcela de energia absorvida, parte é reemitida como fótons por luminescência. Estes fótons tem uma energia aproximadamente igual à energia de banda do material (1,42 eV). Desprezando o decaimento não-radiativo entre a banda de condução e a banda de valência, podemos estimar que 23% da energia incidente é convertida em calor.

Neste caso a variação de temperatura durante a incidência do feixe pode ser calculada por [53]

$$\Delta T \approx \frac{E}{\pi w_0^2 L_{ef} C_p} \quad (8-16)$$

onde podemos considerar a profundidade do aquecimento igual à penetração do feixe na amostra. A partir do valor de κ_0 podemos ver que $L_{ef} = 112 \text{ nm}$. A capacidade térmica do GaAs é igual a $1,7 \text{ J}/(\text{cm}^3 \text{ K})$. Vemos que a variação da temperatura será próximo a 1.000 K durante o pulso. Tomando o valor de $dn/dT = 18,7 10^{-5} \text{ K}$ para este material [25] obtemos um valor aproximado para $\Delta n = 0,2$ se formos considerar apenas os efeitos térmicos.

Pelo valor de $\hat{r} = 0,13$, vemos que esta variação não é suficiente para justificar os resultados observados na Figura 8.7. Podemos concluir que neste caso temos tanto a contribuição de efeitos térmicos quanto de efeitos eletrônicos, porém a contribuição do primeiro deve ser bem menor que a do segundo.

Podemos concluir que o efeito observado se deve à população da banda de condução pelo feixe incidente, a qual irá alterar as propriedades óticas do material.

Para uma melhora nas medidas, será necessário aprimorar a resolução do sistema de aquisição. As flutuações do laser pulsado produzem incertezas muito elevadas nos valores medidos. Por isso, uma primeira forma de melhorar a medida é empregar uma média de vários pontos, para amenizar o problema da flutuação.

Outra melhoria seria o emprego de detetores mais rápidos. Os detetores empregados não conseguiam uma boa definição temporal do sinal, pois sua resolução máxima é de 10 ns. Empregando detetores que possam definir o sinal, com uma resposta menor que 1 ns, podemos aplicar métodos de resolução temporal em pulsos curtos pelo desenvolvimento de uma extensão da técnica sugerida na referência [57].

Outro ponto a ser estudado é a aplicação da Varredura Z de Incidência Inclinada próximo ao ângulo de Reflexão mínima deste material. Podemos obter um aumento de 24 vezes na sensibilidade da montagem pelo uso da técnica apresentada no capítulo 4. Com isto aumentamos a variação relativa do coeficiente de reflexão e podemos empregar uma potência menor, evitando que ocorra a saturação do efeito não-linear no material e garantindo que a variação do índice de refração seja bem menor que o termo linear.

Esperamos ainda eliminar os efeitos térmicos pelo emprego de pulsos mais curtos, evitando assim a termalização dos elétrons excitados durante o tempo de medida. Os pulsos devem ser da ordem de 0,1 ns para evitar que os efeitos de termalização sejam importantes na medida realizada.

9. Apêndice II: Feixe Gaussiano

Conforme vimos durante a apresentação deste trabalho, empregam-se geralmente feixes gaussianos na medida dos termos não-lineares de refração e absorção em medidas de Varredura Z.

Da derivação da equação de onda, considerando a aproximação paraxial [10], temos uma solução para a propagação de um feixe na direção z, expressa pela equação do feixe gaussiano

$$E(\rho, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{i\phi(z)} \exp\left[-\frac{ik\rho^2}{2R(z)} - ikz\right] \exp\left[-\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right] e^{-i\omega t} \quad (9-1)$$

onde $R(z)$ corresponde ao raio de curvatura da frente de onda do feixe:

$$R(z) = z \left[1 + \left(z_0/z \right)^2 \right] \quad (9-2)$$

$w(z)$ corresponde ao raio do feixe na posição z:

$$w(z)^2 = w_0^2 \left[1 + \left(z/z_0 \right)^2 \right] \quad (9-3)$$

z_0 é o comprimento de Rayleigh e w_0 é o raio do feixe na cintura. A relação entre z_0 e w_0 é dada por

$$z_0 = \pi \cdot w_0^2 / \lambda \quad (9-4)$$

O termo de fase é dado por

$$\phi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (9-5)$$

A equação (9-1) é idêntica à expressa em (3-2). A intensidade do feixe gaussiano é proporcional ao quadrado do módulo do campo, sendo dada por

$$I(\rho, z) = I_0 \cdot \frac{w_0^2}{w^2(z)} \cdot \exp(-2\rho^2 / w^2(z))$$

(9-6)

Vemos que I_0 corresponde à intensidade máxima, a qual ocorre no centro da cintura do feixe ($\rho=0, z=0$). A integral da intensidade é igual à potência total do feixe (P). Vemos portanto que

$$I_0 = \frac{2P}{\pi w_0^2}$$

(9-7)

Estas equações exprimem, de forma geral, um feixe gerado por uma cavidade ressonante de um laser. Existem outros modos de feixe, partindo da aproximação paraxial da equação de onda. Este conjunto de soluções, conhecido como equações de Hermite-Gauss, representam modos de ordem superior do campo em uma cavidade. Porém estes são geralmente menos intensos que o modo principal. No nosso trabalho, consideramos sempre que o laser gerava um feixe no modo TEM₀₀.

O significado físico dos termos expressos na equação do feixe gaussiano é dado a seguir:

- Raio do feixe w(z):

Esta grandeza define o ponto onde a amplitude do campo cai a 1/e do valor no centro do feixe. Quanto à intensidade, corresponde a 1/e² da intensidade no centro do feixe.

Se tomarmos uma região do feixe limitada radialmente por $\rho < w(z)$, temos 86 % da potência total do feixe no interior desta região, independente da posição z.

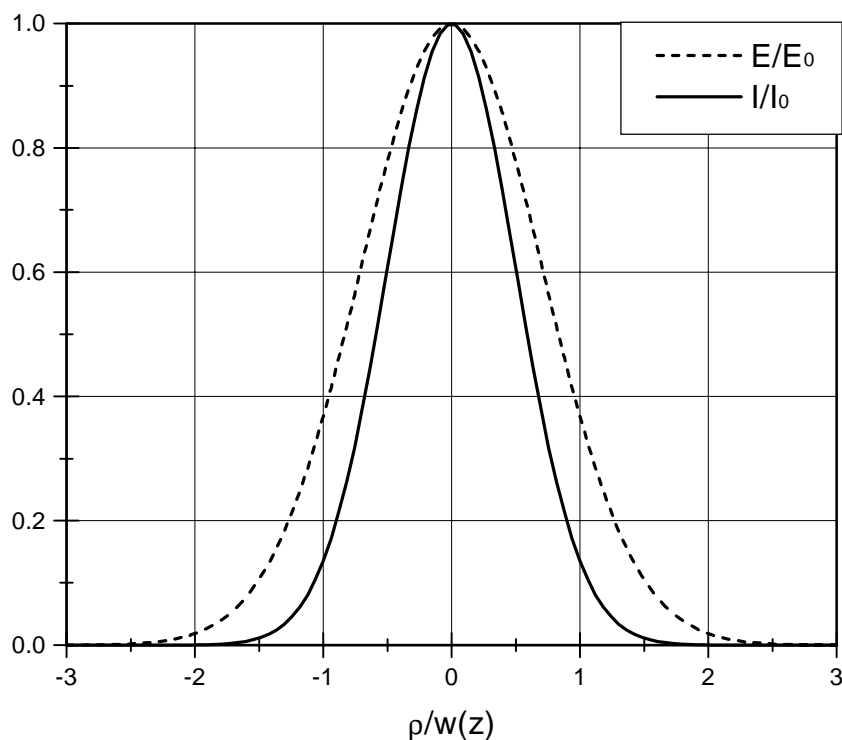


Figura 9.1: Dependência radial da intensidade e do campo elétrico de um feixe gaussiano. Observe que no ponto onde $\rho = w(z)$, a intensidade cai a 13% e o campo a 37% do valor no centro do feixe.

Este raio varia com a posição z , tendo um valor mínimo no qual definimos a cintura do feixe w_0 , correspondendo à posição $z=0$.

- Comprimento de Rayleigh (z_0):

O significado do comprimento de Rayleigh corresponde à região a partir da cintura onde passamos do campo próximo para o campo distante. É a posição onde a área do feixe dobra, ou seja, o raio do feixe vai a 1,41 do raio na cintura do feixe.

Para compreendermos melhor, vemos na Figura 9.2 a região próxima à cintura do feixe. Nesta região podemos ver a cintura do feixe e o Comprimento de Rayleigh. O parâmetro confocal do feixe corresponde ao dobro do comprimento de Rayleigh, e marca a região onde a intensidade é máxima.

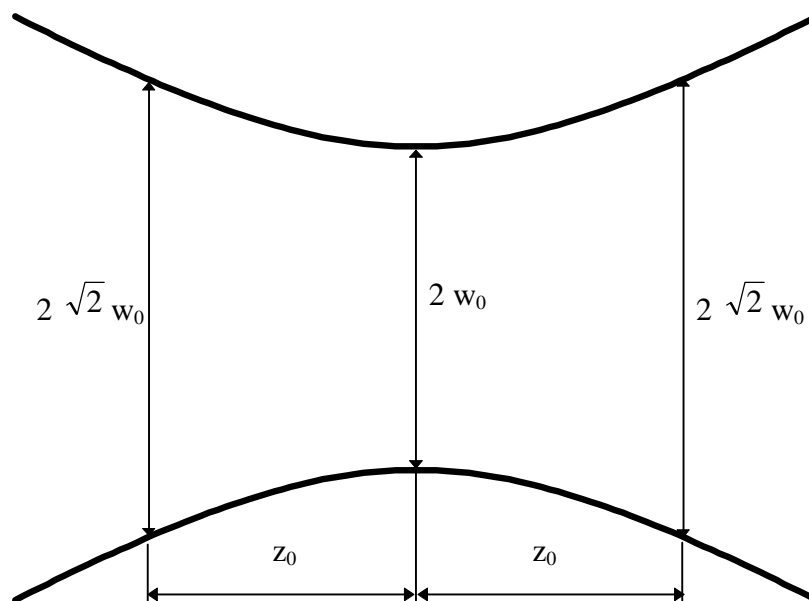


Figura 9.2: Região da cintura do feixe, mostrando o diâmetro do feixe $2w_0$, o comprimento de Rayleigh z_0 e o diâmetro na posição $z = z_0$.

- Divergência do feixe:

Vemos pela equação (9-2) que o raio do feixe correspondente a $1/e$ da amplitude do campo (w) varia com a distância à cintura. Para valores de $z \gg z_0$ temos aproximadamente

$$w(z) \cong \frac{w_0}{z_0} z$$

(9-8)

Podemos deduzir a partir da equação do raio no campo distante o ângulo de divergência do feixe. Este ângulo pode ser expresso por

$$\theta = \frac{2\lambda}{\pi w_0}$$

(9-9)

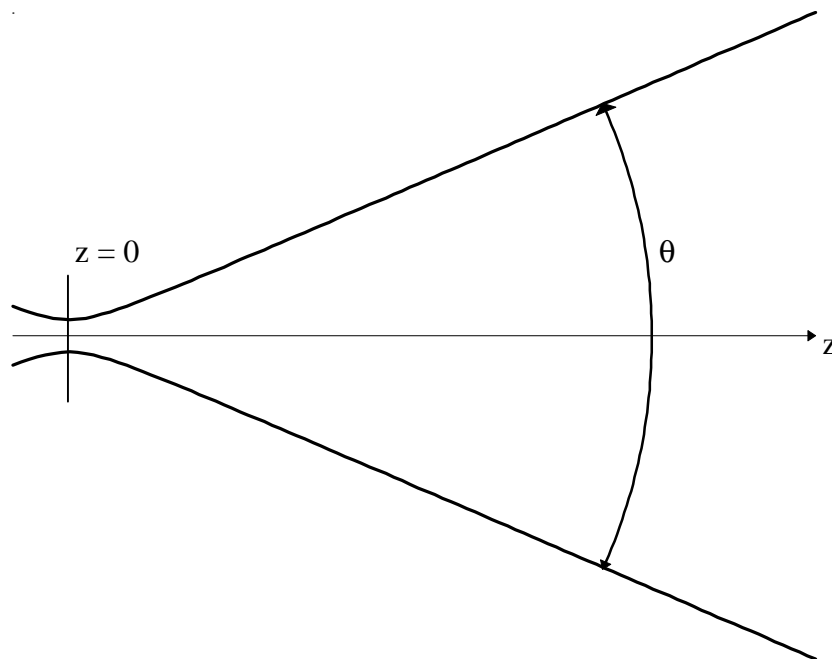


Figura 9.3: Definição do ângulo de divergência do feixe gaussiano, a partir da variação do raio do feixe no campo distante.

Note que quanto menor for o diâmetro do feixe na cintura, maior será a divergência.

- Transmitância por uma abertura circular:

A transmitância do feixe gaussiano por uma abertura circular coaxial ao feixe pode ser calculada a partir da intensidade do feixe gaussiano (9-6). Considere uma abertura circular de raio r_a . A potência transmitida pela abertura será dada por

$$P_T(z) = 2\pi \int_0^{r_a} I(\rho, z) \rho d\rho = P \left(1 - e^{-2r_a^2/w^2(z)} \right)$$

(9-10)

Temos como resultado a transmitância da íris expressa na equação (3-24). Note que a transmitância depende da distância da íris à cintura do feixe, além do valor de z_0 do feixe gaussiano.

- Medida do raio do feixe e caracterização do modo gaussiano:

Podemos expressar o feixe em coordenadas cartesianas, em lugar das coordenadas cilíndricas. Neste caso a expressão para a intensidade será dada por

$$I(x, y, z) = I_0 \frac{w_0^2}{w^2(z)} \exp\left[-2 \frac{x^2 + y^2}{w^2(z)}\right] \quad (9-11)$$

Para avaliar o perfil do feixe, podemos empregar uma lâmina delgada, a qual deve ser deslocada perpendicularmente ao feixe, bloqueando parte da intensidade. Medimos a potência total transmitida em diversas posições da lâmina. Para um feixe gaussiano, a potência medida em função da posição pode ser calculada a partir da equação acima, obtendo

$$P(x', z) = P \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_{-\infty}^{x'} \exp\left[-2 \frac{x^2}{w^2(z)}\right] \frac{1}{w(z)} dx \quad (9-12)$$

onde a coordenada x' é a posição da lâmina.

Se tomarmos uma quantidade suficientemente grande de pontos para levantar a curva da potência expressa acima, podemos calcular a derivada desta curva. O resultado será uma gaussiana, a partir da qual podemos fazer um ajuste e avaliar quanto o feixe se aproxima do modo gaussiano e o valor do raio do feixe na posição z da lâmina.

Medindo desta forma o raio em diversas posições, podemos voltar à equação (9-2) e determinar o valor de z_0 e w_0 , lembrando da relação entre os dois, dada pela equação (9-4).

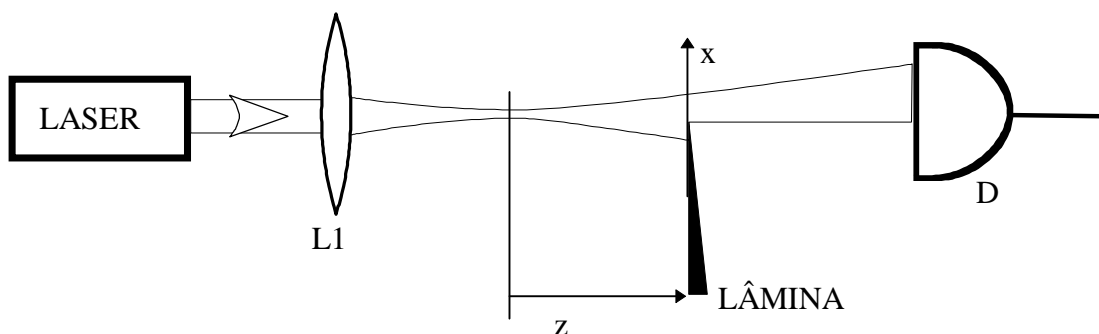


Figura 9.4: Montagem para medida da cintura do feixe. A medida consiste em levantar a curva entre a potência medida pelo detetor D e a posição da lâmina x em diversos pontos ao longo do feixe (z).

Se o feixe possui realmente um perfil gaussiano podemos realizar uma medida rápida do raio, tomando para isso a posição da lâmina para 75% e 25 % da potência total, medida pelo detetor D na Figura 9.4. A diferença entre estas duas posições da lâmina nos dá o valor de $w(z)$. Vemos pela equação (9-12) que

$$w(z) = \frac{\Delta x}{0,6745} \quad (9-13)$$

podemos obter rapidamente o valor de $w(z)$ em vários pontos e assim calcular o valor de w_0 .

Um exemplo de curva obtida pelo método da lâmina em uma medida do diâmetro do feixe é mostrada na Figura 9.5. O resultado corresponde à equação (9-12), e a partir da curva obtemos um valor aproximado de $w(z) = 1,9$ mm.

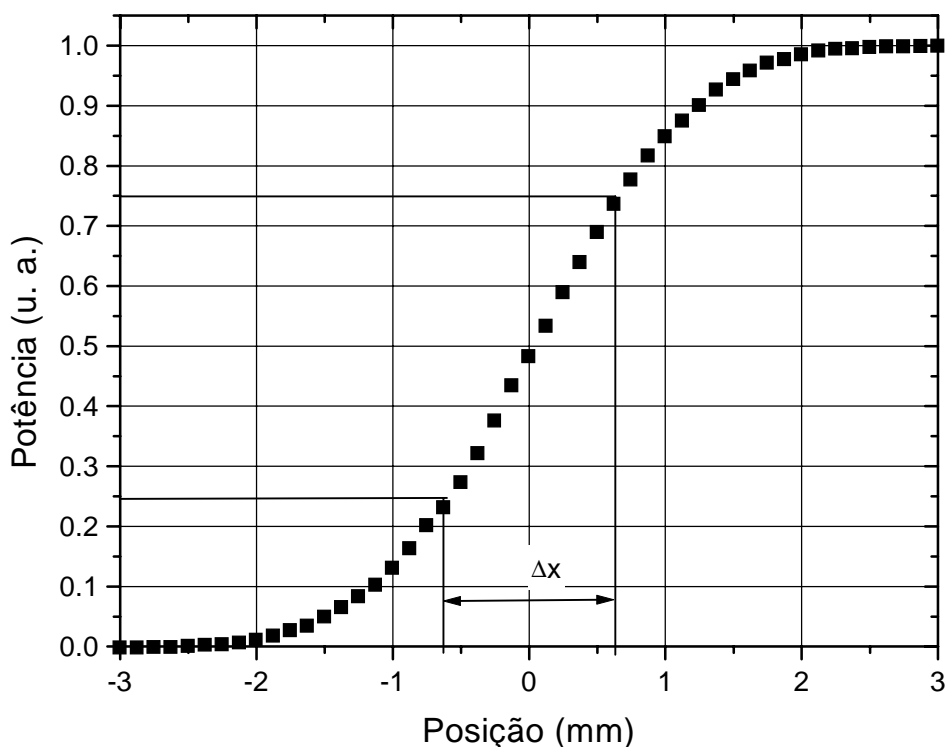


Figura 9.5: Resultado de uma medida de diâmetro do feixe. A distância entre os pontos correspondentes a 25% e 75% da potência é dada por $\Delta x = 1,26$ mm.

Derivando esta curva, obtemos o perfil gaussiano do feixe mostrado na Figura 9.6. Desta curva, o ajuste da gaussiana nos fornece um valor de $w(z) = (1,87 \pm 0,03)$ mm. Pela curva vemos ainda que o ajuste da gaussiana ao modo do feixe empregado resulta em uma boa aproximação. Vemos ainda a concordância entre o valor obtido tomando apenas dois pontos da curva e o valor obtido fazendo o levantamento do perfil gaussiano completo.

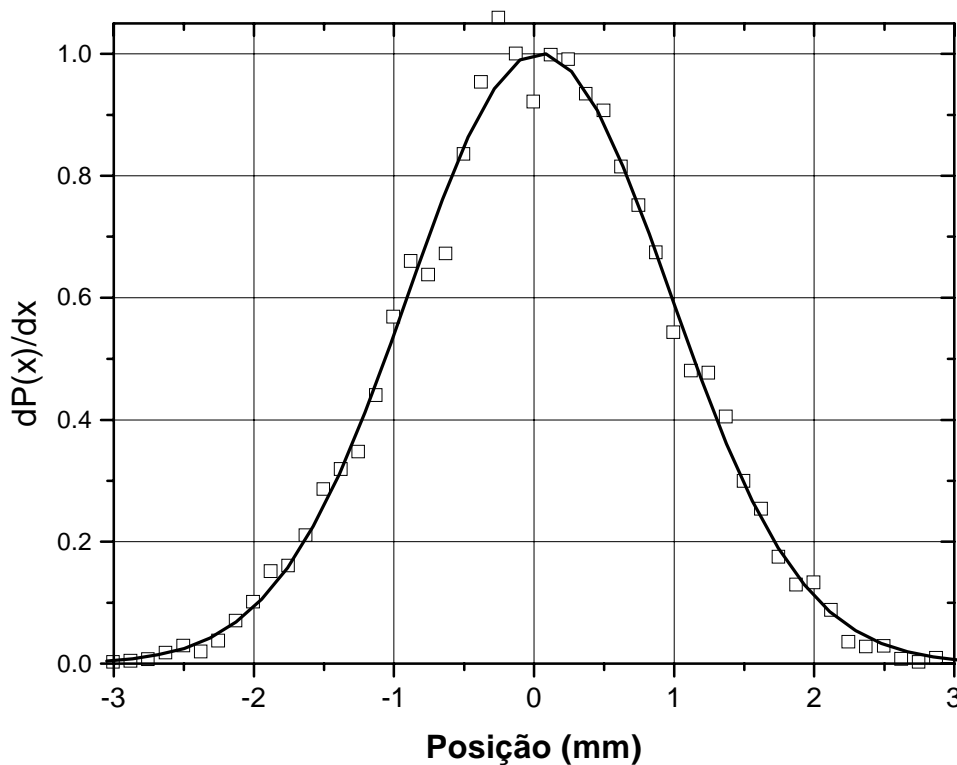


Figura 9.6: Derivada da curva experimental apresentada na figura anterior. A linha contínua representa o melhor ajuste de uma gaussiana, correspondendo a um valor de $w(z) = (1,87 \pm 0,03)$ mm.

10. Apêndice III: Placa de Aquisição de Dados

Apresentamos a seguir uma breve descrição da placa de aquisição de dados montada em nossos laboratórios. Na Figura 10.1, temos o circuito responsável pela multiplexação da entrada do conversor A/D em oito canais (4051), selecionados pelo CI 74273. Este mesmo CI fornece quatro saídas digitais para controla do motor de passo. O CI 741 é um operacional, o qual garante a alta impedância de entrada no sistema de medida.

Na Figura 10.2 temos o conversor A/D (AD574J) e o circuito responsável pelas entradas digitais, dando acesso ao barramento interno de dados da placa (CI 7424).

Na Figura 10.3 vemos o circuito responsável pelas saídas analógicas e digitais. Trata-se do 8255, que fornece três saídas paralelas de 8 bits. Duas destas saídas são empregadas para os conversores D/A 1408, e a terceira fornece uma saída digital de 8 bits de alto “fan-out” (até seis entradas digitais). As saídas analógicas são amplificadas através de dois amplificadores operacionais.

Os demais componentes fazem a comunicação do barramento interno da placa com o barramento XT do computador.

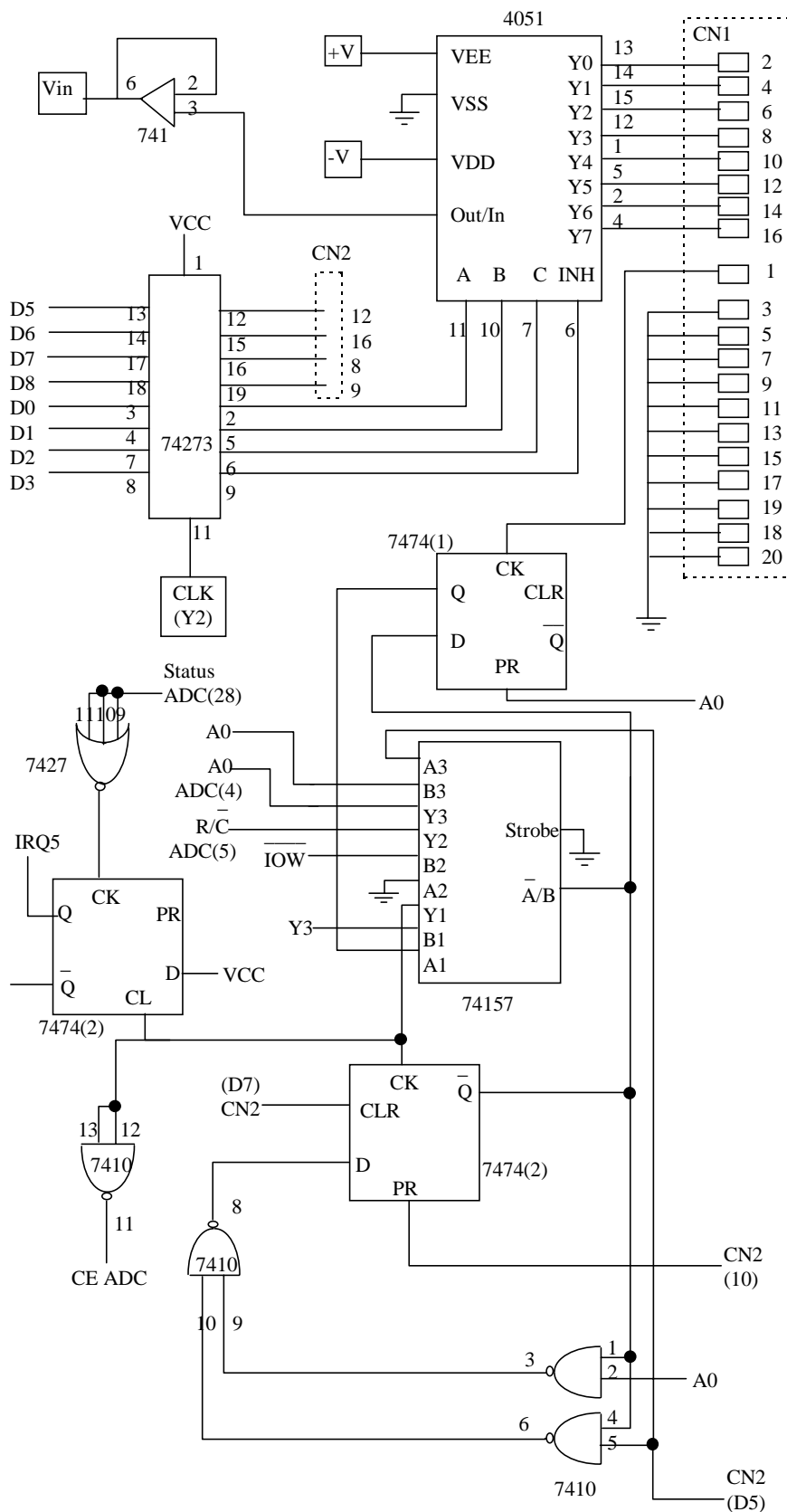


Figura 10.1: Esquema elétrico da seleção do ADC, do circuito de chaveamento das oito entradas analógicas e das quatro saídas digitais ligadas ao “latch” 74273

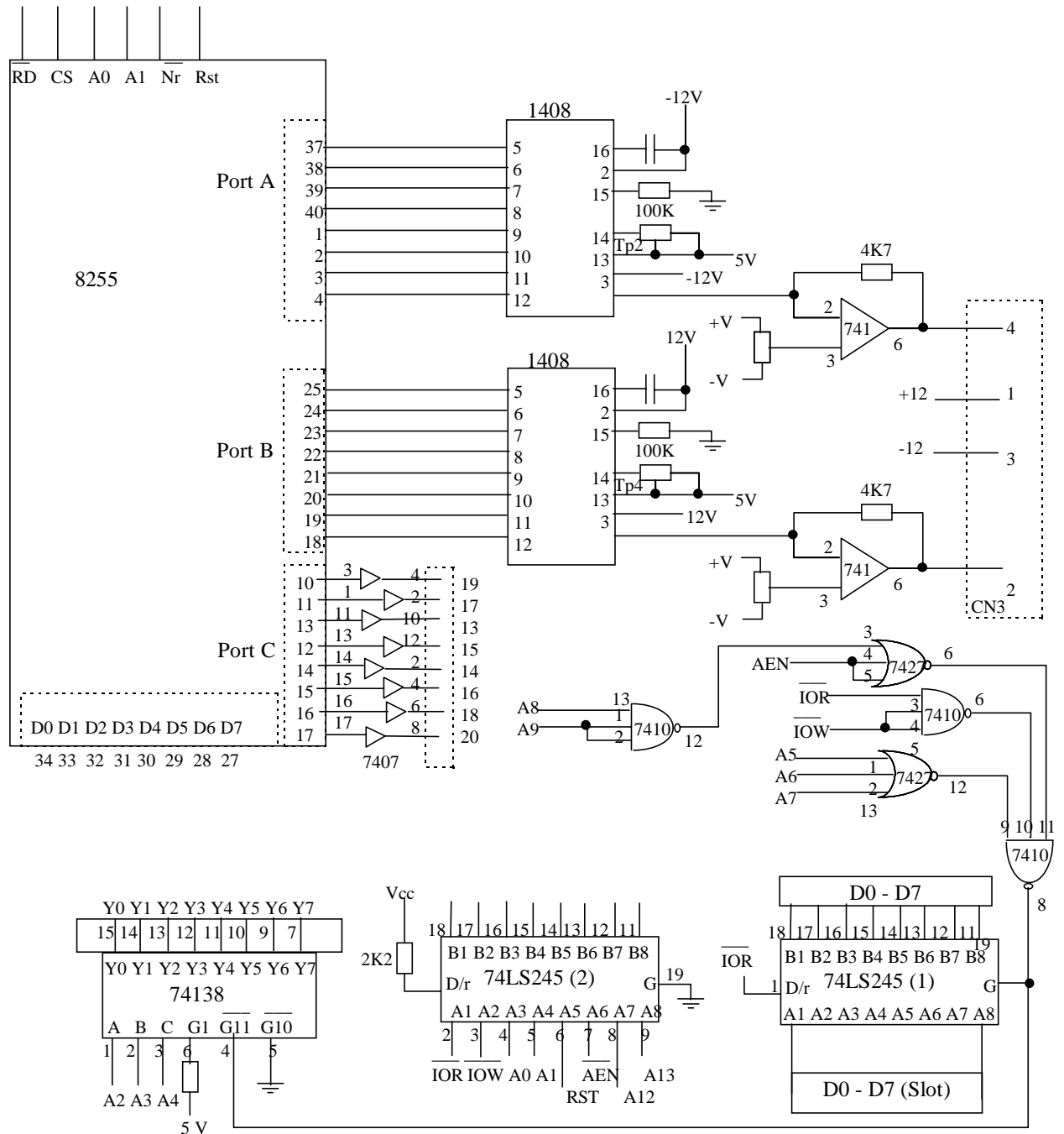


Figura 10.3: Circuito da saída paralela 8255, ligada aos conversores D/A 1408 e às oito saídas digitais, e do circuito de seleção da placa (“chip-select”).

11. Referências

- 1 The Quantum Theory of Light ; R. Loudon; Claredon Press- Oxford (1973).
- 2 Modern Optics; R. D. Guenter; John Wiley & Sons (1990).
- 3 Stimulated Optical Radiation in Ruby; T. H. Maiman; Nature, **4736**, 493-494 (1960).
- 4 Generation of optical harmonics; P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, Phys. Rev. Lett.; **7**, 118-119 (1961).
- 5 Fourier series and boundary value problems; R. V. Churchill; McGraw Hill (1941).
- 6 The Principles of Nonlinear Optics; Y. R. Shen; J. Wiley & Sons (1984).
- 7 Determinação do índice de refração não-linear do BaLiF₃: Ni²⁺ por meio da técnica de Varredura Z para absorvedores saturáveis; dissertação de Mestrado apresentada por R. E. Samad no Inst. de Física da USP (1997).
- 8 Nonlinear Photonics; H. M. Gibbs, G. Khitrova; N. Peyghambarian; Springer-Verlag (1989).
- 9 Handbook of Nonlinear Optical Crystals; V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan; D. N. Nikogosyan; Springer-Verlag (1990).
- 10 Lasers; A. E. Siegman; University Science Books (1986).
- 11 Experimental observation of picosecond pulse narrowing and solitons in optical fibers; L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, J. P. Gordon; Phys. Rev. Lett.; **45**; 1095-1098 (1980).
- 12 High sensitivity single beam n₂ measurement; M. Sheik-Bahae, A. A. Said, E. W. Van Stryland; Opt. Lett.; **14**; 955-957 (1989).
- 13 Measurements of third-order optical nonlinearities of nematic liquid crystals; P. Palffy-Muhoray, H. J. Yuan, L. Li, Michael A. Lee, J. R. DeSalvo, T. H. Wei, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland; Mol. Cryst. Liq. Cryst.; **207**; 291-305 (1991).
- 14 Nonlinear optical susceptibilities measured in poly(paraphenylene cumulene) by the Z scan technique; R.K.Meyer, R.E. Benner, Z.V.Vardeny, X. Wei, J.B. Lin, T. Barton; Mol. Cryst. Liq. Cryst.; **256**; 605-610; (1994).
- 15 Chromium-doped saturable absorbers investigated by the Z-Scan technique; L. C. Oliveira, S. C. Zilio; Brazilian Journal of Physics; **24**, 498-501 (1994).

-
- 16 Dispersion of bound electronic nonlinear refraction in solids; M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland; *IEEE J. Quantum Electron.*; **QE-27**; 1296-1309 (1991).
 - 17 Measurements of nondegenerate optical nonlinearity using a two-color single beam method; H. Ma; A. S. L. Gomes, Cid B. de Araújo, *Opt. Lett.*; **59**; 2666-2668 (1991).
 - 18 *Semiconductor Physics, An Introduction*; K. Seeger; Springer-Verlag (1982).
 - 19 *Nonlinear Optics*; R. W. Boyd; Academic Press, Inc. (1992).
 - 20 *Classical Electrodynamics*; J. D. Jackson; Wiley Eastern Limited (1978).
 - 21 *The Elements of Nonlinear Optics*; P. N. Butcher , D. Cotter; Cambridge University Press; (1993).
 - 22 *Modern Quantum Mechanics*; J.J. Sakurai; Addison-Wesley Inc. (1985).
 - 23 *Nonlinear Optics and Quantum Electronics*; M. Schubert, B. Wilhelmi; Wiley & Sons (1986).
 - 24 Mode-mismatched thermal lens determination of temperature coefficient of optical path length in soda lime glass at different wavelengths; M. L. Baesso, J. Shen, R. D. Snook; *J. Appl. Phys.*; **75**; 3732-3737 (1994).
 - 25 Optical distortion by heated windows in high-power laser systems; M. Sparks; *J. Appl. Phys.*; **42**; 5029-5046 (1971).
 - 26 Determination of the adiabatic piezo-optic coefficient of liquids; V. Raman, K. S. Venkataraman; *Proc. Roy. Soc. A*; **171**; 137-147 (1939).
 - 27 Transverse self-phase modulation in ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ crystals; T. Catunda, L. A. Curry; *J. Opt. Soc. Am. B*; **7**; 1445-1455 (1990).
 - 28 *Advances in Laser Chemistry*; A. C. Albrecht; Springer-Verlag; Berlin (1978).
 - 29 Nonlinear refractive index of glasses and crystals; M. J. Weber, D. Milam, W. L. Smith; *Opt Eng*; **14**; 955-957 (1989).
 - 30 Interferometric measurements of nonlinear refractive index coefficient relative to CS_2 in laser-system-related materials; M. J. Moran, C. Y. She, R. L. Carman; *IEEE J. Quantum Electron*; **QE-11**; 259-263 (1975).
 - 31 Nonlinear optical glasses for ultra-fast optical switches; S. R. Friberg, P. W. Smith; *IEEE J. Quantum Electron.*; **QE-23**; 2089-2094 (1987).

-
- 32 Nonlinear refractive index measurement of glasses using three-wave frequency mixing; R. Adair, L. L. Chase S. A. Payne; *J. Opt. Soc. Amer. B*; **4**; 875-881 (1987).
 - 33 Ellipse rotation studies in laser host materials; A. Owyong; *IEEE J. Quantum Electron.*; **QE-9**; 1064-1069 (1973).
 - 34 Optical switching and n_2 measurements in CS_2 ; W. E. Williams, M. J. Soileau, E. W. Stryland; *Opt. Commun.*; **50**; 256-260 (1984).
 - 35 Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam; M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, E. W. van Stryland; *IEEE J. Quantum Electron.*; **26**; 760-769 (1990).
 - 36 Single-beam time-resolved Z-scan measurements of slow absorbers; L. C. Oliveira and S. C. Zílio; *Appl. Phys. Lett.*; **65**; 2121-2123 (1994).
 - 37 Self-focusing and self-trapping in new types of Kerr media with large nonlinearities; H. J. Zhang, J. H. Wang, L. A. Wu; *Opt. Lett.*; **14**; 695-696 (1989).
 - 38 Principles of Optics; M. Born, E. Wolf; Pergamon Press (1959).
 - 39 Linear Systems, Fourier Transforms, and Optics; J. D. Gaskill; Willey & Sons, NY (1978).
 - 40 Effect of low-power nonlinear refraction on laser beam propagation in InSb; D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, S. D. Smith; *Opt. Lett.*; **4**; 331-333 (1974).
 - 41 Introduction to Optical Electronics; A. Yariv; Holt, Rinehart and Winston, Inc. (1971).
 - 42 Cooperative energy transfer and photon absorption; M. Altarelli, D. L. Dexter; *Opt. Comm.*; **2**; 36-38 (1970).
 - 43 Reflection Z-scan technique for measurements of optical properties of surfaces; D. V. Petrov, A. S. L. Gomes, C. B. de Araújo; *Appl. Phys Lett*; **65**; 1067-1069 (1994).
 - 44 Reflection of a Gaussian beam from a saturable absorber; D. V. Petrov, A. S. L. Gomes, Cid. B. de Araújo; *Opt. Comm*; **123**; 637-641 (1996).
 - 45 Differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of ruby and $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$; T. Catunda, J. P. Andreeta and J. C. Castro; *Appl. Opt.*; **25**, 2391-2395 (1986).

-
- 46 Aplicação da Técnica de Varredura Z ao Estudo de Não-linearidades Óticas em Absorvedores Saturáveis; Luimar Cavalcanti de Oliveira; Tese de Doutorado; Inst. de Física de São Carlos - USP (1995).
- 47 Saturation effects in Z-scan Measurements; L.C. Oliveira, T. Catunda, S.C. Zílio; Jpn. J. Appl. Phys; **35**, 2649-2652 (1996).
- 48 Fundamentos da Teoria Eletromagnetica; J. R. Reitz, F. J. Milford, R. W. Christy; Ed. Campus (1982).
- 49 Eclipsing Z-Scan measurement of $\lambda/10^4$ wave-front distortion; T. Xia, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, E. W. Van Stryland; Opt. Lett.; **19**; 317-319; (1994).
- 50 Dependence of the phase of the $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ nonlinear refractive index on the light intensity; M. J. V. Bell and S. C. Zilio; Phys. Rev. B, **47**; 6116-6118.
- 51 -Nonlinear refractive index and two photon absorption near half the band gap in AlGaAs.: A. Villeneuve, C. C. Yang, G. I Stegeman, Chen-Hui Lin, Hao-Hsiung Lin; Appl. Phys. Lett.; **62**; 2465-2467 (1993).
- Pump-probe Z-scan studies of GaAs nanocrystals grown in porous glass; M. D. Dvorka. B. L. Justus, A. D. Berry; Opt. Comm.; **116**; 149-152 (1995).
- Direct Measurements of dispersive nonlinearities in GaAs; Y. H. Lee, A. Chavez-Pirson, B. K. Rhee, H. M. Gibbs; Appl. Phys. Lett; **49**; 1505-1507 (1986).
- 52 Reflection Z-scan technique for the study of nonlinear refraction and absorption of a single interface and thin film; D. V. Petrov; J. Opt. Soc. am. B; **13**; 1491-1498 (1996).
- 53 Photothermal displacement spectroscopy: An optical probe for solids and surfaces; M. A. Olmstead, N. M. Amer, S. Kohn; Appl. Phys. A; **32**; 141-154 (1983).
- 54 Z-scan technique using top-hat beams; W. Zhao, P. Palffy-Muhoray; Appl. Phys. Lett; **63**; 1613-1615 (1993).
- 55 Optical Properties of III-V Compounds, Semiconductors and Semimetals, vol 3; R. K. Willardson, A. C. Beer; Academic Press (1962).
- 56 Physics of III-V Compounds, Semiconductors and Semimetals, vol 1; R. K. Willardson, A. C. Beer; Academic Press (1962).
- 57 Simple technique to reveal a slow nonlinear mechanism in a z-scanlike n_2 measurement; H. Toda, C. M. Weber; Opt. Lett; **17**; 1379-1381 (1992).