

Desenvolvimento de Um Sistema de Medição do Índice de Refração Não Linear

por

ALEXANDRE SILVA DUARTE

Orientador: Prof. Dr. Hugo Luis Fragnito

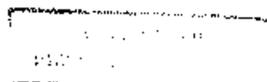
Este exemplar corresponde à redação final da Tese de mestrado defendida pelo aluno Alexandre Silva Duarte e aprovada pela comissão julgadora

Tese de Mestrado apresentada ao Instituto de Física Gleb Wataghin Universidade Estadual de Campinas

Dezembro de 1992

23/09/93

HLF



Este trabalho contou com o apoio financeiro dos órgãos
TELEBRAS, CNPq, FINEP
e FAP-UNICAMP.

BANCA EXAMINADORA:

Dr. Hugo Luis Fragnito (Orientador - IFGW - UNICAMP)

Dr. Tomaz Catunda (IFQSC - USP)

Dr. Gilberto de Matos Gualberto (IFGW - UNICAMP)

Dr. Daniel Pereira (IFGW - UNICAMP)

Dr. Edison Bittencourt (FEQ - UNICAMP)

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Hugo, por ter me dado a oportunidade de trabalhar com um assunto tão interessante, pelo compartilhamento de idéias e discussões e acima de tudo pela confiança depositada em meu trabalho

Aos amigos, Telma, Mané, Miriam, Leandro (leleu), Thoroh, Janúncio, Matinaga, Maria José, Helio Nogima, Luis Mundim, Marcos, Marcia, Daniel, Claudio, Tsuda, Adriana, Susana, Ciro, Valéria, Flavio, Lígia, pela convivência e amizade.

Aos técnicos, Waldemar, Romano, Bresil, João mendes, Raimundo, Silvio, pela amizade e disposição de ajudar.

Ao pessoal de fibras ópticas Simone, e Maurício, pela atenção, na qual fui sempre recebido.

Ao pessoal da secretaria, Stella, Melita, Rose, Rosemary, Marta, Maria Inês e Cidinha, pela ajuda sempre atenciosa.

Ao pessoal da república, Pedro, Dante, Wagner, Daniel, pela convivência sadia durante todo tempo que passamos juntos.

A dona Eliete pelo carinho e bom astral que sempre se dirigiu a mim

Um agradecimento muito especial ao prof. Dr. Elia Palange, pela grande colaboração no desenvolvimento deste trabalho.

E todos aqueles que direta ou indiretamente contribuíram para o andamento deste trabalho

Dedicatória

Esta tese é dedicada
A toda minha família
em especial a minha mãe
Vilma L. S. Duarte
a minha avó
Antonia Silva
e a minha namorada
Luciete de J. Costa

RESUMO

Neste trabalho desenvolvemos um sistema de medição de índice de refração não linear n_2 , utilizando a técnica de varredura-Z. Com laser de Nd:YAG ($\lambda = 1.06\mu m$). Medidas absolutas de n_2 são possíveis com erro de $\pm 10\%$ entanto que, para medidas relativas, o erro é menor que $\pm 0.5\%$. Mostramos que o alinhamento e calibração de todo sistema óptico e de medição, bem como um perfeito polimento da superfície da amostra são de importância fundamental para se conseguir medidas sensíveis, confiáveis e reprodutíveis.

Fizemos medidas em vidros dopados com semicondutores (VDS) da Corning Glass (CdS_xSe_{1-x}) e em (VDS) produzidos em nossos laboratórios (CdTe). Nos vidros da Corning obtivemos n_2 de 3.7 a $6.1 \times 10^{-15} cm^2/W$. Para as amostras de CdTe obtivemos n_2 de 1.5 a $5.1 \times 10^{-14} cm^2/W$. Os grande valores de n_2 observados nestes últimos são devidas a uma não linearidade ressonante de dois fótons.

ABSTRACT

In this work we have developed a system to measure the nonlinear refractive index n_2 using the Z-scan technique. The uncertainty in absolute measurements of n_2 is $\pm 10\%$ and in relative measurements is less than $\pm 0.5\%$. We show that the alignment and calibration of the whole optical and measuring system, as well as an accurate polishing of the sample surface are of fundamental importance to achieve sensitive, trustable and reproduceable measurements.

We have performed measurements in commercial semiconductor doped glasses (SDG) from Corning Glass (CdS_xSe_{1-x}) and in SDG samples prepared in our laboratories (CdTe). In the Corning samples we have obtained n_2 ranging from 3.7 to $6.1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/W$. For CdTe samples we have obtained n_2 ranging from 1.5 to $5.1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/W$. The large values of n_2 observed in this material is due a resonante enhancement of the nonlinearity two photon.

Conteúdo

1	Introdução	7
2	Efeito de autofocalização	11
3	Revisão das Técnicas de Medida de n_2	17
3.1	Técnica de mistura de quatro ondas degeneradas	18
3.2	Método interferométrico	23
4	Descrição da técnica de varredura-Z	29
4.1	Aspecto teórico da técnica de varredura-Z	33
4.2	Efeito de Absorção Não Linear	41
5	Descrição Experimental	47
5.1	Montagem Experimental	47
5.2	Estabilização e Otimização do Sistema de Medida	49
5.3	Calibração do Sistema de Medida	53
6	Medidas de n_2 em Vidros	63
6.1	Medidas nos Vidros da Corning	63
6.2	Medidas nos Vidros de CdTe	66
7	Conclusões e Perspectivas	73

Lista de Figuras

2.1	Distorção da frente de onda de um feixe laser levando à sua autofocalização, durante a propagação por um meio não linear [7]	12
2.2	Figura da autofocalização em um meio não linear e sua lente equivalente induzida para $P > P_{crit}$ [6]	13
2.3	efeito de a) autofocalização b) divergência normal c) autodefocalização, em uma célula contendo vapor de sódio observado na mesma distância	14
3.1	Esquema experimental da técnica (MQOD) [2]	18
3.2	a) trem de pulso mode-locking, Q-switched (bombeio). b) sinal gerado por MQOD em vidro SF-59 [2]	19
3.3	Dados experimentais da MQOD. A linha sólida são as curvas de ajuste da eq.(3.8) com os melhores valores para os parâmetros A, B e C. [2]	22
3.4	Esquema experimental da técnica interferométrica	24
3.5	Modelo de franja resolvida no tempo a) atraso de fase não linear criado pela braço contendo a amostra em estudo b) o atraso de fase não linear criado pelos dois braços são iguais c) atraso de fase criado pelo braço contendo CS_2 [10]	25
4.1	Esquema experimental da técnica de varredura-Z, na qual a transmitância $T = P_s/P_r$ é registrada como função da posição da amostra, z.	30
4.2	Efeito de lente na técnica de varredura-Z para o caso $n_2 > 0$. a) Quando a amostra está antes do foco o feixe aparece mais expandido na posição da abertura. b) Quando está após o foco o feixe tende a ser colimado.	32
4.3	Traços característicos de uma varredura-Z para os casos de a) $n_2 < 0$ e b) $n_2 > 0$. Simulação gerada por computador com $b=4$ mm, $\lambda = 1.06\mu m$, $I_0 = 1.4GW/cm^2$, $S=0.4$, $L=2$ mm, $w_0 = 25\mu m$ [7]	33

4.4	ΔT_{p-v} calculado como uma função da mudança de fase no foco ($\Delta\Phi_0$). A sensibilidade, como indicado pela inclinação da curva, decresce vagarosamente para tamanho de abertura largos ($S > 0$) [1]	38
4.5	a) medida de varredura-Z na amostra de ZnSe de 1mm de espessura possuindo má qualidade óptica na superfície (\diamond) medida em baixa intensidade, (+) medida em alta intensidade b)(\times) medida após a subtração das medidas em a) [1]	40
4.6	Medida de varredura-Z para o caso de amostras que apresentam absorção de dois fótons a) medida feita com a abertura ($S < 1$), b) medida feita sem a abertura ($S=1$) e c) razão entre as curvas anteriores a/b [7]	44
5.1	Esquema experimental utilizado neste trabalho	48
5.2	Montagem do sistema onde ambos detectores são sensíveis só a variação de intensidade	49
5.3	Razão entre o sinal e a referência, onde os dois detectores são sensíveis só a variação de intensidade	50
5.4	Montagem na qual o detector de sinal é sensível à variação do modo do laser e da intensidade, e o detector de referência é sensível só a variação de intensidade	50
5.5	razão entre o sinal e a referência, no caso onde o sinal é sensível a variação do modo do laser e intensidade, e a referência é sensível só a intensidade	51
5.6	Montagem na qual ambos detectores são sensíveis à variação do modo do laser e intensidade	52
5.7	Razão entre o sinal e referência no caso onde ambos detectores são sensíveis à variação do modo do laser e intensidade	52
5.8	Medida de varredura-Z em CS_2 deslocando a abertura (diâmetro = 6 mm) em relação ao eixo do feixe	53
5.9	Medida com CS_2 girando a amostra em torno de \hat{x} em ângulo de 20 mrad em cada medida	54
5.10	Medida com CS_2 girando a amostra em torno de \hat{y} em ângulo de 20 mrad em cada medida	55
5.11	Medidas em CS_2 onde variamos a intensidade e o tamanho da abertura	56
5.12	Variação ΔT_{p-v} em função da intensidade para várias aberturas, em CS_2	57
5.13	Resultado da varredura-Z em CS_2 usado em nosso cálculo	58
5.14	Medidas de varredura-Z na amostra # 2, em várias potências	59

5.15	Varição da transmitância em função da intensidade na amostra # 2, tendo imperfeições superficiais	60
6.1	Espectro de absorção dos vidros da Corning	64
6.2	medida de varredura-Z nas amostras CS-2.59, CS-2.63, CS-3.67, CS-3.68	64
6.3	Varição de transmitância em função a intensidade nas amostras CS-2.59, CS-2.63, CS-3.67, CS-3.68	65
6.4	Espectro de absorção das amostras de CdTe	67
6.5	Medidas de varredura-Z nas quatro amostras de CdTe, onde foram feitas medidas em $S=0.4$, $S=1$, e a razão $S=0.4/S=1$	68
6.6	Varição da transmitância em função da intensidade, nas quatro amostra de CdTe estudada	69

Lista de Tabelas

3.1	Valores medidos de n_2 de alguns vidros ópticos em $1,06 \mu\text{m}$. [2] . . .	22
3.2	resultado da medida de n_2 usando a técnica interferométrica [10] . . .	26
6.1	Intensidade utilizada e o valor absoluto de n_2 para várias amostras da Corning utilizando a técnica de varredura-z	66
6.2	Intensidade utilizada e o valor absoluto de n_2 para 4 amostras de CdTe, utilizando a técnica de varredura-Z	67

Capítulo 1

Introdução

O desenvolvimento de novos materiais vítreos com propriedades ópticas não lineares para aplicações em dispositivos de chaveamento totalmente ópticos tornou-se recentemente uma área de enorme interesse científico e tecnológico. A motivação de se obter estes novos materiais é a previsão de que no futuro os dispositivos puramente ópticos irão substituir gradualmente aos eletrônicos.

Para que um material possa ser usado como dispositivo óptico ele deve apresentar as seguintes características: alta não linearidade, ou seja alto índice de refração não linear (n_2), e que esta não linearidade tenha tempo de resposta curto (da ordem de centenas femtossegundos); possuir baixo coeficiente de absorção no comprimento de onda de interesse na área de comunicações ópticas; ser compatível com os processos de fabricação de guias de ondas e com sistemas de transmissão por fibras ópticas e, finalmente possuir alto limiar de dano por luz.

Neste trabalho apresentamos o desenvolvimento de um sistema de medição de índice de refração não linear de materiais, com potencialidade para utilização em dispositivos ópticos. Para isso utilizamos a técnica de varredura-Z que foi recentemente proposta por Sheik-Bahae et al. [1]. Foram feitas medidas em vidros comerciais da Corning e em vidros dopados com elementos semicondutores de CdTe fabricados pelo nosso grupo no Laboratório de Materiais Vítreos do Departamento de Eletrônica Quântica do Instituto de Física Gleb Wataghin.

A seguir apresentamos uma breve descrição dos próximos capítulos desta tese:

- No Capítulo 2, descrevemos o efeito de autofocalização, que é a base da técnica de varredura-Z
- No Capítulo 3, descrevemos duas outras técnicas que são utilizada para deter-

minar o coeficiente de refração não linear (n_2) de materiais.

- No Capítulo 4, fazemos uma descrição detalhada da técnica de varredura-Z, mostrando os aspectos teóricos envolvidos, e de como obter o coeficiente de refração não linear de suas medidas.
- No Capítulo 5, fazemos uma descrição do sistema experimental montado, e de todos procedimentos de estabilização e otimização realizados para obter medidas sensíveis.
- No Capítulo 6, apresentamos os resultados das medidas realizadas nos vidros dopados com microcristalitos de semicondutores fabricado pela Corning e com CdTe feitas em nossos laboratórios. Fazemos uma descrição dos efeitos envolvidos.
- No Capítulo 7, as conclusões deste trabalho e perspectivas de trabalhos futuros são apresentadas.

Bibliografia

- [1] Monsoor Sheik-bahae, A. A. Said, and E. W. Van Stryland "High-sensitivity, Single-beam n_2 measurements", *opt. Lett.*, 14, 955 (1989).

Capítulo 2

Efeito de autofocalização

Quando a potência de um feixe de luz excede um certo valor crítico, o diâmetro do feixe ao se propagar em um meio não linear começará a se contrair, formando um intenso foco após percorrer uma certa distância no material, este fenômeno de contração do diâmetro do feixe é em um meio não linear é comumente chamado de efeito de autofocalização do feixe de luz.

O efeito de autofocalização foi primeiramente discutido por Askar'yan [1] para microondas, e depois por Talanov [2] e Chiao et. al. [3] para feixes ópticos. Este efeito é produzido pela variação do índice de refração com a intensidade do feixe de luz aplicado em um meio, I , dada por:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (2.1)$$

onde n_0 é o índice de refração linear do material e n_2 é o índice de refração não linear. Considerando um feixe de luz monomodo com um perfil transversal Gaussiano propagando-se em um meio não linear com um índice de refração dado pela equação (2.1), onde $\Delta n = n_2 I$ é a mudança do índice de refração induzida pelo campo elétrico da luz aplicado. Se Δn for positivo, isto faz com que o feixe autofocalize, porque a parte central do feixe (mais intensa) experimentará um índice de refração maior do que as bordas (menos intensa), e portanto viajará com uma velocidade de fase mais lenta do que as bordas. Conseqüentemente, a frente de onda plana original do feixe ficará progressivamente mais e mais distorcida com a propagação dentro do material não linear da forma como vemos na figura 2.1. A distorção é similar á aquela imposta a um feixe atravessando uma lente positiva. Então uma lente positiva é formada no material pelo próprio feixe. É importante notar que, se Δn for negativo, acontecerá o efeito oposto, ou seja, o meio agirá como uma lente divergente autodefocalizando o

feixe de luz [4].

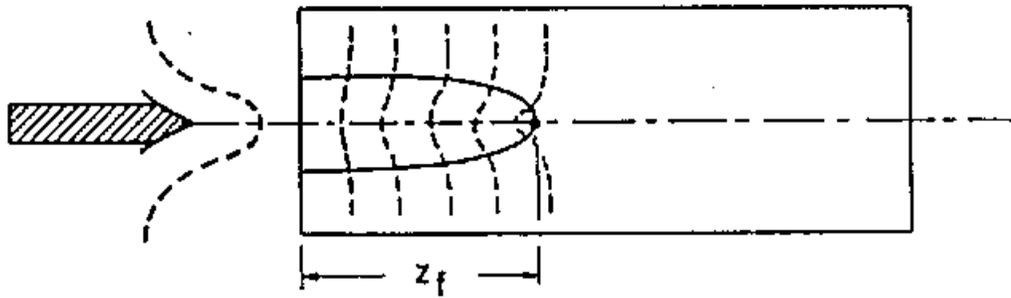


Figura 2.1: Distorção da frente de onda de um feixe laser levando à sua autofocalização, durante a propagação por um meio não linear [7]

Na óptica linear, existe um limite para o aumento da intensidade de um campo iluminado em um ponto focal de um sistema óptico que é devido ao alargamento do feixe devido à difração. Na óptica não linear contudo este efeito de alargamento do feixe devido a difração, pode ser compensado pela refração não linear, levando com isto ao efeito de autofocalização do feixe de luz, pois este efeito é proporcional a Δn , enquanto que a difração é inversamente proporcional ao quadrado do raio do feixe. Portanto, quando o feixe sofre autofocalização, seu diâmetro diminui, e ambos efeitos de autofocalização e difração ficam fortes; mas se o último cresce mais rápido do que o primeiro, então a difração vencerá a autofocalização, com isto o feixe autofocalizado atingirá um diâmetro mínimo e depois será difratado. Contudo, se a ação de autofocalização é mais forte que a difração, então o feixe continuará a autofocalizar para um diâmetro cada vez menor com a propagação do feixe dentro do material. Então, o efeito de autofocalização começará a ocorrer quando o alargamento devido à difração for compensado pela refração não linear. Isto acontecerá quando a potência do feixe de entrada no meio atingir um certo valor crítico, dado pela seguinte expressão [5]:

$$P_{crit} = \frac{(1,22)^2 \pi \lambda_0^2}{32 n_0 n_2} \quad (2.2)$$

Esta potência foi calculada para um feixe com perfil Gaussiano. Com esta potência o feixe propaga no meio sem divergir, ou melhor dizendo, o feixe de luz propaga no meio em uma distância longa sem mudar o seu diâmetro, ou seja, o feixe produz por si mesmo seu próprio guia de onda dentro do material. A propagação do feixe sem divergir é costumeiramente chamada de auto aprisionamento do feixe de luz.

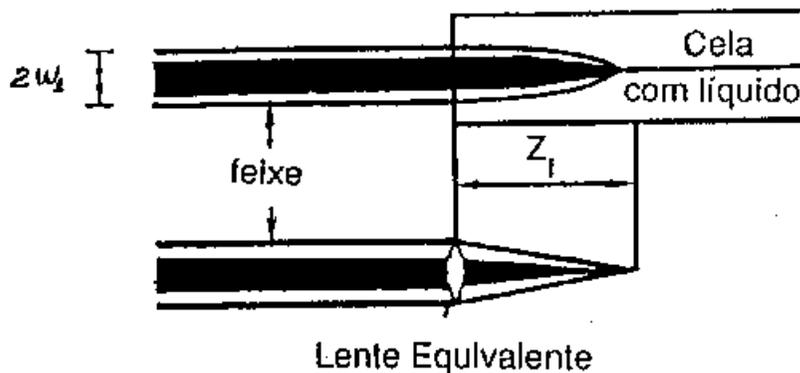


Figura 2.2: Figura da autofocalização em um meio não linear e sua lente equivalente induzida para $P > P_{crit}$ [6]

Quando a potência do feixe de entrada for maior que a potência crítica, os raios serão defletidos na direção do eixo do feixe dando lugar a autofocalização. Com isto o meio agirá como uma lente positiva (para $n_2 > 0$), cuja distância focal efetiva será dada por [6],

$$Z_f = \frac{w_1}{2} \sqrt{\frac{n_0}{n_2 I}} \quad (2.3)$$

onde w_1 é o raio do feixe de entrada. A figura 2.2 mostra o esquema de uma lente auto induzida pelo meio, onde $P > P_{crit}$.

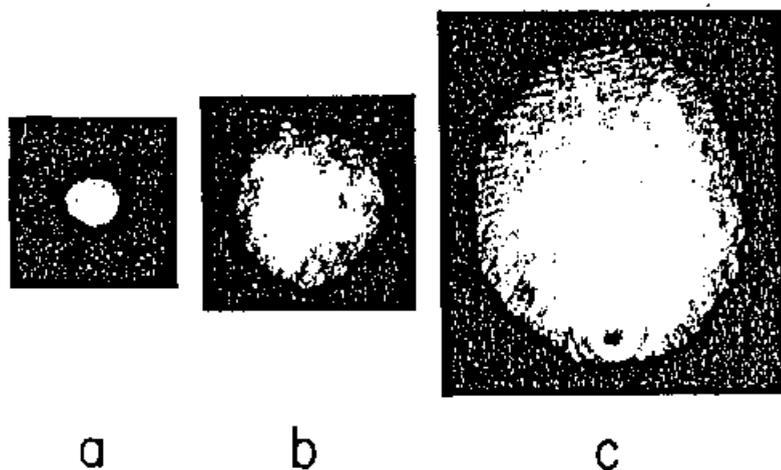


Figura 2.3: efeito de a) autofocalização b) divergência normal c) autodefocalização, em uma célula contendo vapor de sódio observado na mesma distância

A figura 2.3 mostra a fotografia na mesma distância do feixe que atravessa uma célula contendo vapor de sódio, onde são apresentados os três casos: autofocalização, autodefocalização, e divergência normal devido à difração.

Vimos acima que o efeito de autofocalização está relacionado com a mudança do índice de refração do meio com a intensidade do campo elétrico da luz aplicado, ou melhor, com o coeficiente não linear n_2 do material. Alguns dos mecanismos físicos responsáveis por esta variação são: efeitos térmicos, polarização eletrônica, e a reorientação molecular (efeito Kerr reorientacional).

Bibliografia

- [1] G. A. Askar'yan, "Effects of the gradient of a strong electromagnetic beam on electron and atoms. Soviet Physics JETP, 15, 1088 (1962).
- [2] V. I. Talanov, *Izv. vuzov, Radiofizika* 7, 564 (1964)
- [3] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes. "Self-trapping of optical beams," *Phys. Rev. Lett.*, 13, 479 (1964).
- [4] S. A. Akhmanov, D. P. Krindach, A. P. Sukhorukov, and R. V. Khokhlov, "Non-linear Defocusing of laser beams," *JETP Lett.* 6, 38 (1967).
- [5] Joshua E. Rothenberg, "Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media," *Opt. Lett.*, 17, 583 (1992).
- [6] S. A. Akhmanov, A. P. Sukhorukov, and R. V. Khokhlov, "Self-focusing and diffraction of light in a nonlinear medium," *Sov. Phys. Usp.*, 93, 609 (1968).
- [7] Y. R. Shen, "The principles of nonlinear optics," Wiley, 196 (1984).

Capítulo 3

Revisão das Técnicas de Medida de n_2

Neste capítulo faremos uma revisão de algumas técnicas encontradas na literatura para a determinação do índice de refração não linear n_2 em materiais. São encontradas as seguintes técnicas: interferometria não linear [1], mistura de quatro ondas degeneradas [2], mistura de três ondas quase degeneradas [3], rotação elipsoidal [4] e medida da distorção do feixe de luz [5], [6]. A primeira técnica é altamente sensível, possuindo um erro de mais ou menos dez por cento na determinação do n_2 , mas requer sofisticada montagem experimental, alta qualidade óptica e larga espessura das amostras, alguns centímetros, restringindo assim as amostras a serem estudadas. Um outro problema nesta técnica é que cada medida leva um tempo razoavelmente longo para ser realizada e necessita de amostra padrão com um índice de refração não linear bem conhecido para interpretação dos resultados, ou seja, o valor de n_2 das amostras a serem estudadas será dado em função da amostra padrão. A segunda e a terceira técnica também são altamente sensíveis, mas requerem sofisticado arranjo experimental. Nestas técnicas, as amostras necessitam ser só de boa qualidade óptica e alguns milímetros de espessura, e o tempo necessário para a obtenção dos resultados são de algumas horas. A interpretação destes resultados é também feita com base na amostra padrão. As duas últimas técnicas não são muito sensíveis, e necessitam de uma análise detalhada da propagação da onda dentro da amostra.

Faremos aqui uma descrição mais detalhada das duas primeiras técnicas, que são as mais sensíveis.

3.1 Técnica de mistura de quatro ondas degeneradas

A figura 3.1 mostra o esquema experimental da técnica de mistura de quatro ondas degeneradas (MQOD). Um feixe de luz (proveniente de um laser pulsado) é focalizado na amostra com vetor de onda \vec{k}_1 , o qual é denominado feixe de bombeio para frente na terminologia de MQOD. Este feixe passa por uma linha de atraso de forma que o pulso laser chegue simultaneamente na amostra com um pulso do feixe de prova, com um vetor de onda \vec{k}_2 , que foi derivado do feixe de bombeio através de dois divisores de feixe D_1 e D_2 , e incidido na amostra a um ângulo de aproximadamente 2° relativo ao feixe de bombeio.

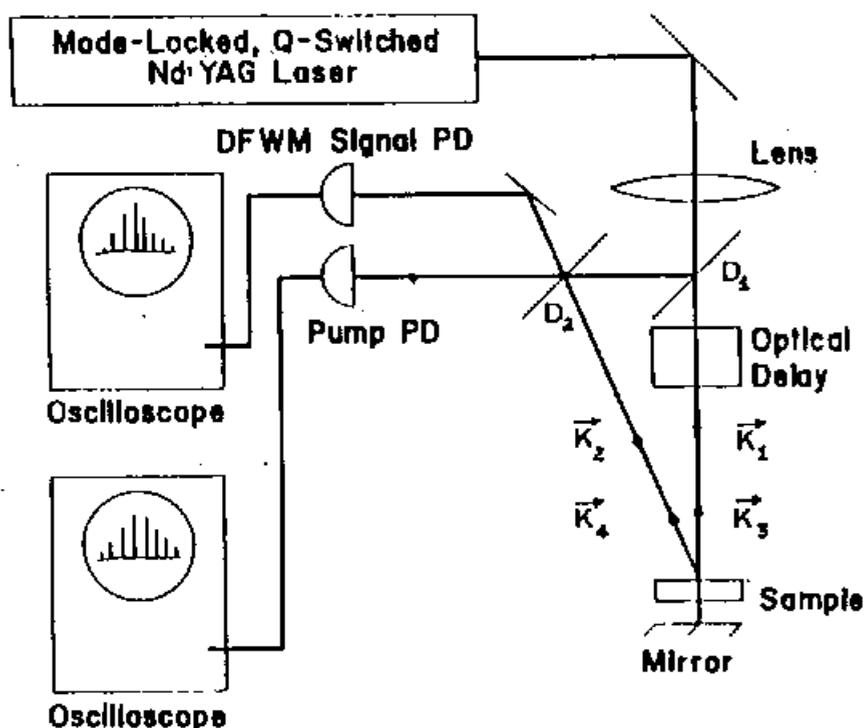


Figura 3.1: Esquema experimental da técnica (MQOD) [2]

A propagação para trás do feixe de bombeio com vetor de onda \vec{k}_3 é a reflexão do feixe de bombeio proveniente de um espelho colocado atrás da amostra, aproximadamente 2mm. O feixe de luz gerado pelo processo de mistura de ondas propaga-se

na direção contrária ao feixe de prova com vetor de onda \vec{k}_4 . Tanto o sinal gerado por MQOD, como o feixe de bombeio são levados a dois fotodiodos rápidos e à saída destes fotodiodos são exibidos em dois osciloscópios rápidos. A figura 3.2 mostra a fotografia dos traços dos osciloscópios para o sinal do feixe produzido por MQOD e o correspondente feixe de bombeio. Nas medidas reportadas na referência [2] foi usado um laser de Nd:YAG operando simultaneamente no regime de mode-locking com pulsos de 80 ps e Q-switching com 250 ns em $1.06\mu\text{m}$.

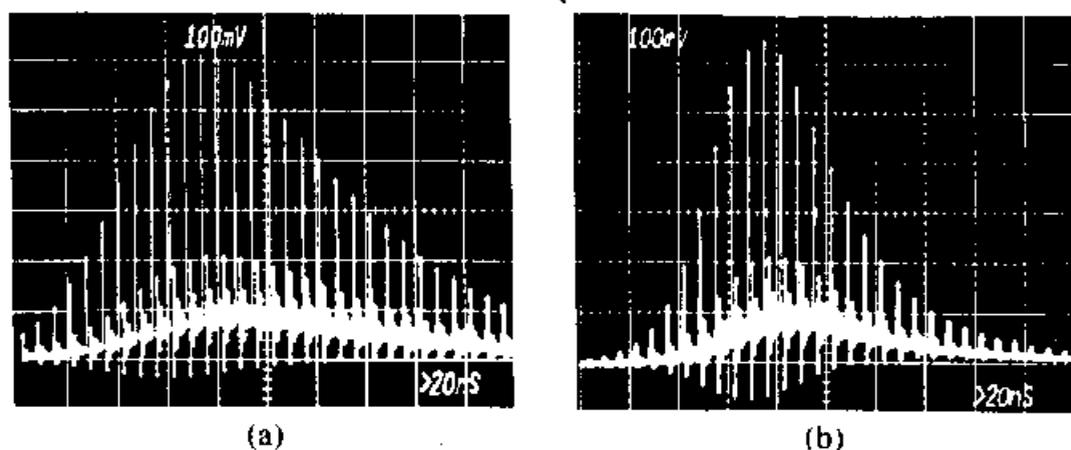


Figura 3.2: a) trem de pulso mode-locking, Q-switched (bombeio). b) sinal gerado por MQOD em vidro SF-59 [2]

Este processo de MQOD pode ser explicado em termos das difrações em grades produzidas pela modulação espacial do índice de refração do meio não linear. Quando cada um dos feixes de bombeio (\vec{k}_1, \vec{k}_3) interfere com o feixe de prova \vec{k}_2 se produzirá uma modulação de intensidade que por sua vez irá produzir uma grade de índice, com uma modulação de índice que é a soma das mudanças de índice rápidas dependente da intensidade e mudança de índice termicamente induzida. Quando o feixe de bombeio \vec{k}_1 interfere com o feixe de prova \vec{k}_2 na amostra se formará uma grade “grossa” (com um largo período) que difrata o feixe de bombeio \vec{k}_3 na direção de \vec{k}_4 , e simultaneamente o feixe de bombeio \vec{k}_3 e o feixe de prova \vec{k}_2 produzirão uma grade “fina” com um período de aproximadamente meio comprimento de onda da radiação, que difratará o feixe de bombeio \vec{k}_1 na mesma direção de \vec{k}_4 . Para ondas planas com amplitudes (complexas) $E_1(k_1)$, $E_2(k_2)$, $E_p(k_2)$, $E_s(k_4)$, que correspondem ao campo

de bombeio para frente, bombeio para tras, prova, e o campo gerado por MQOD respectivamente. O sinal gerado da MQOD será então a soma dos sinais difratados nas grades grossa e fina, cuja amplitude será dada por [7]

$$Es = i\pi \frac{L}{\lambda} (\Delta n_c E_2 + \Delta n_f E_1) \quad (3.1)$$

onde L é a espessura da amostra, λ é o comprimento de onda do laser, Δn_c é a amplitude da modulação espacial do índice de refração da grade grossa, formada por E_1 e E_p e Δn_f é a amplitude de modulação do índice da grade fina, formada por E_2 e E_p . Ambas contribuições rápidas e térmicas são somadas juntas para dar Δn_c e Δn_f .

A contribuição para a grade de índice devido à não linearidades rápidas é igual à distribuição de intensidade espacial vezes o coeficiente de índice não linear n_2 . A amplitude das grades de índice é $2n_2\sqrt{I_1 I_p}$ e $2n_2\sqrt{I_2 I_p}$ para a grade grossa e fina, respectivamente, onde I_1 , I_2 , e I_p são as intensidades de bombeio para frente, bombeio para tras, e a intensidade do feixe de prova respectivamente. A contribuição térmica para Δn_c e Δn_f dependerá da porção de energia absorvida pelo material, e do tempo que leva à modulação espacial da grade para decair [8]. Para a grade grossa, com um período de muitos comprimentos de onda, o tempo de decaimento é da ordem de microsegundos a contribuição térmica possuirá um valor que crescerá com a integral da energia dentro do pulso

$$\Delta n_c = 2n_2\sqrt{I_1 I_p} + \frac{dn}{dt} \frac{2\alpha}{C_p \rho} \int_0^t \sqrt{I_1 I_p} dt, \quad (3.2)$$

onde, dn/dt , é a mudança do índice com a temperatura, α é o coeficiente de absorção, C_p é o calor específico a pressão constante e ρ é a densidade. A suposição feita é que toda energia absorvida é convertida em calor. A integral para o pulso utilizado pode ser escrita como

$$\int_0^t \sqrt{I_1 I_p} dt = \sum_{k=0}^{k=k'} \sqrt{I_{1k} I_{pk}} \Delta t \quad (3.3)$$

onde I_{1k} e I_{pk} são as k -ésimas intensidades de bombeio para frente e prova para os k -ésimos pulsos contados do começo do trem de pulsos, k' indica o pulso no tempo t e Δt é a duração do pulso a meia altura. A contribuição térmica para a grade fina, que possui um período de aproximadamente meio comprimento de onda e um tempo de decaimento da ordem de nanosegundos é insignificante, podendo ser desprezada.

Portanto, a grade de índice fina Δn_f possui só contribuições rápidas, e é igual a

$$\Delta n_f = 2n_2 \sqrt{I_2 I_p}. \quad (3.4)$$

Com isto a amplitude do sinal da MQOD será dado por:

$$E_s = i \frac{\pi L}{\lambda} [2n_2 \sqrt{I_2 I_p} E_1 + 2n_2 \sqrt{I_1 I_p} E_2 + g \sum_{k=0}^{k=k'} \sqrt{I_{1k} I_{pk}} E_2] \quad (3.5)$$

onde

$$g = \frac{dn}{dT} \frac{2\alpha \Delta t}{C_p \rho} \quad (3.6)$$

pode-se escrever a equação (3.5) só em função da intensidade de bombeio para frente, pois todas as outras são derivadas desta. Então a amplitude do campo elétrico na saída da amostra, o qual nós indicaremos por prima é dado por

$$E'_s = hf(n) \frac{\pi L}{\lambda} [4n_2 I'_1 + g \sum_{k=0}^{k=k'} (I'_{1k})] E'_1 \quad (3.7)$$

onde h é a razão entre a potência de prova e a potência de bombeio para frente, $f(n)$ é o produto do fator de transmissão na interface amostra-ar. A potência de bombeio reverso é igual à potência de bombeio para frente.

Então a intensidade do sinal da MQOD será

$$I'_s = AI'_1 + B \sum_{k=0}^{k=k'} (I'_{1k}) I'_1 + CI'^3_1 \quad (3.8)$$

onde A é a fração da luz de bombeio espalhada no detector

$$B = \left[\frac{hf(n)\pi L}{\lambda} \right]^2 8n_2 g \quad (3.9)$$

e

$$C = \left[\frac{hf(n)\pi L}{\lambda} \right]^2 16n_2^2 \quad (3.10)$$

O coeficiente B é responsável pelas contribuições térmicas, enquanto que o coeficiente C é responsável pelas contribuições do índice de refração não linear. A equação (3.8) deveria conter um termo com g^2 , mas para materiais que possuem contribuições

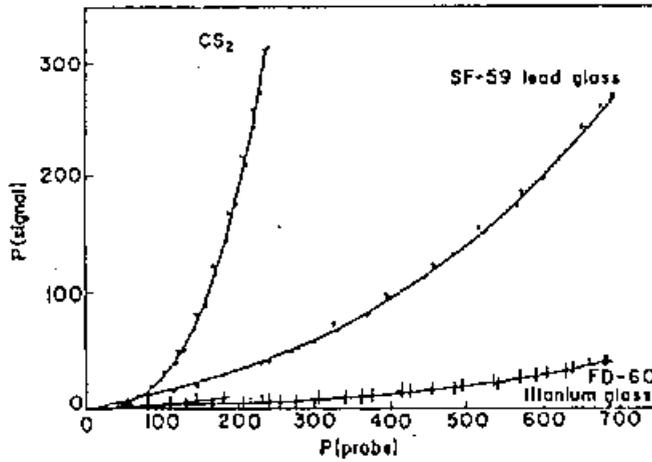


Figura 3.3: Dados experimentais da MQOD. A linha sólida são as curvas de ajuste da eq.(3.8) com os melhores valores para os parâmetros A, B e C. [2]

Tabela 3.1: Valores medidos de n_2 de alguns vidros ópticos em $1,06 \mu\text{m}$. [2]

Material	n_0 ($1,06 \mu\text{m}$)	n_2 (cm^2/W)
CS_2	1,61	$3,0 \times 10^{-14}$
SF-59	1,91	$6,8 \times 10^{-15}$
SF-58	1,88	$4,9 \times 10^{-15}$
SF-57	1,81	$4,1 \times 10^{-15}$
SF-56	1,75	$2,6 \times 10^{-15}$
FDS-90	1,81	$2,2 \times 10^{-15}$
FDS-9	1,81	$1,2 \times 10^{-15}$
FD-60	1,77	$2,0 \times 10^{-15}$
FD-6	1,77	$3,1 \times 10^{-15}$
Rutile	2,48	$2,48 \times 10^{-14}$

eletrônicas muito maiores que as contribuições térmicas na mudança do índice de refração, este termo pode ser desprezado.

A determinação do coeficiente do índice não linear n_2 da amostra em estudo é feito pela comparação do coeficiente C da curva de ajuste dada pela equação (3.8)

sobre os dados experimentais da amostra, em comparação com o coeficiente de ajuste C para a amostra de CS_2 , o qual é usado como calibração do sistema.

A figura 3.3 mostra os resultados experimentais e suas correspondentes curvas de ajuste para CS_2 , SF-59 e o vidro de óxido de titânio FD-60. A tabela (3.1) mostra os valores de n_2 para vários vidros medido em $1.06\mu m$, utilizando a técnica de MQOD. Como podemos notar, o coeficiente C está relacionado com n_2^2 , portanto esta técnica não nos permite determinar o sinal da não linearidade. Outro ponto a notar é que os valores de n_2 das amostras em estudo são encontrados em relação à amostra de referência. Esta técnica não permite também distinguir os efeitos responsáveis pela não linearidade.

3.2 Método interferométrico

A técnica interferométrica foi primeiramente proposta em 1968, por A. P. Veduta e B. P. Kirsanov [9], e era baseada no interferômetro de Mach-Zehnder. A técnica que descreveremos aqui também é baseada no interferômetro de Mach-Zehnder [10], onde em um dos braços do interferômetro é colocado um material não linear, cujo coeficiente não linear n_2 é desconhecido. No outro braço do interferômetro é colocado um material de referência, com o coeficiente não linear bem conhecido, e com espessura de percurso óptico linear idêntico ao da primeira amostra. O material de referência utilizado foi CS_2 . Esta técnica faz uma medida relativa, ou seja o coeficiente não linear n_2 da amostra é determinado em relação ao material de referência (CS_2).

A figura ?? mostra o esquema experimental utilizado nesta técnica. O feixe de entrada é dividido em dois por um divisor de feixe M_1 , sendo que um dos feixes passa pela amostra em estudo e o outro feixe refletido pelo espelho M_2 , passa pela amostra de referência. Cada um destes feixes passa por uma linha de atraso D_1 e D_2 , de forma que haja uma coincidência espacial e temporal do pulso do laser na saída do interferômetro, produzindo assim um modelo de franjas de interferência vertical. Esta coincidência é verificada com o uso de uma streak-câmera (SC) ultrarrápida LLL (com resolução de 10ps). A câmera é utilizada para estabelecer que os dois braços do interferômetro tenham comprimentos iguais.

Durante a propagação do pulso na amostras o índice de refração aumenta ou diminui com a intensidade, causando assim um atraso relativo entre os dois feixes, e consequentemente uma mudança no modelo de franja visto pela streak-câmera (SC). A figura 3.5 mostra uma fotografia representando o atraso de fase não linear gerado pelos dois materiais devido à variação de intensidade. Na figura 3.5(b) mostra o

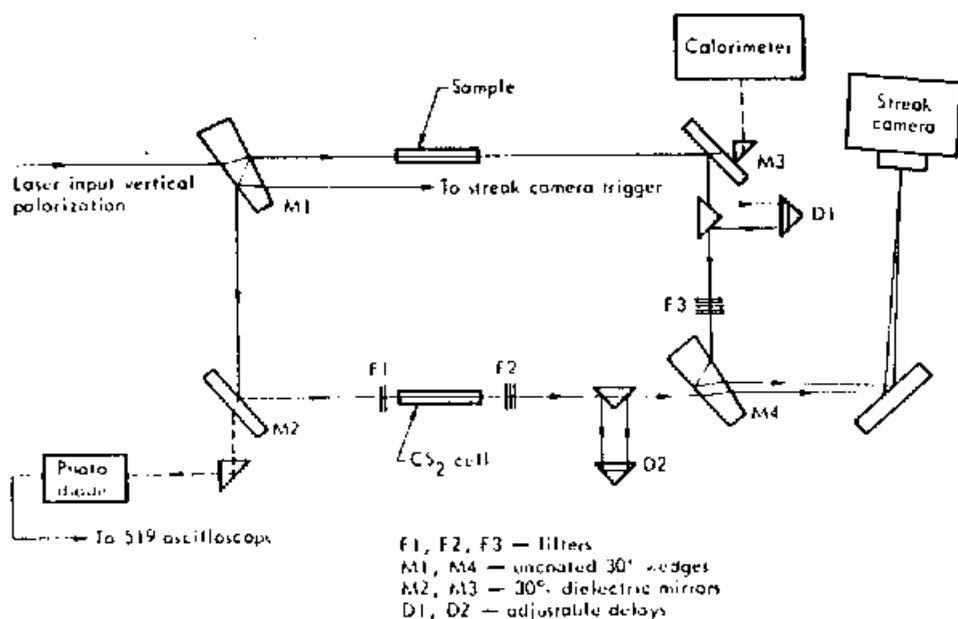


Figura 3.4: Esquema experimental da técnica interferométrica

padrão de franjas visto pela SC onde o atraso de fase não linear gerado pelos dois materiais são os mesmos, neste caso haverá ainda uma superposição espacial e temporal dos pulsos, e isto é conseguido fazendo com que as intensidades sejam diferentes na amostra em estudo e a referência. Se a intensidade relativa entre os dois braços do interferômetro é variado, usando para isso filtros bem calibrados antes da amostra e depois do CS_2 e vice-versa, o overlap temporal e espacial deixará de existir. O atraso relativo entre os dois braços é ajustado notando que quando o pico do pulso de um dos braços interfere com a subida do pulso do outro braço, as franjas mudam em uma direção, e quando o pico do pulso interfere com a descida do pulso do outro braço, as franjas mudam em direção contrária. A streak-câmera é usada para determinar esta distorção nas franjas de interferência como função do tempo (e conseqüentemente da intensidade). As figuras 3.5 (a) e 3.5 (b) mostram as distorções nas franjas quando não há coincidência espacial e nem temporal nos dois braços.

Quando o padrão de franjas é independente da intensidade, tanto o aumento do



Figura 3.5: Modelo de franja resolvida no tempo a) atraso de fase não linear criado pela braço contendo a amostra em estudo b) o atraso de fase não linear criado pelos dois braços são iguais c) atraso de fase criado pelo braço contendo CS_2 [10]

caminho óptico não linear como o caminho óptico linear, são os mesmos em ambos os braços. Esta condição se obtém as franjas representadas na figura 3.5(b). Nesta condição, a razão entre as intensidades dos dois braços é inversamente proporcional à razão dos n_2 das amostras, e é dada por

$$\frac{I_{am}}{I_{ref}} = \left[\frac{n_{2am}}{n_{2ref}} \right]^{-1}, \quad (3.11)$$

onde I_{am} , n_{2am} , I_{ref} , n_{2ref} , são, respectivamente, as intensidades e os coeficientes não lineares da amostra em estudo e a amostra de referência. A tabela (3.2) mostra alguns resultados utilizando esta técnica. Como podemos notar na expressão 3.11 o coeficiente não linear da amostra em estudo é determinada em relação a amostra de referência. Nesta técnica não se pode determinar o sinal de n_2 , e também não se

Tabela 3.2: resultado da medida de n_2 usando a técnica interferométrica [10]

Material	n_0 (1.06 μ m)	$\frac{n_2(\text{amostra})}{n_2(\text{CS}_2)}$	$n_2(\text{amostra})\text{cm}^2/\text{W}$ estimado
CS ₂	1.62	1.0	2.84×10^{-14}
ED-2	1.55	$.0139 \pm .0017$	4.13×10^{-16}
CS35	1.50	$.0166 \pm .0017$	5.11×10^{-16}
C1020	1.50	$.0160 \pm .0018$	5.11×10^{-16}
C2828	1.53	$.0184 \pm .0018$	5.69×10^{-16}
YAG	1.83	$.0253 \pm .0035$	6.36×10^{-16}
SF-6	1.77	$.0320 \pm .0090$	2.12×10^{-15}
RUBY	1.76	$.0135 \pm .0013$	3.52×10^{-16}
Lucite	1.49	$.0250 \pm .0045$	7.70×10^{-16}

consegue distinguir os mecanismos responsáveis pela não linearidade. Esta técnica se torna também inviável em muitos laboratórios devido ao alto custo da steak-câmera.

Bibliografia

- [1] M. J. Moran, C. Y. She, and R. L. Carman "Interferometric measurements of nonlinear refractive-index coefficient relative to CS_2 em laser-system-related materials" IEEE j. Quantum Eletron., QE-11, 259 (1975).
- [2] S. R. Friberg and P. W. Smith "Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches," IEEE J. Quantum Eletron., QE-23, 2089 (1987).
- [3] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, "Nonlinear refractive index measurement of glasses using three-wave frequency mixing," J. Opt. Soc. Amer. B, 4, 875 (1987).
- [4] A. Owyong, "Ellipse rotations studies in laser host materials," IEEE J. Quantum Eletron., QE-9, 1064 (1973).
- [5] W. E. Williams, M. J. Soileau, and E. W. Stryland, "Optical switching and n_2 measurements in CS_2 ," Opt. Commun., 50, 256 (1984).
- [6] "Simple direct measurement of n_2 ," in Proc. 15th Annu. Symp. Opt. Materials for High Power Laser, Bouldes, CO, 1983.
- [7] H. Kogelnik, "Coupled wave theory for thick hologram gratings." Bell Syst. Tech. J., 48, 2909 (1969).
- [8] G. Martin and R. W. Hellwarth, "Infared-to-optical image conversion by Bragg reflection from thrrmally induced index gratings," Appl. Phys. Lett., 34, 371 (1979).
- [9] A. P. Veduta and B. P. Kirsanov, "Variation of the refrative index of liquids and glasses in a high intensity fld of a ruby laser," Sov. Phys.-JETP, 27, 736 (1968).

- [10] Michael J. Moran, Chiao-Yao She, and Robert L. Carman, "Interferometric measurement of the nonlinear refractive-index coefficient relative to CS_2 in laser-system-related materials," *IEEE J. Quantum. Electron.*, QE-11., 259 (1975).

Capítulo 4

Descrição da técnica de varredura-Z

A técnica experimental utilizado neste trabalho, denominada técnica de varredura-Z (“Z-scan”) [1] é baseada no efeito de autofocalização do feixe de luz, e consiste em transformar a variação de fase em variação de amplitude durante a propagação do feixe dentro da amostra não linear. Esta técnica possui sensibilidade comparável aos métodos interferométricos, e é bem simples, não necessitando de montagem experimental muito sofisticada.

A figura 4.1 mostra o esquema experimental da técnica de varredura-Z. Usando um feixe de luz focalizado, medimos a potência de luz incidente (P_i) e a potência transmitida (P_t) após o feixe atravessar a amostra e uma abertura convenientemente posicionada. A técnica consiste em registrar a transmitância (P_t/P_i) em função da posição da amostra em relação ao plano focal ($z=0$). Assim o nome varredura-Z vem do fato de que na prática a amostra é deslocada varrendo a região focal do feixe.

A curva de transmitância $T=T(z)$ obtida da medida de varredura-Z está relacionada com o índice de refração não linear da amostra como segue: Para facilitar sua interpretação certas condições devem ser satisfeitas, como, feixe laser Gaussiano operando no modo fundamental TEM_{00} , de maneira que possamos considerar a distribuição de intensidade como

$$I(r, z) = [I_0/(1 + 4z^2/b^2)] \exp[-2r^2/w_0^2(1 + 4z^2/b^2)], \quad (4.1)$$

onde r é a distância transversal ao eixo do foco, I_0 e w_0 são a intensidade e o diâmetro do feixe no foco respectivamente e b é o parâmetro confocal do feixe. Uma outra consideração importante é que a espessura da amostra L deve ser bem menor que o

Esquema Experimental

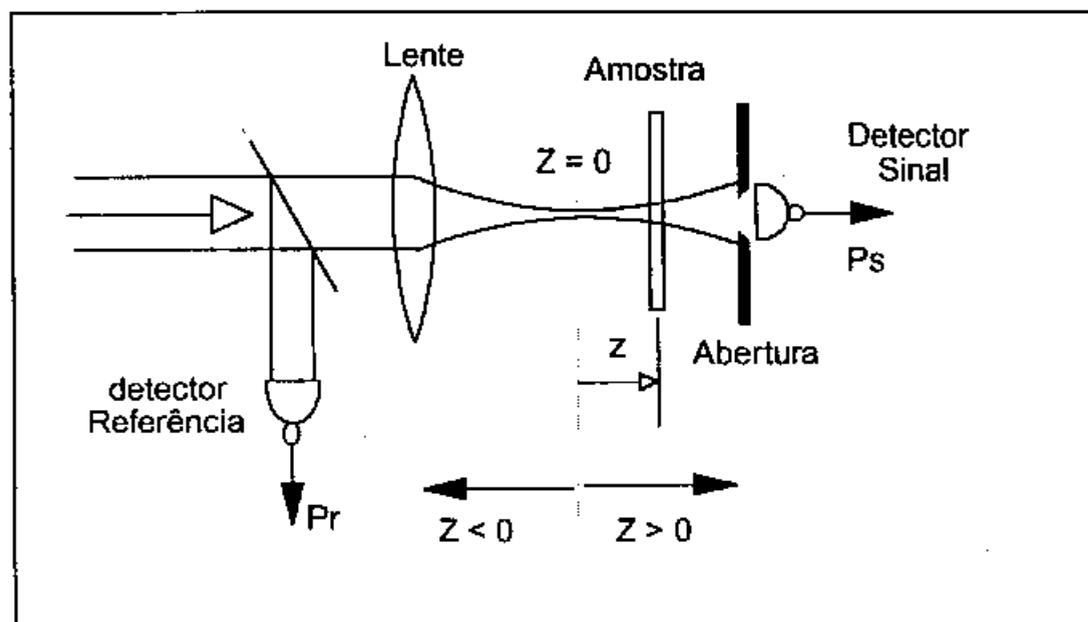


Figura 4.1: Esquema experimental da técnica de varredura- Z , na qual a transmitância $T = P_s/P_r$ é registrada como função da posição da amostra, z .

parâmetro confocal ($L \ll b$). Um meio não linear iluminado por uma intensidade dada pela equação (4.1) possui um índice de refração que depende da posição dada pela relação

$$n(r, z) = n_0 + n_2 I(r, z). \quad (4.2)$$

Isto faz com que o meio aja como uma lente. Se o meio não linear possui n_2 positivo, o índice de refração total é maior no eixo do feixe do que nas bordas, com isto o meio se comportará como uma lente convergente, ou seja, o meio tende a auto focalizar o feixe. Se pelo contrário, n_2 é negativo, o meio age como uma lente divergente, tendendo a auto defocalizar o feixe. O meio age então como uma lente, mas se a condição $L \ll b$ é satisfeita, podemos considerar a amostra como uma lente fina, cuja distância focal efetiva é uma função da posição z . Com isto, dependendo da posição da amostra em relação ao plano focal ($z < 0$, $z > 0$) durante a varredura,

o efeito de lente fará com que o feixe se contraia ou se expanda, passando mais ou menos luz pela abertura na frente do detector da figura (4.1).

Finalmente, para poder detectar as variações sofridas pelo feixe através do efeito de lente da amostra, a abertura deve ser colocada convenientemente longe do foco ($z \gg b$) e esta abertura deve ser menor que o tamanho do feixe nesta posição.

Podemos entender qualitativamente o resultado de uma varredura-Z com a ajuda da figura 4.2, que se aplica ao caso em que $n_2 > 0$. Começando a varredura longe do foco ($z \ll -b$), onde a intensidade é fraca e, conseqüentemente a não linearidade também, a transmitância permanece relativamente constante, $T = T_0$. À medida em que a amostra se aproxima do foco, região de alta intensidade, o efeito de autofocalização entra em ação, e o meio age como uma lente. Uma lente convergente colocada antes do plano focal ($z < 0$) faz com que o feixe focalize antes do plano focal $z = 0$, com isto aparecendo mais expandido na posição da abertura. Conseqüentemente a transmitância neste caso tende a diminuir. Por outro lado, uma lente convergente fina colocada após o plano focal ($z > 0$) tende a colimar o feixe, causando com isto um aumento da transmitância medida. É de se esperar então desta varredura que a transmitância como função de z apresente um mínimo em $z < 0$ e um máximo em $z > 0$. Finalmente, para $z \gg b$ a transmitância retorna novamente ao valor constante T_0 .

Repetindo a análise anterior para um meio possuindo n_2 negativo, podemos verificar que o comportamento é exatamente oposto àquele do caso $n_2 > 0$; ou seja, o meio se comporta como uma lente divergente e as posições do máximo e do mínimo de transmitância estarão invertidas em relação ao caso anterior. Esta é uma característica importante da técnica de varredura-Z, pois ela nos fornece diretamente de suas medidas o sinal e o valor absoluto da não linearidade do material. A figura 4.3 representa os traços característicos de uma varredura-Z para os casos de não linearidades positiva e negativa, respectivamente [7].

As curvas representadas na fig. 4.3 são características de materiais que apresentam não linearidades puramente refrativas, mas se o meio apresentar absorção não linear tais como absorção de vários fótons (A.V.F.) ou saturação da absorção (S.A.), o perfil da curva é alterada, sendo que, na A.V.F, o pico é reduzido e o vale é intensificado, enquanto que na S.A ocorre o efeito oposto. É importante salientar que a sensibilidade na medida da refração não linear é inteiramente devida à abertura na frente do detector. Removendo-se esta abertura se elimina completamente o efeito. Contudo, neste caso, a varredura-Z será sensível à absorção ou à saturação não linear e seus coeficientes podem ser extraídos de tais medidas, sem abertura. Será visto posteriormente como duas medidas de varredura-Z, uma com a abertura a outra sem

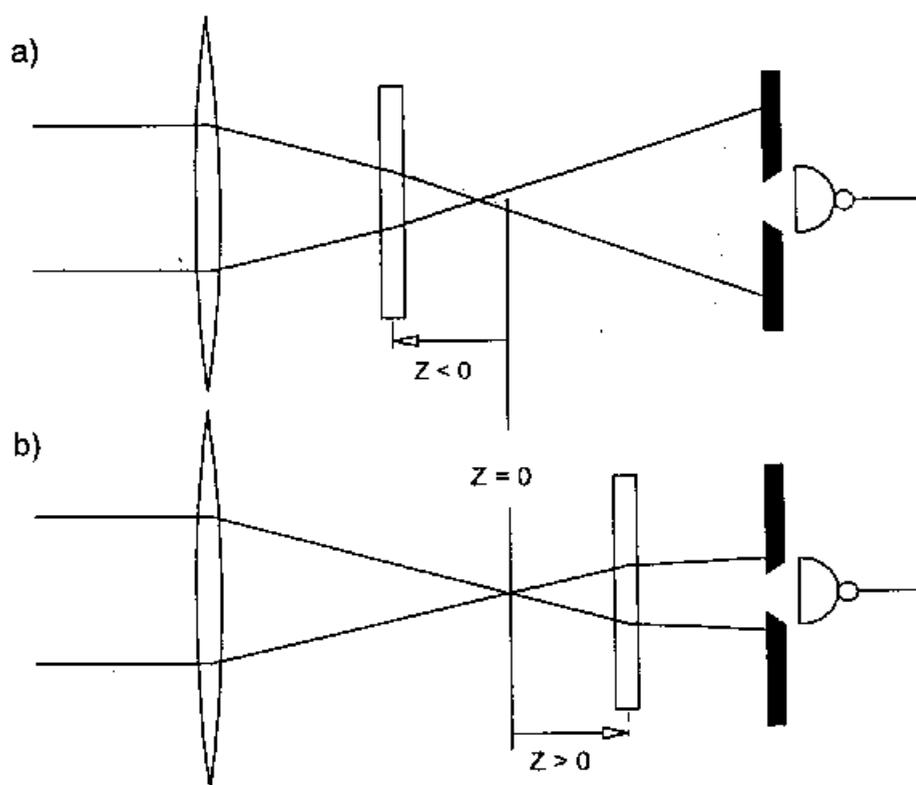


Figura 4.2: Efeito de lente na técnica de varredura-Z para o caso $n_2 > 0$. a) Quando a amostra está antes do foco o feixe aparece mais expandido na posição da abertura. b) Quando está após o foco o feixe tende a ser colimado.

abertura, são utilizadas para separar o efeito de refração dos efeitos de absorção e saturação não linear. Este é um aspecto interessante desta técnica, pois de suas medidas conseguimos separar os efeitos envolvidos, o que não acontece com as outras técnicas.

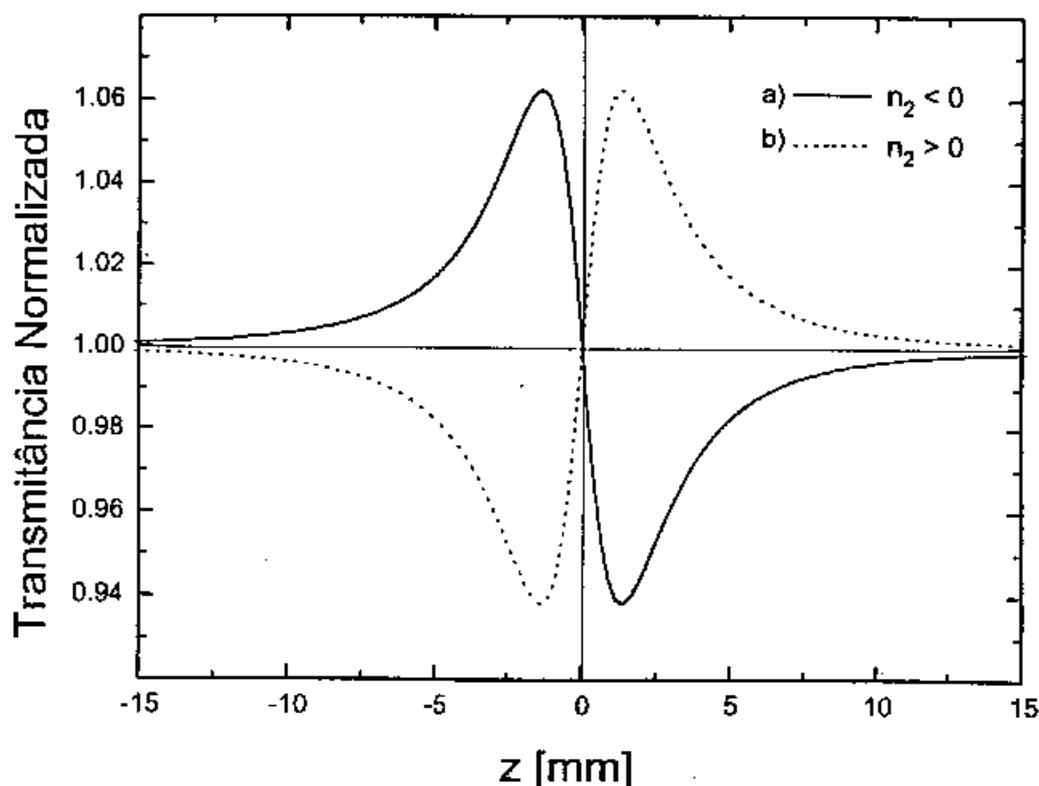


Figura 4.3: Traços característicos de uma varredura-Z para os casos de a) $n_2 < 0$ e b) $n_2 > 0$. Simulação gerada por computador com $b=4$ mm, $\lambda = 1.06\mu\text{mm}$, $I_0 = 1.4\text{GW}/\text{cm}^2$, $S=0.4$, $L=2$ mm, $w_0 = 25\mu\text{m}$ [7]

4.1 Aspecto teórico da técnica de varredura-Z

Nesta secção são discutidos os aspectos teóricos desenvolvidos para analisar os resultados obtidos em uma medida de varredura-Z. Em geral, a técnica pode ser usada para determinar não linearidades de altas ordens, mas aqui será feito o desenvolvimento para não linearidades cúbicas, onde o índice de refração total é expresso em termos do índice não linear n_2 através da seguinte relação

$$n = n_0 + n_2 I = n_n + \gamma I \quad (4.3)$$

onde n_0 é o índice de refração linear, e I é a intensidade do feixe (MKS) dentro da amostra. (n_2 e γ são relacionados através da seguinte fórmula de conversão $n_2(\text{esu}) = cn_0/(40\pi)\gamma(\text{m}^2/\text{W})$, onde c é a velocidade da luz no vácuo (m/s). No

seguinte desenvolvimento é assumido um feixe de luz com um perfil espacial e temporal Gaussiano, operando no modo fundamental TEM_{00} e viajando na direção $+z$. Com isto o campo elétrico E pode ser escrito como

$$E(z, r, t) = E_0(t) \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w(z)^2} - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\phi(z, t)) \quad (4.4)$$

onde $w(z)^2 = w_0^2(1 + z^2/z_0^2)$ é o raio do feixe, e w_0 é o raio na cintura do feixe, $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$ é o raio de curvatura da frente de onda em z , $z_0 = kw_0^2/2$ é o comprimento de difração do feixe, $k = 2\pi/\lambda$ é o vetor de onda e λ é o comprimento de onda em todo espaço livre. $E_0(t)$ é denominado a intensidade do campo elétrico no foco e contém o envelope temporal do pulso do laser. O termo $\exp(-i\phi(z, t))$ contém todas as variações de fase radialmente uniforme. Como o interesse é calcular a variação de fase radial $\Delta\phi(r)$, a aproximação do envelope variando lentamente (AEVL) é então aplicado, e todas as outras mudanças de fase que são uniforme em r serão desprezadas.

Se a espessura da amostra é suficientemente pequena de modo que mudanças no diâmetro do feixe dentro da amostra devido à difração ou refração não linear possam ser desprezadas, o meio é considerado como fino. Para difração linear isto implica $L < z_0$, enquanto que para refração não linear, $L \ll z_0/\Delta\phi(0)$, esta segunda suposição é automaticamente encontrada desde que $\Delta\phi$ seja pequena. Tais suposições simplificam consideravelmente o problema e com isto a amplitude \sqrt{I} e a fase ϕ do campo elétrico como uma função de z' são agora governadas na AEVL por um par de equações simples dada por

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \Delta n(I) k \quad (4.5)$$

e

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha(I) I \quad (4.6)$$

onde z' é a profundidade de propagação na amostra e $\alpha(I)$ em geral contém termos de absorção linear e não linear. No caso de uma não linearidade cúbica, desprezando termos de absorção não linear, as equações anteriores são resolvidas para nos fornecer a mudança de fase na superfície de saída da amostra, que é dada por:

$$\Delta\phi(z, r, t) = \Delta\phi_0(z, t) \exp\left(\frac{-2r^2}{w^2(z)}\right), \quad (4.7)$$

A qual podemos notar que simplesmente segue a variação radial da intensidade incidente em uma dada posição da amostra z , onde

$$\Delta\phi_0 = \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2} \quad (4.8)$$

e $\Delta\Phi_0(t)$ é a mudança de fase no foco, e é definida como

$$\Delta\Phi_0(t) = k\Delta n_0(t) L_{eff} \quad (4.9)$$

onde $L_{eff} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$, sendo L a espessura da amostra e α o coeficiente de absorção linear. Na expressão $\Delta n_0 = \gamma I_0(t)$ com $I_0(t)$, sendo a intensidade do feixe no foco (isto é em $z = 0$), as perdas por reflexão de Fresnel foram desprezadas de tal forma que $I_0(t)$ seja a intensidade dentro da amostra.

O campo elétrico complexo na saída da amostra E_s , contém agora a distorção de fase não linear dada por

$$E_s = E(z, r, t) e^{-\frac{z^2}{2}} e^{i\Delta\phi(z, r, t)} \quad (4.10)$$

Em virtude do princípio de Huygen, pode-se obter o modelo do campo longínquo do feixe no plano de abertura através de uma transformada Hankel de ordem zero de E_s [2]. Porém aqui seguiremos um tratamento mais conveniente aplicado para um feixe de entrada Gaussiano, o qual é denominado "decomposição Gaussiana" (DG), método desenvolvido por Weaire et al. [3], no qual eles decompõem o campo elétrico complexo no plano de saída da amostra em uma somatória de feixes Gaussianos através de uma expansão em série de Taylor do termo de fase não linear $e^{i\Delta\phi(z, r, t)}$ (distorção de fase pequena) na equação (4.10). Esta série é representada por

$$e^{i\Delta\phi(z, r, t)} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(z, t)]^m}{m!} e^{-\frac{2mr^2}{w_m^2(z)}} \quad (4.11)$$

Cada feixe Gaussiano pode agora ser simplesmente propagado para o plano de abertura onde eles serão resumidos para reconstruir o feixe. Quando incluímos a curvatura inicial do feixe para o feixe focalizado, nós derivamos o modelo do campo elétrico resultante na abertura como

$$E_a = F(z, r = 0, t) e^{-\frac{z^2}{2}} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(z, t)]^m}{m!} \frac{w_{m0}}{w_m} \cdot \exp\left(-\frac{r^2}{w_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} + i\theta_m\right) \quad (4.12)$$

Definindo d como a distância de propagação no espaço livre da amostra ao plano de abertura e $g = 1 + d/R(z)$, os parâmetros restantes na equação (4.12) são expressos como

$$w_{m0}^2 = \frac{w^2(z)}{2m + 1} \quad (4.13)$$

$$d_m = \frac{kw_{m0}^2}{2} \quad (4.14)$$

$$w_m^2 = w_{m0}^2 \left[g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right] \quad (4.15)$$

$$R_m = d \left[1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right]^{-1} \quad (4.16)$$

e

$$\theta_m = \tan^{-1} \left[\frac{d/d_m}{g} \right] \quad (4.17)$$

É estabelecido que este método DG é muito usado para as distorções de fase pequenas detectadas pela técnica de varredura-Z, uma vez que só uns cinco termos da soma da equação (4.12) são necessários. O método é facilmente estendido para não linearidades de altas ordens.

A potência transmitida através da abertura é obtida integrando espacialmente $E_a(r, t)$ em todo o raio da abertura r_a , dando

$$P_T(\Delta\Phi_0(t)) = c\epsilon_0 n_0 \pi \int_0^{r_a} |E_a(r, t)|^2 r dr \quad (4.18)$$

onde ϵ_0 é a permissividade no vácuo. Incluindo a variação temporal do pulso, a transmitância da varredura-Z normalizada $T(z)$ pode ser calculada como

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P_T(\Delta\Phi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{\infty} P_i(t) dt} \quad (4.19)$$

onde $P_i(t) = \pi w_0^2 I_0(t)/2$ é a potência instantânea do feixe de entrada (dentro da amostra), onde $I_0(t)$ é a intensidade de pico e $\pi w_0^2/2$ é a área efetiva do feixe Gaussiano, e $S = 1 - \exp(-2r_a^2/w_a^2)$ é transmitância linear da abertura, com w_a sendo o raio da abertura do feixe no regime linear.

Como podemos notar, o tamanho da abertura S é um importante parâmetro visto que, ao se aumentar o tamanho da abertura, as variações em $T(z)$ são reduzidas. Para

abertura muito grande ou sem a abertura ($S = 1$), o efeito desaparece e $T'(z) = 1$ para todo z e $\Delta\Phi_0$. Para pequenos $|\Delta\Phi_0|$, o pico e vale ocorrem na mesma distância com respeito ao foco, e para uma não linearidade cúbica esta distância deve ser aproximadamente $0.86z_0$, de forma que a diferença entre o pico e vale é representada pela seguinte expressão

$$\Delta Z_{p-v} \simeq 1.7 z_0 \quad (4.20)$$

Numa medida da técnica de varredura-Z, uma quantidade fácil de se medir é ΔT_{p-v} , a diferença entre o pico e vale normalizado $T_p - T_v$. A variação desta quantidade em função de $|\Delta\Phi_0|$ calculadas para vários tamanhos da abertura é ilustrada na figura 4.4. Estas curvas exibem algumas características úteis. Em primeiro lugar, para uma dada ordem da não linearidade, estas curvas são independentes do comprimento de onda do laser, da geometria (contanto que a condição campo longínquo ($d \gg z_0$ seja satisfeita), e do sinal da não linearidade. Elas podem, portanto, ser consideradas universais para esta ordem da não linearidade. Em segundo lugar, para todos os tamanhos de abertura como podemos ver na fig. 4.4 e, a variação de ΔT_{p-v} é linearmente dependente de $|\Delta\Phi_0|$ e a sensibilidade da medida como indicado pela inclinação das curvas decresce vagarosamente com o aumento da abertura. Para uma distorção de fase e uma abertura pequenas ($S \ll 1$), é obtido a seguinte expressão

$$\Delta T_{p-v} = 0.406 |\Delta\Phi_0| \quad \text{para} \quad |\Delta\Phi_0| \leq \pi \quad (4.21)$$

Cálculos numéricos mostram que esta equação possui uma precisão de $\pm 0.5\%$.

Uma equação mais geral, onde se leva em conta os vários tamanhos de abertura, é dada por

$$\Delta T_{p-v} \simeq 0.406(1 - S)^{0.25} |\Delta\Phi_0| \quad (4.22)$$

Esta equação é baseada num ajuste numérico levando em conta as várias aberturas, e fornece uma precisão de $\pm 2\%$.

Como foi mencionado anteriormente, a variação entre pico e vale está relacionada com o índice de refração não linear n_2 . Então, substituindo $|\Delta\Phi_0|$ dado pela equação (4.9) na expressão anterior, obtemos a seguinte expressão para n_2 :

$$n_2 = \frac{\Delta T_{p-v} \lambda}{0.406(1 - S)^{0.25} 2\pi I_0 L_{eff}} \quad (4.23)$$

Se o sistema experimental e aquisição de dados são capazes de determinar mudança de transmitância $\Delta T_{p-v} \simeq 1\%$ com boa resolução, o sistema terá capacidade de medir variação de fase correspondendo a distorção da frente de onda menor que $\lambda/250$. Para

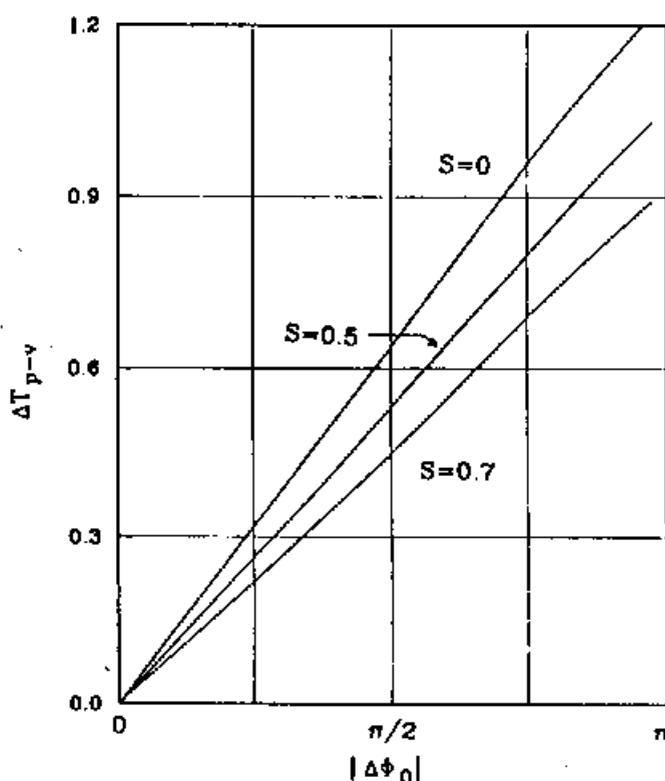


Figura 4.4: ΔT_{p-v} calculado como uma função da mudança de fase no foco ($\Delta\Phi_0$). A sensibilidade, como indicado pela inclinação da curva, decresce vagarosamente para tamanho de abertura largos ($S > 0$) [1]

obter esta alta sensibilidade nas medidas, as amostras devem possuir boa qualidade óptica.

Os resultados anteriores foram obtidos para o caso de estado estacionário ou seja com o feixe laser no regime CW, mas estes resultados podem ser facilmente estendidos para incluir efeitos transientes induzidos por radiação laser pulsada. Isto é feito usando a mudança de índice de refração média no tempo $\langle \Delta n_0(t) \rangle$ onde

$$\langle \Delta n_0(t) \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \Delta n_0(t) I_0(t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I_0(t) dt} \quad (4.24)$$

Com uma não linearidade tendo resposta e tempo de decaimento instantâneos relativamente à largura do pulso do laser, é obtido para um pulso com perfil temporal

gaussiano

$$\langle \Delta n_0(t) \rangle = \frac{\Delta n_0}{\sqrt{2}} \quad (4.25)$$

onde Δn_0 agora representa a mudança de índice de refração no foco. Para uma não linearidade acumulativa, tendo um tempo de decaimento muito maior que a duração do pulso (por exemplo efeito térmico), a mudança de índice de refração instantânea é representada pela seguinte integral

$$\Delta n_0(t) = A \int_{-\infty}^t I_0(t') dt' \quad (4.26)$$

onde A é uma constante que depende da natureza da não linearidade. Substituindo a equação (4.26) em (4.24), obteremos um fator de fluência médio de $1/2$ que é

$$\langle \Delta n_0(t) \rangle = \frac{1}{2} AF \quad (4.27)$$

onde F é a fluência do pulso no foco dentro da amostra. É interessante notar que o fator $1/2$ é independente da forma temporal do pulso.

Todas as equações anteriores foram obtidas com base em uma não linearidade cúbica (isto é um efeito de $\chi^{(3)}$). Uma análise similar pode ser realizada para não linearidades de ordens superiores. Apesar da ordem da não linearidade, as mesmas curvas características são esperadas da análise da varredura-Z. Em particular, para quantificar tais curvas, é examinado o efeito de uma não linearidade devido a susceptibilidade de quinta ordem $\chi^{(5)}$, o qual pode ser representado por uma mudança de índice de refração dada por $\Delta n = \eta I^2$, não linearidades encontradas em semicondutores onde o índice de refração é alterado através de portadores de carga gerados pela absorção de dois fótons (isto é, um efeito sequencial $\chi^{(3)} : \chi^{(1)}$) aparece com uma tal não linearidade de quinta ordem [4]. Para um efeito de quinta ordem, assumindo uma amostra fina e usando a aproximação de decomposição Gaussiana (DG), foi estabelecido que o pico e vale neste caso são separados por $\simeq 1.2z_0$, que são diferentes daquele de terceira ordem $\simeq 1.7z_0$. Além disso, os cálculos teóricos também mostram que para abertura pequena na frente do detector ($S \ll 1$)

$$\Delta T_{p-v} \simeq 0.21 |\Delta \Phi_0|, \quad (4.28)$$

onde neste caso a distorção de fase é dada por

$$\Delta \Phi_0 = k\eta I^2 \left(\frac{1 - e^{-2\alpha L}}{2\alpha} \right). \quad (4.29)$$

Cálculos teóricos também indicam que a dependência do tamanho da abertura na equação (4.28) pode ser aproximada multiplicando o lado direito por $(1 - S)^{0.25}$, como no caso da não linearidade de terceira ordem.

À parte das flutuações estatísticas da intensidade do laser, imperfeições de superfície ou cunha nas amostras podem levar a mudanças sistemática da transmitância com a variação da amostragem em z, que pode mascarar o efeito de refração não linear. É estabelecido, contudo, que tais efeitos "parasíticos" podem ser substancialmente reduzidos por subtrair na varredura-Z uma medida em baixa intensidade da medida em alta intensidade, após normalizar cada medida.

A figura 4.5 mostra os dados de varredura-Z antes e depois da subtração em uma amostra de ZnSe de 1mm de espessura e particularmente de má qualidade óptica.

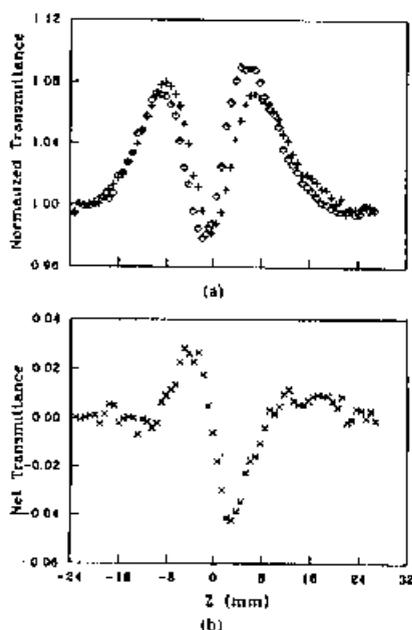


Figura 4.5: a) medida de varredura-Z na amostra de ZnSe de 1mm de espessura possuindo má qualidade óptica na superfície (\diamond) medida em baixa intensidade, (+) medida em alta intensidade b) (\times) medida após a subtração das medidas em a) [1]

Uma simples simulação computacional deste processo, assumindo que as imperfeições da superfície não destroem a simetria circular do feixe, indicam que a subtração da baixa intensidade, ou melhor dizendo, intensidade de fundo realmente recuperam a diferença entre pico e vale ΔT_{p-v} original surgido do efeito de refração não linear.

4.2 Efeito de Absorção Não Linear

Descrevemos agora um método pelo qual a técnica de varredura- Z pode ser usada para determinar, o índice de refração não linear e o coeficiente de absorção não linear para materiais que apresentam simultaneamente estas não linearidades. Como já é conhecido, altas não linearidades em materiais estão comumente associadas com uma transição ressonante, que pode ser de natureza de um único ou vários fótons. A absorção não linear nestes materiais é devido à absorção de vários fótons, saturação da absorção de um único fóton, ou dinâmica da absorção de portadores livres tendo forte efeito na medida de refração não linear usando a técnica de varredura- z . Para materiais que apresentam absorção não linear, uma varredura- z com o furo na frente do detector todo aberto ($S=1$) é insensível à refração não linear. Espera-se que as curvas obtidas desta medida (sem furo) seja simétrica com respeito ao plano focal ($z=0$), onde a curva possui a transmitância mínima (no caso de absorção de vários fótons), ou transmitância máxima (no caso da saturação da absorção [5]). Então, com estas curvas de transmitância podem ser facilmente calculado os coeficientes de absorção não linear das amostras.

Aqui será analisado o caso da absorção de dois fótons (A2F), que tem sido estudado em semicondutores com $E_g < 2\hbar\omega < 2E_g$, onde E_g é a energia do gap da banda do material e ω é a frequência óptica do laser [6]. A susceptibilidade não linear de terceira ordem, neste caso, é uma quantidade complexa:

$$\chi^{(3)} = \chi_R^{(3)} + i\chi_I^{(3)} \quad (4.30)$$

onde a parte imaginária é relacionada com o coeficiente de A2F (β) através da relação

$$\chi_I^{(3)} = \frac{n_0^2 \epsilon_0 c^2}{\omega} \beta \quad (4.31)$$

e a parte real é relacionada à refração não linear (γ) através de

$$\chi_R^{(3)} = 2n_0^2 \epsilon_0 c \gamma. \quad (4.32)$$

O interesse aqui é trabalhar no regime de excitação baixa onde os efeitos de portadores livres (refrativo ou absorvivo) podem ser desprezados. Em vista desta aproximação,

as equações (4.5) e (4.6) serão reavaliadas após a seguinte substituição:

$$\alpha(I) = \alpha + \beta I^2. \quad (4.33)$$

Esta substituição produzirá uma distribuição de intensidade e uma mudança de fase do feixe na superfície de saída da amostra dadas por

$$I_s = \frac{I(z, r, t) e^{-\alpha L}}{1 + q(z, r, t)} \quad (4.34)$$

e

$$\Delta\phi(z, r, t) = \frac{k\gamma}{\beta} \ln[1 + q(z, r, t)] \quad (4.35)$$

onde $q(z, r, t) = \beta I(z, r, t) L_{eff}$ (z , é a posição da amostra). Combinando as duas equações anteriores, obtém-se o campo elétrico complexo na superfície de saída da amostra, que é dada pela equação

$$E_s = E(z, r, t) e^{-\alpha L/2} (1 + q)^{\left(\frac{ik\gamma}{\beta} - 1/2\right)}, \quad (4.36)$$

A equação (4.36) reduz a (4.10) no limite quando não há absorção não linear ($\beta \rightarrow 0$). Em geral, a transformada de Hankel de ordem zero de (4.36) dará a distribuição do campo na abertura, o qual pode ser usado em (4.18) e (4.19) para produzir a transmitância. Para $|q| < 1$, segue uma expansão em série binomial em potência de q , e a equação (4.36) pode ser expresso em uma soma de feixes Gaussianos similar ao caso puramente refrativo descrito anteriormente como segue:

$$E_s = E(z, r, t) e^{-\alpha L} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{q(z, r, t)^m}{m!} \left[\prod_{n=0}^m \left(\frac{ik\gamma}{\beta} - 1/2 - n + 1 \right) \right] \quad (4.37)$$

onde o perfil espacial Gaussiano está implícito em $q(z, r, t)$ e $E(z, r, t)$. O modelo de campo complexo na abertura pode ser obtido da mesma maneira como feito para a contribuição puramente refrativa. O resultado pode ser de novo representado por (4.12) se substituirmos o termo $(i\Delta\phi_0(z, t))^m/m!$ na soma por

$$f_m = \frac{(i\Delta\phi_0(z, t))^m}{m!} \prod_{n=0}^m \left(1 + i(2n - 1) \frac{\beta}{2k\gamma} \right) \quad (4.38)$$

com $f_0 = 1$. O fator $\beta/2k\gamma$ é a razão entre a parte imaginária e a parte real da susceptibilidade de terceira ordem $\chi^{(3)}$.

A variação de transmitância pode ser calculada seguindo o mesmo procedimento feito para o caso refrativo. Como é evidente da equação (4.38), a contribuição absorptiva e refrativa para o perfil do feixe no campo longínquo e portanto, para a transmitância da varredura-z estão acopladas. Quando a abertura é removida, a transmitância na varredura-z é insensível à distorção do feixe. Neste caso a medida será sensível só à absorção não linear. A intensidade total transmitida neste caso ($S = 1$) pode ser obtida por integração espacial de (4.34) incluindo o processo de propagação no espaço livre. Integrando (4.34) em r no ponto z , é obtida a potência transmitida $P(z, t)$ como segue:

$$P(z, t) = P_i(t) e^{-\alpha L} \frac{\ln[1 + q_0(z, t)]}{q_0(z, t)} \quad (4.39)$$

onde $q_0(z, t) = \beta I_0(t) L_{eff} / (1 + z^2/z_0^2)$ e $P_i(t) = \pi w_0^2 I_0(t) / 2$. Para um pulso com perfil temporal Gaussiano, a equação (4.39) pode ser integrada para dar a transmitância de energia normalizada

$$T(z, S = 1) = \frac{1}{\sqrt{\pi} q_0} \int_{-\infty}^{\infty} \ln[1 + q_0(z, 0) e^{-\tau^2}] d\tau \quad (4.40)$$

Para $|q_0| < 0$, esta transmitância pode ser expressa, em termos da intensidade de pico, em uma forma de soma mais conveniente para avaliação numérica

$$T(z, S = 1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0(z, 0)]^m}{(m + 1)^{3/2}} \quad (4.41)$$

Então, uma vez que a varredura-z sem a abertura ($S=1$) é realizada, o coeficiente de absorção não linear β pode ser deduzido. Conhecido o valor de β , uma varredura-z com a abertura colocada na frente do detector ($S < 1$) pode ser usada para extrair o coeficiente desconhecido que neste caso é o coeficiente de refração não linear γ .

Como foi feito para o caso puramente refrativo, é desejável estimar γ e β sem ter que realizar um ajuste teórico detalhado dos dados experimentais. Na prática, podemos extrair os dois efeitos da medida de varredura-z; o que se faz é realizar uma medida sem a abertura na frente do detector ($S=1$), que será sensível só à absorção não linear tendo um valor mínimo em $z = 0$, como é mostrado na figura 4.6b; depois nas mesmas condições realiza-se uma medida com a abertura na frente do detector, caso em que o sistema é sensível também à refração não linear, embora a curva seja totalmente diferente daquela do sistema puramente refrativo, pois como mencionamos anteriormente à absorção não linear suprime o pico e intensifica o vale, como podemos observar na figura 4.6a. Para obtermos γ , é feita a divisão da curva normalizada

realizada com a abertura ($S < 1$), pela curva normalizada realizada sem o furo ($S = 1$). O resultado é uma nova varredura-z que é característica do sinal no caso puramente refrativo figura 4.6c. Dessa curva, obteremos γ com um erro de $\pm 10\%$ em relação a uma medida feita para o caso puramente refrativo.

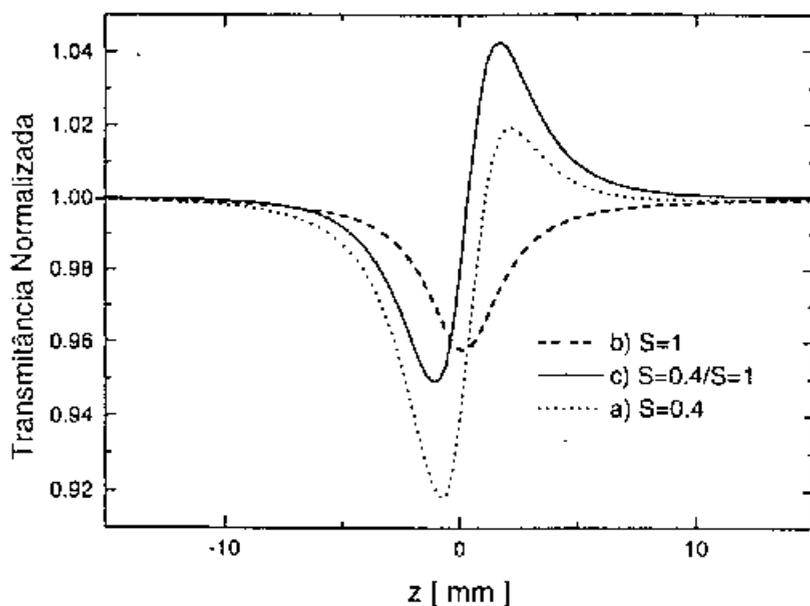


Figura 4.6: Medida de varredura-Z para o caso de amostras que apresentam absorção de dois fótons a) medida feita com a abertura ($S < 1$), b) medida feita sem a abertura ($S = 1$) e c) razão entre as curvas anteriores a/b [7]

Bibliografia

- [1] Mousoor Sheik-Bahae, Ali A. Said, Tai-Huei, David J. Hagan, and E. W. Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 26, N 4, April 1990.
- [2] J. D. Garkill, *Linear systems, Fourier Transforms, and Optics*. New York: Wiley, 1987.
- [3] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, "Effect of low-power nonlinear refraction on laser propagation in InSb," *Opt. Lett.*, vol. 4, pp. 331-333, 1979.
- [4] E. W. Van Stryland, H. Vanherzeele, M. A. Woodall, M. J. Soileau, A. L. Smirl, S. Guha, and T. G. Boggess, "Two-photon absorption, nonlinear refraction, and optical limiting in semiconductors," *Opt. Eng.*, vol. 25, pp. 613-623, 1985.
- [5] Lina Yang, R. Dorsinville, Q. Z. Wang, P. X. Ye, R. R. Afano, "Excited-state nonlinearity in polythiophene thin films investigated by the Z-scan technique", *Opt. Lett.*, vol. 17, 5, pp. 323-325, 1992.
- [6] E. W. Van Stryland, M. A. Woodall, H. Vanherzeele, and M. J. Soileau, "Energy band-gap dependence of two-photon absorption," *Opt. Lett.*, vol. 10, pp. 490-492, 1985.
- [7] As simulações apresentadas nas figuras 4.3 e 4.6 foram geradas por Claudio Mazzali

Capítulo 5

Descrição Experimental

5.1 Montagem Experimental

A Montagem experimental da técnica de varredura-Z utilizada neste trabalho pode ser observada no esquema da figura 5.1. Neste sistema foi utilizado um laser de Nd:YAG, operando em $1.06 \mu m$ ($E=1.17 eV$), no modo fundamental TEM_{00} , que trabalha simultaneamente nos regimes “mode-locking” (pulsos de 100 ps de duração, taxa de repetição de 50 MHz) e “Q-switching” (taxa de repetição de 100 Hz, com uma envolvente de 200 ns). A focalização do feixe na amostra foi feita com uma lente de 15 cm de distância focal, com camadas anti-refletores para $1.06 \mu m$. A cintura do feixe no foco era de $34 \mu m$ e o parâmetro confocal b , de 7 mm. Todos os espelhos utilizados eram dielétricos, com 100 % de reflexão para $1.06 \mu m$ à 45° . O polarizador P foi utilizado para garantir com bastante precisão a polarização vertical do feixe laser. O polarizador utilizado foi um Mc Neille, que possui uma razão de extinção entre as polarizações perpendicular e paralela menor que 10^{-3} , isto elimina praticamente qualquer flutuação na polarização do laser. A posição da amostra em relação ao plano focal foi variada com a utilização de um motor de passo (Syncro, modelo 841.001-4) acoplado a uma mesa transladora de avanço micrométrico, com percurso total de 4 cm. As espessuras das amostras estudadas variavam de 0.5 mm à 3 mm, satisfazendo a condição $L < b$. A intensidade do feixe sobre a amostra foi variada por intermédio de filtros de densidade neutra. A distância d da amostra ao plano de abertura do diafragma utilizada foi de 60 cm.

A detecção do sinal de referência, e do sinal transmitido pela amostra foi feita por dois detectores lentos de silício, idênticos (UDT, modelo Pin 25), com área ativa de $6 cm^2$. Optamos pela utilização de detectores com área grande para uma maior co-

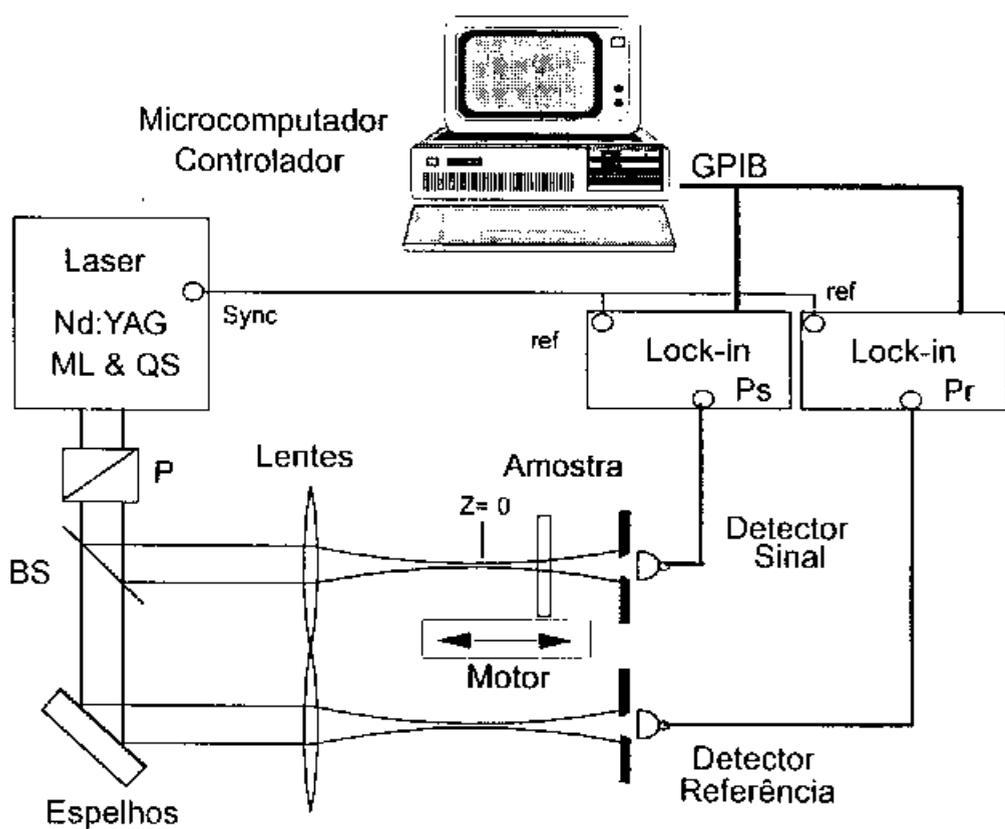


Figura 5.1: Esquema experimental utilizado neste trabalho

modidade na variação do diâmetro do diafragma na frente do detector, especialmente no caso de medida de absorção de dois fótons onde o feixe deve estar todo contido na área ativa do detector. Os sinais elétricos dos detectores foram processados por amplificadores sensíveis a fase ("lock-in amplifiers" da Stanford Research Systems, modelo SR530) controlados por um microcomputador PC-XT, via GPIB. O sinal de referência para os "lock-ins" foi fornecida pela saída do sincronismo do "Q-switching" do laser (100Hz).

5.2 Estabilização e Otimização do Sistema de Medida

Uma vez que as variações de transmitância na técnica de varredura-Z são da ordem de 10 % ou menos, cuidados devem ser tomados para minimizar as flutuações da potência do laser e da estrutura transversa do feixe e maximizar a correlação entre os sinais obtidos pelos dois detectores. Ao verificarmos a estabilidade do laser de Nd:YAG percebemos que a flutuação de intensidade variava entre 5 a 10 %, se o laser não estava perfeitamente alinhado. Realinhamos todo o sistema óptico da cavidade do laser, fazendo algumas modificações nas montagens do sistema original tais como alteração no suporte de ambos moduladores acusto ópticos do mode-locking e do Q-switching de modo a termos controle da orientação dos cristais no plano x, y e na altura. Com estas modificações e realinhamentos conseguimos diminuir a instabilidade de intensidade do laser para um nível inferior a 1 %.

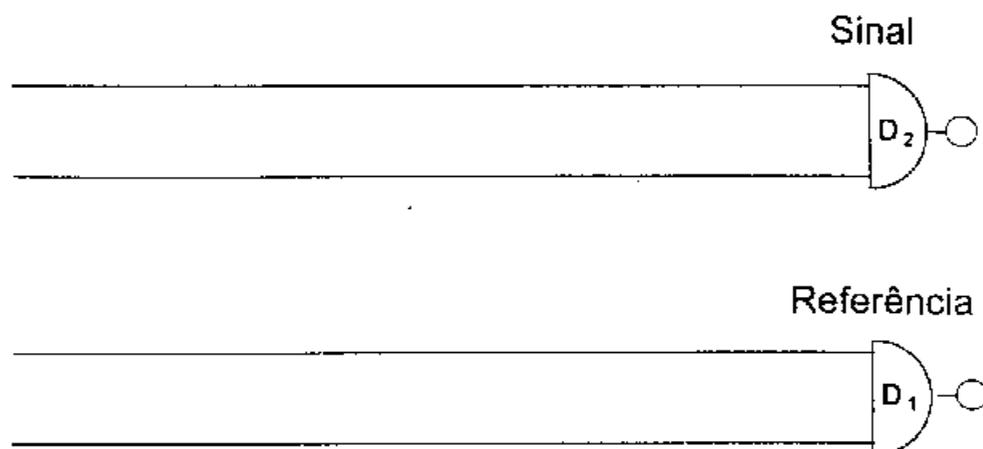


Figura 5.2: Montagem do sistema onde ambos detectores são sensíveis só a variação de intensidade

Após a estabilização do laser verificamos a correlação entre o sinal e a referência. O primeiro procedimento a ser verificado acerca deste problema, foi analisar todo sistema de detecção (lock-ins, detectores, e sistema de aquisição de dados) para verificar se algum ruído poderia estar sendo introduzido nas medidas por alguns destes componentes. Para fazer esta análise fizemos a montagem mostrada na figura 5.2, onde neste caso os detectores de referência (D_1) e sinal (D_2) são sensíveis só a variação de intensidade do laser. A figura 5.3 mostra o resultado obtido fazendo a razão entre o

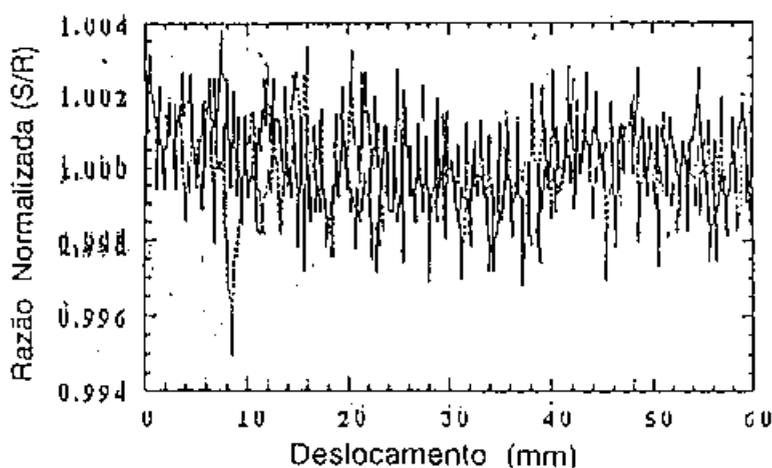


Figura 5.3: Razão entre o sinal e a referência, onde os dois detectores são sensíveis só a variação de intensidade

sinal e a referência com esta montagem. A flutuação do sinal medido neste caso foi de apenas 0.4 %, isto é um indicativo que todo o sistema de medição e aquisição de dados estava em perfeita ordem.

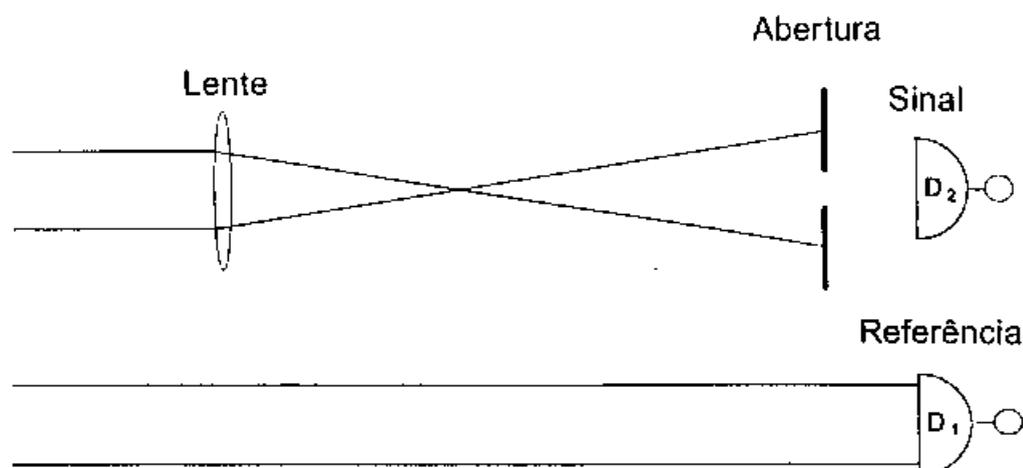


Figura 5.4: Montagem na qual o detector de sinal é sensível à variação do modo do laser e da intensidade, e o detector de referência é sensível só a variação de intensidade

A figura 5.4 mostra o esquema no qual o feixe que incide no detector (D_2) que mede o sinal, passa por uma lente e um furo que é colocado no centro do feixe e na

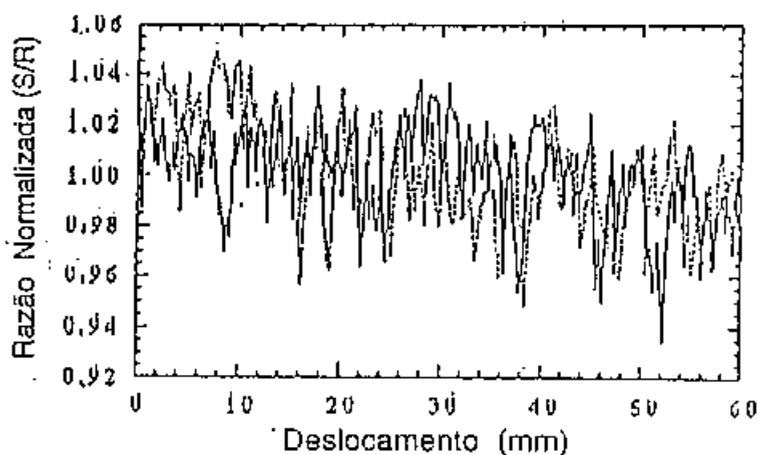


Figura 5.5: razão entre o sinal e a referência, no caso onde o sinal é sensível a variação do modo do laser e intensidade, e a referência é sensível só a intensidade

frente do detector. Nesta configuração o detector de referência (D_1), é sensível só à variação de intensidade do laser, enquanto que o detector de sinal (D_2), é sensível à variação de intensidade e também à variação de fase devido a flutuações no modo do laser, porque se o modo do laser está sujeito a uma pequena flutuação, o diâmetro do feixe antes do furo se altera, causando flutuações no sinal medido (que é a razão entre o sinal dos dois detectores).

A razão entre o sinal dos dois detectores, como pode ser observado na figura 5.5, mostra um nível de flutuação em torno de 7 %, indicando que medidas feitas nesta situação certamente mascarariam as medidas reais de varredura-Z onde a variação de transmitância na medida de n_2 é tipicamente da ordem de 10 %.

Para sanar este problema fizemos a montagem indicada na figura 5.6, onde ambos os detectores são sensíveis à variações do modo do laser e intensidade. Nesta configuração as lentes são de mesmo comprimento focal, os detectores e os furos são idênticos e estão colocados na mesma distância, de forma que as flutuações vistas por um detector serão as mesmas que as vistas pelo outro detector. Desta forma, a razão entre os dois sinais elimina praticamente as flutuações geradas. O resultado da medida utilizando essa configuração é mostrado na figura 5.7, onde pode ser observada uma grande diminuição das flutuações, que ficaram em torno de 0,7 %. Demonstramos experimentalmente, que esta ultima configuração é a ideal para a realização de nossas medidas, pois o nível de flutuação do sinal resultante é pequeno em comparação com a variação de transmitância que iremos medir. Com o sistema nessa configuração

podemos medir variações de transmitância com o sistema de varredura-Z da ordem de 1 %.

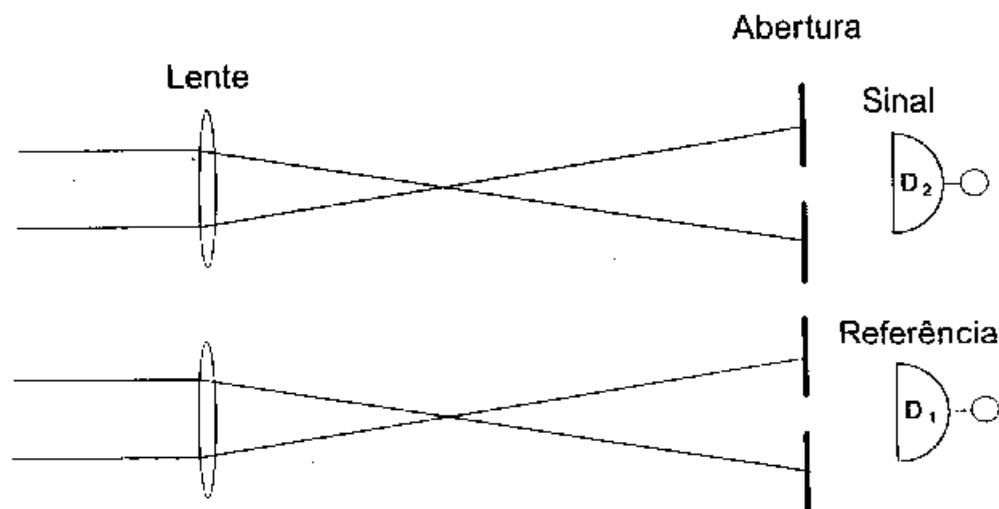


Figura 5.6: Montagem na qual ambos detectores são sensíveis à variação do modo do laser e intensidade

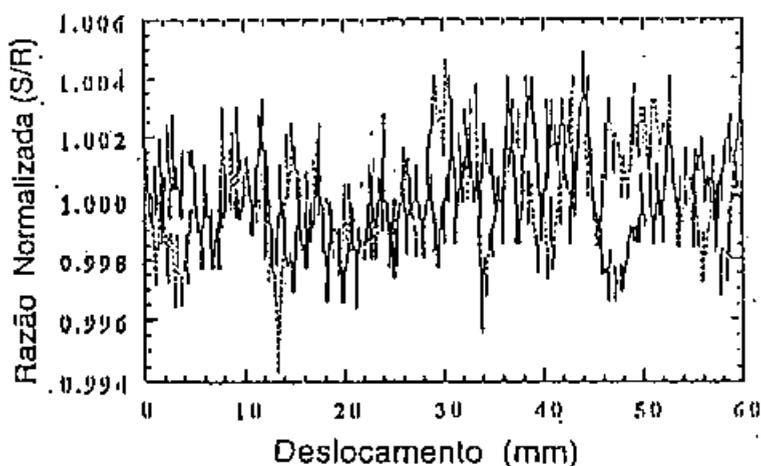


Figura 5.7: Razão entre o sinal e referência no caso onde ambos detectores são sensíveis à variação do modo do laser e intensidade

5.3 Calibração do Sistema de Medida

A calibração do sistema de medida foi realizada usando uma amostra de dissulfeto de carbono (CS_2) líquido, cujo o coeficiente de refração não linear (n_2) é alto e seu valor é bem conhecido. Esse material é geralmente utilizado como material de calibração para qualquer sistema de medida do índice de refração não linear. A amostra de CS_2 foi acondicionada numa cela de quartzo com espessura de 1mm. Os primeiros resultados são mostrados na figura 5.8, onde podemos notar que o vale está menor e mais largo do que o pico, e que o sinal para $z > 0$ não volta ao mesmo patamar que em $z < 0$. Esta assimetria é anormal e não depende, como verificamos, da pureza do CS_2 .

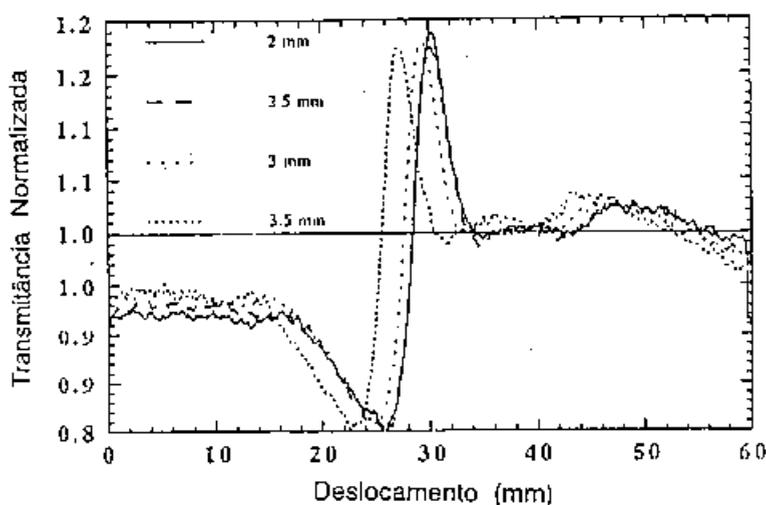


Figura 5.8: Medida de varredura-Z em CS_2 deslocando a abertura (diâmetro = 6 mm) em relação ao eixo do feixe

Com o intuito de entender o que estava acontecendo, verificamos primeiramente o que aconteceria se deslocássemos a abertura na frente do detector do sinal em relação ao centro do feixe expandido. Na figura 5.8 são mostradas várias curvas, onde o valor mostrado na legenda de cada curva indica o deslocamento do centro do furo em relação ao eixo do feixe. Podemos notar que a forma das curvas não se alterara com o deslocamento da abertura, indicando que a assimetria não era causada pela descentralização da abertura.

pesquisamos então, como o alinhamento da amostra influenciava nas medidas. Para isto, colocamos a amostra sobre uma montagem que nos permitisse variar o ângulo em torno das duas direções perpendiculares à direção de incidência do feixe

na amostra, que chamamos \hat{z} . A figura 5.9 mostra o resultado das medidas realizadas girando a amostra em torno da direção \hat{x} em ângulos de 20 mrad para cada medida. As curvas sofriam uma distorção maior com o aumento do ângulo, e apresenta oscilações devidas as reflexões na superfície da cela de quartzo. Quando girávamos a amostra em torno da direção \hat{y} também em ângulos de 20 mrad, as curvas iam distorcendo com o aumento do ângulo e as oscilações também começavam a aparecer. Como é mostrado na figura 5.10.

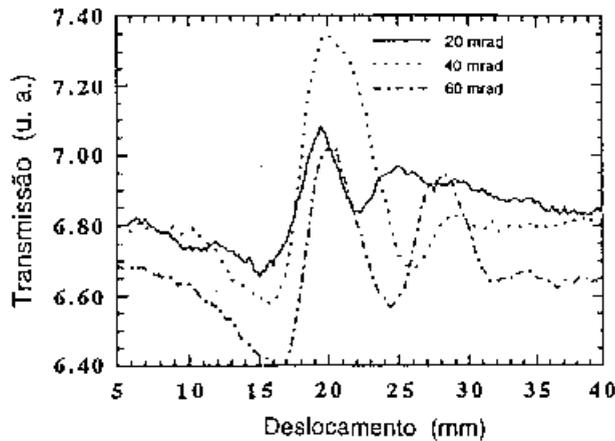


Figura 5.9: Medida com CS_2 girando a amostra em torno de \hat{x} em ângulo de 20 mrad em cada medida

Com estes resultados, demonstramos que a origem da assimetria na medida da varredura-Z era devida ao mal posicionamento angular da amostra em relação ao feixe incidente. Resumindo, para termos medidas de boa qualidade a amostra deve ser posicionada perpendicularmente ao feixe durante todo o percurso na varredura-Z.

Com a amostra orientada corretamente, o sistema óptico completamente alinhado e com a garantia da operação do laser no regime monomodo transversal, conseguimos obter curvas reproduzíveis e características da varredura-Z, como ilustrada na figura 5.11. Nesta figura são mostradas medidas variando a intensidade e o tamanho da abertura na frente do detector, pois queríamos verificar o comportamento da variação de transmitância (ΔT_{p-v}) em função destes parâmetros. A intensidade foi variada através de filtros de densidade neutra e a abertura foi variada por intermédio de uma íris. Uma observação a ser feita na figura (5.11) é a de que foram feitas duas medidas para cada abertura, uma no sentido real da varredura-Z de $z < 0$ a $z > 0$ e outra no sentido inverso de $z > 0$ a $z < 0$, resultando com isto numa inversão da forma da

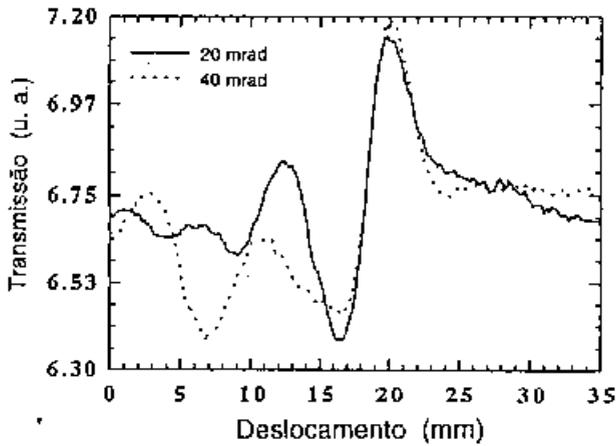


Figura 5.10: Medida com CS_2 girando a amostra em torno de \hat{y} em ângulo de 20 mrad em cada medida

curva. Fizemos isto para verificar a reproducibilidade das curvas. No sentido real da varredura-Z (de negativo para positivo) a curva apresenta um vale seguido de um pico, que corresponde a um índice de refração não linear positivo $n_2 > 0$.

Os resultados das medidas de variação de transmitância em função da intensidade e da abertura na frente do detector são resumidos na figura 5.12, onde foi observado um comportamento linear para esta variação. Para determinarmos o valor absoluto do coeficiente não linear n_2 obtido, tomamos a curva obtida com a varredura-Z com a abertura em 20 % ($S=0.2$). Na Figura 5.13 apresentamos esta curva ampliada, onde a intensidade utilizada foi de 3.5 GW/cm^2 . Da figura obtemos uma diferença de transmitância entre o pico e o vale de $\Delta T_{p-v} = 0.17$ e utilizando a equação (4.23) obtemos $n_2 = 2.9 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$, que está em acordo dentro, 5 %, com o valor mais aceito na literatura que é de $3.0 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ medido pela técnica de mistura de quatro ondas degeneradas [1] e com o valor $2.7 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ medido com a técnica de varredura-Z por outros autores [2]. A partir desse resultado concluímos que o nosso sistema de medida está totalmente calibrado e que podemos realizar medidas em outros materiais de nosso interesse.

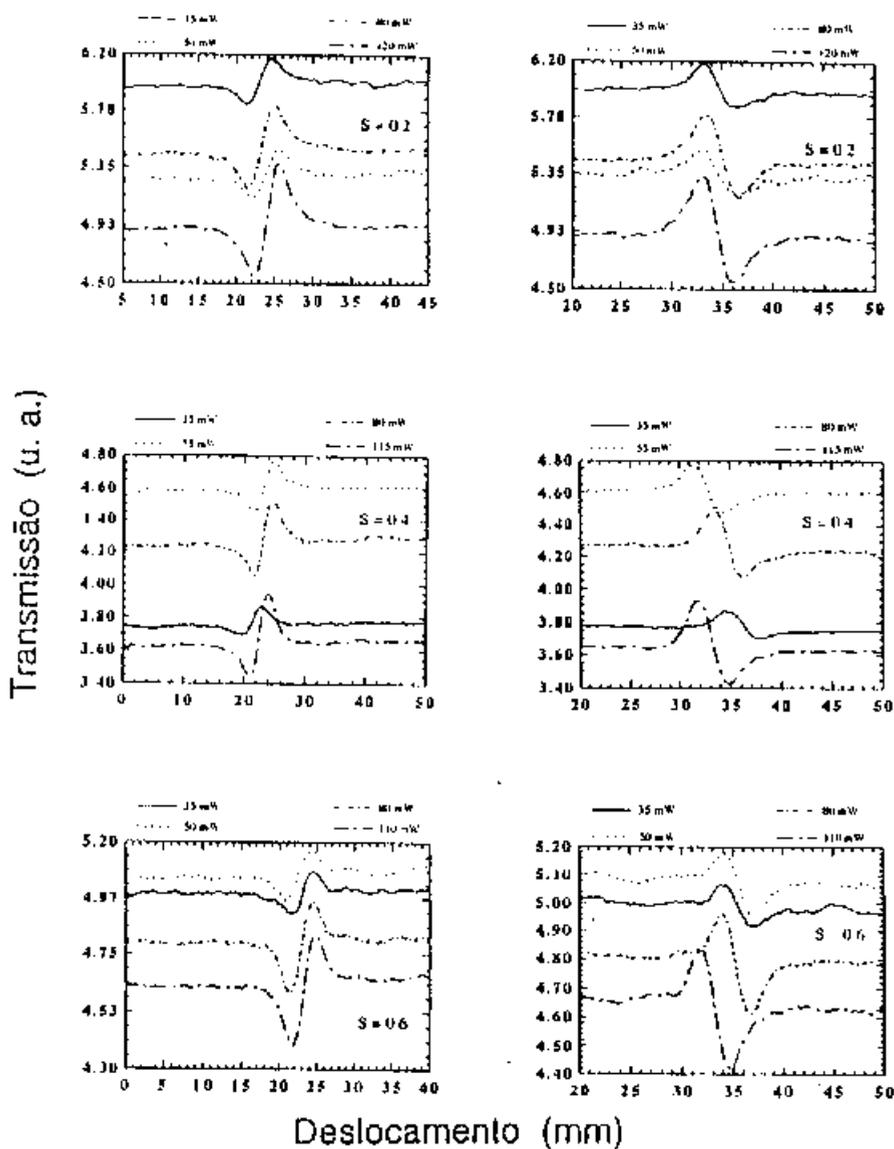


Figura 5.11: Medidas em CS_2 onde variamos a intensidade e o tamanho da abertura.

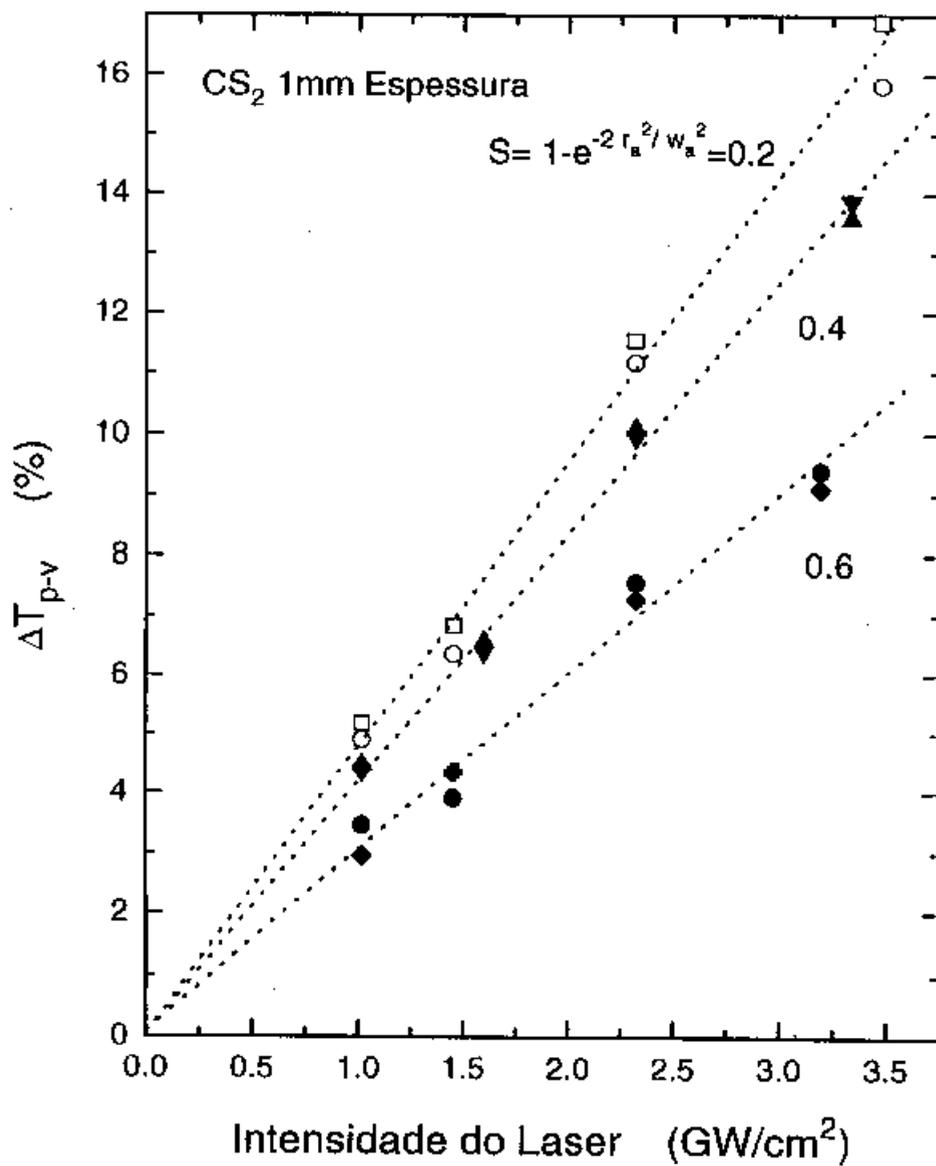


Figura 5.12: Variação ΔT_{p-v} em função da intensidade para várias aberturas, em CS₂

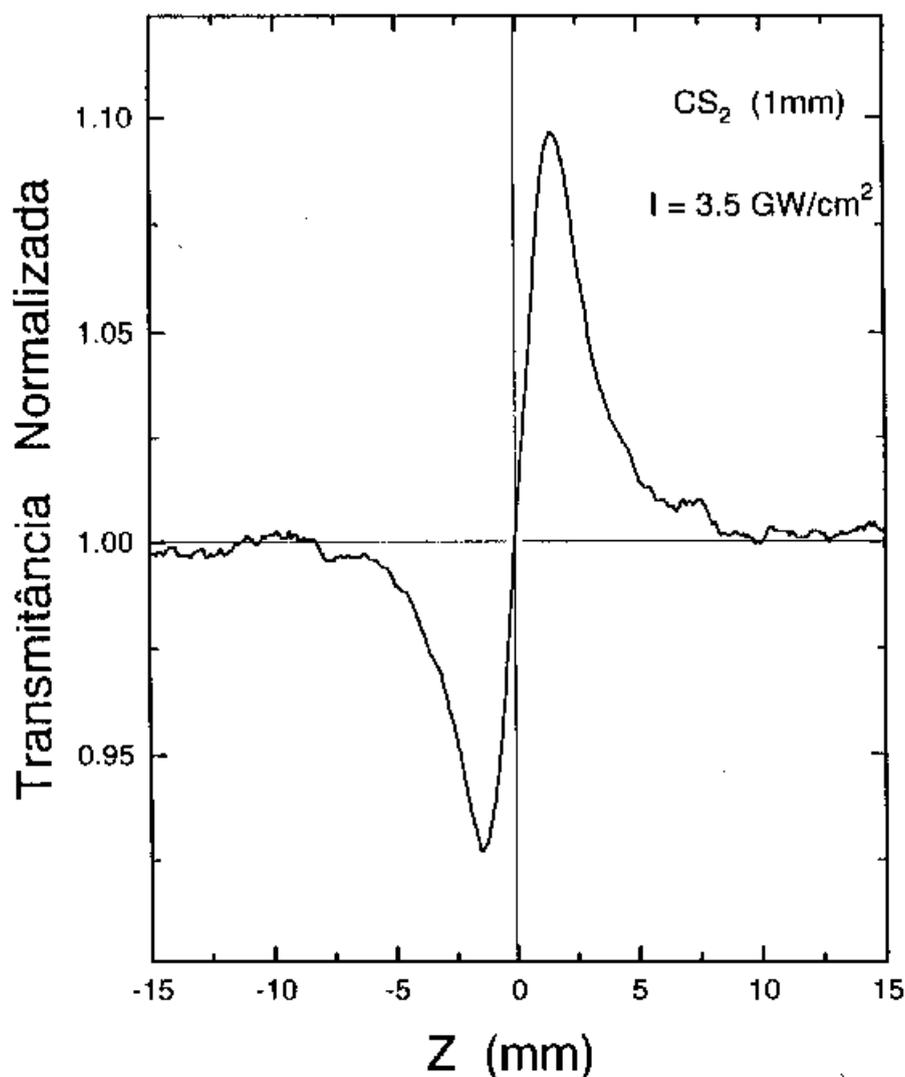


Figura 5.13: Resultado da varredura-Z em CS_2 usado em nosso cálculo

Para finalizar este capítulo, gostaria de destacar aqui um outro tipo de artefato que aparece em amostras com inhomogeneidades e/ou superfícies não muito bem polidas. Uma superfície pode parecer bem polida numa inspeção simples e dar uma

curva de varredura-Z razoável, mas mesmo assim dão resultados inconsistentes. Um exemplo deste tipo de artefato é mostrado na figura 5.14, que representa varreduras-Z para várias intensidades obtidas num vidro¹ com superfícies aparentemente de boa qualidade. Nota-se que cada curva se parece muito com uma varredura-Z teórica. Uma análise da variação de transmitância pico-vale (ΔT_{p-v}) em função da intensidade (Ver figura 5.15) porém, mostra que tudo não passa de um artefato. Com efeito, ΔT_{p-v} nesta amostra não depende linearmente da intensidade (a variação em baixa intensidade é da mesma ordem que em alta intensidade). Este efeito é causado por inhomogeneidades, que produzem um efeito de lente permanente. No caso da amostra em questão, esta inhomogeneidade era devida a imperfeições na superfície da amostra, como foi verificado repetindo as medidas após um polimento mais cuidadoso. Os resultados são apresentados no próximo capítulo (amostra # 2).

Podemos notar do que foi exposto acima que a qualidade da superfície da amostra é de fundamental importância para termos medidas confiáveis. Além disso, é essencial realizarmos medidas da variação da transmitância em função da intensidade para cada amostra, pois essa medida nos possibilita identificar se o efeito observado é devido à refração não linear.

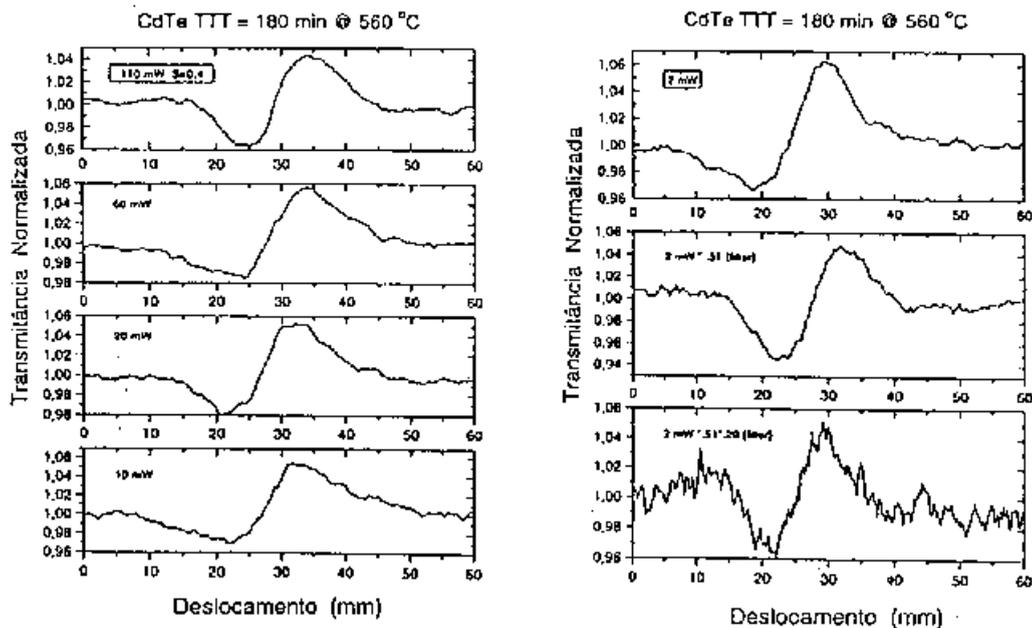


Figura 5.14: Medidas de varredura-Z na amostra # 2, em várias potências

¹ Este vidro é o mesmo que apresentaremos no capítulo 6, sendo referido como amostra # 2

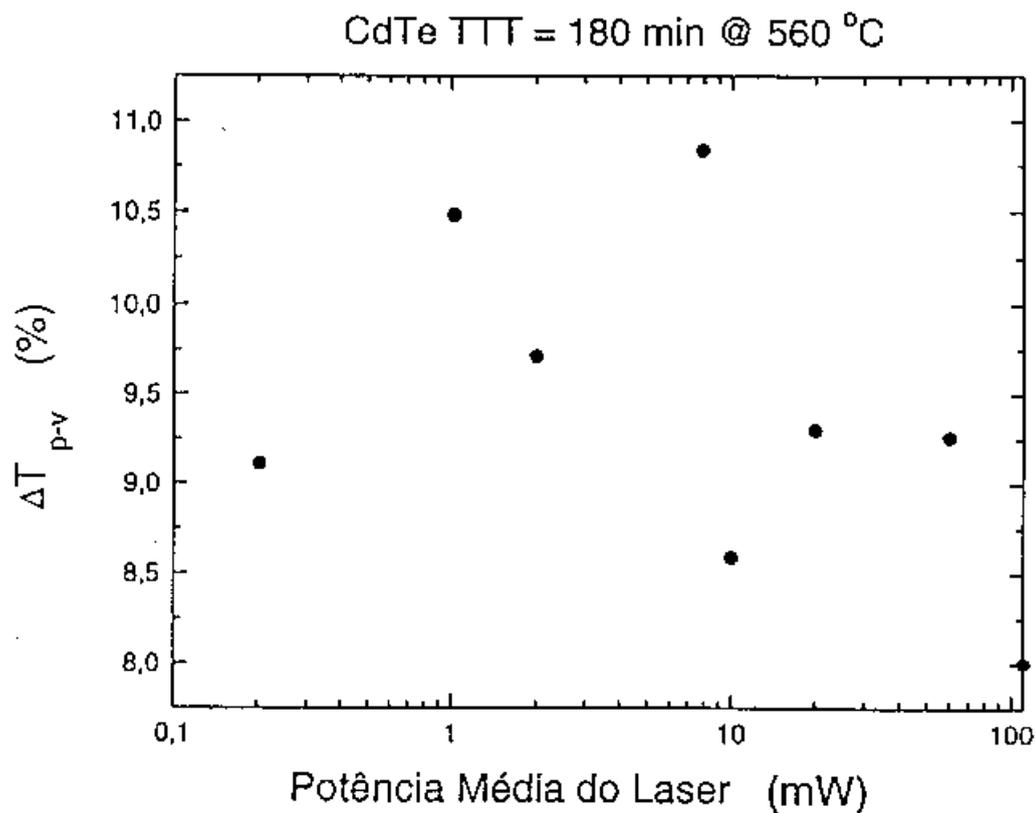


Figura 5.15: Variação da transmitância em função da intensidade na amostra # 2, tendo imperfeições superficiais

Bibliografia

- [1] Stephen R. Friberg and Peter W. Smith, "Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches," *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-23, 2089 (1987).
- [2] Monsoor Sheik-Bahae, Ali A. Said, Tai-Huei, David J. Hagan, and E. W. Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," *IEEE J. Quantum Electron.*, 26, 760 (1990).

Capítulo 6

Medidas de n_2 em Vidros

Neste capítulo apresentaremos os resultados de medidas do índice de refração não linear, obtidos com a técnica de varredura-Z em amostras de vidros comerciais Corning, e em vidros borosilicatos com inclusões de microcristalitos de CdTe produzidos no nosso grupo, no Laboratório de Materiais Vítreos do IFGW.

6.1 Medidas nos Vidros da Corning

Nesta seção apresentaremos medidas de varredura-z e de variação da transmitância em função da intensidade em vidros da Corning. Dessas medidas obteremos o valor absoluto do índice de refração não linear, n_2 .

Realizamos medidas em quatro amostras cujas especificações são: CS-2.59 (#2404), CS-2.63 (#2424), CS-3.67 (#3482), CS-3.68 (#3484). Essas amostras contêm inclusões semicondutoras de CdS_xSe_{1-x} com uma distribuição de tamanho centrada em torno de 10 nm com uma largura á meia altura de 2.5 nm [1]. São encontradas em forma de filtros coloridos comerciais com uma frequência de corte abrupta. A figura 6.1 mostra o espectro de absorção destas amostras. Como podemos observar destas curvas de absorção, o comprimento de onda do laser utilizado ($\lambda = 1064$ nm) está na região de transparência destes materiais.

As medidas de varredura-Z para as 4 amostras são mostradas na figura 6.2, onde a abertura do diafragma utilizada foi de 40% ($S=0.4$). A partir dessas medidas obtemos o valor da variação entre o pico e o vale da curva de transmissão (ΔT_{p-v}) que, junto com o valor da intensidade do feixe nos permite calcular o índice de refração não linear da amostra. Os valores de n_2 obtidos em cada curva estão representados

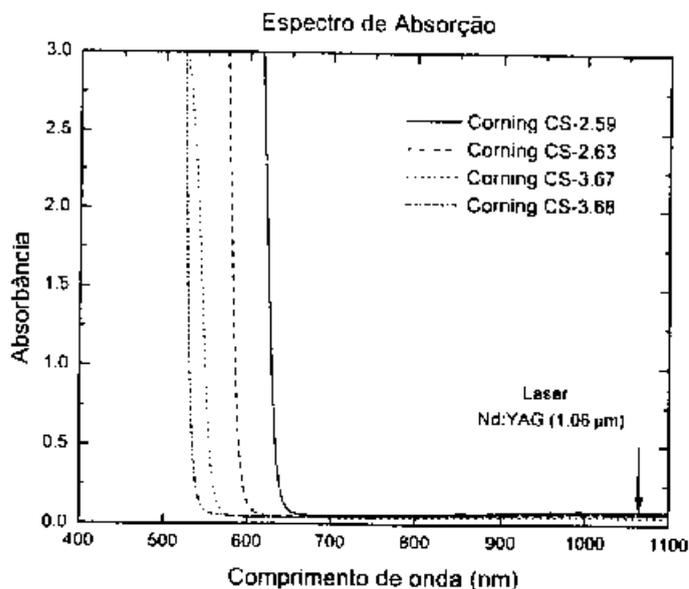


Figura 6.1: Espectro de absorção dos vidros da Corning

Filtros da Corning

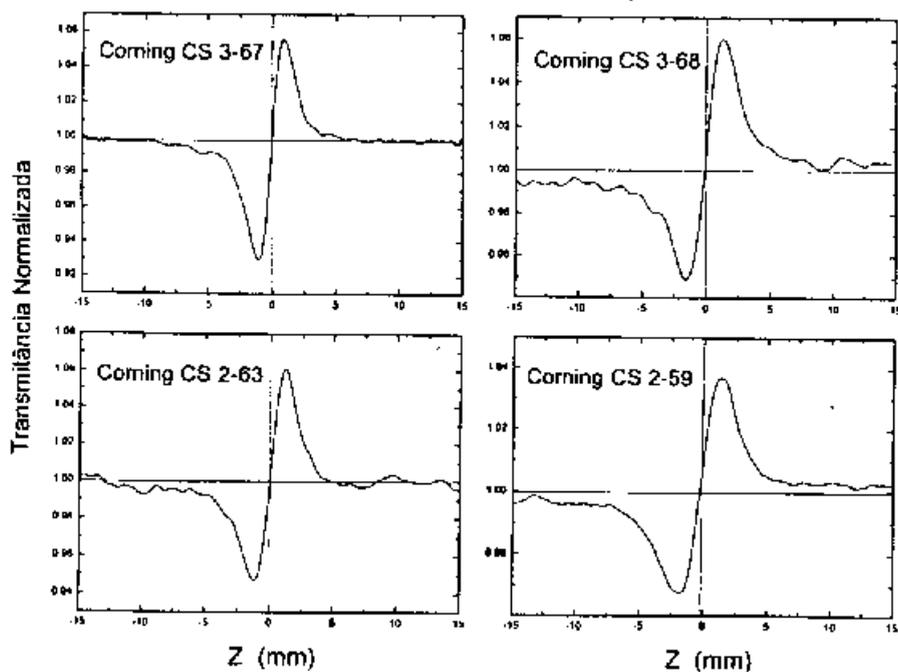


Figura 6.2: medida de varredura-Z nas amostras CS-2.59, CS-2.63, CS-3.67, CS-3.68

na tabela 6.1. O valor de n_2 obtido para a amostra CS-3.67 está próximo do resultado obtido na referência [2]. A técnica utilizada nas medidas apresentadas nessa referência é a mesma que nós utilizamos, porém o erro estimado é de $\pm 50\%$ enquanto que no nosso caso, o erro estimado é de $\pm 5\%$. Na figura 6.3 está graficada a variação de transmitância ΔT_{p-v} em função da variação da intensidade incidente na amostra. Podemos notar que em todas as amostras a relação entre essas duas grandezas é linear, o que nos indica que a refração não linear é dominada por um efeito de terceira ordem na susceptibilidade ($\chi^{(3)}$). Nestas amostras não foi observado nenhuma contribuição significativa do efeito de absorção de dois fótons, como mostra a figura 6.2.

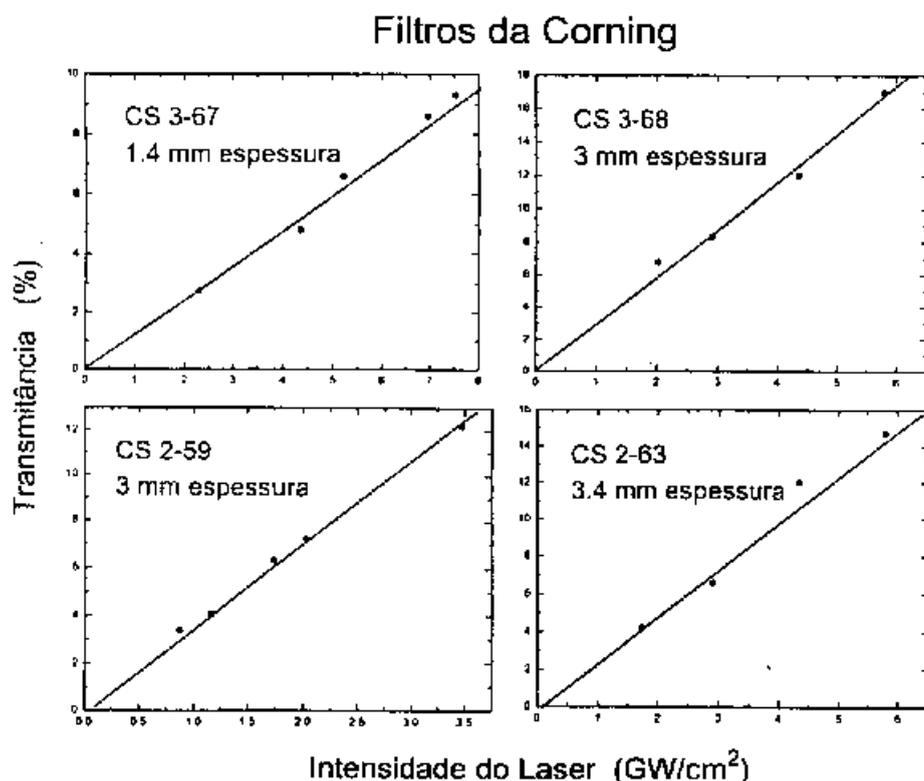


Figura 6.3: Variação de transmitância em função a intensidade nas amostras CS-2.59, CS-2.63, CS-3.67, CS-3.68

Tabela 6.1: Intensidade utilizada e o valor absoluto de n_2 para várias amostras da Corning utilizando a técnica de varredura-z

Amostras	Espessura (mm)	Intensidade (GW/cm^2)	ΔT_{p-v} (%)	n_2 (cm^2/W)
CS-2.59	3.00	1.74	7.00	6.1×10^{-15}
CS-2.63	3.40	4.40	11.5	3.7×10^{-15}
CS-3.67	1.46	8.10	13.0	5.4×10^{-15}
CS-3.68	3.05	3.80	11.0	4.6×10^{-15}

6.2 Medidas nos Vidros de CdTe

Nesta seção apresentaremos medida de varredura-Z e de variação de transmitância em função da intensidade nos vidros dopados com nanocristalitos semicondutores de CdTe fabricados no Laboratório de Materiais Vítreos do Departamento de Eletrônica Quântica do IFGW [3]. Foram caracterizadas quatro amostras identificadas na tabela 6.2 pela temperatura (T) e tempo (t) de tratamento térmico ao qual foram submetidas durante a sua fabricação (este tratamento térmico determina o tamanho dos cristallitos semicondutores). A tabela 6.2 também apresenta os resultados das medidas de varredura-Z que serão comentadas a seguir.

Na Figura 6.4 estão graficadas os espectros de absorção destas amostras. É importante notar que a energia dos fótons do laser está bem abaixo do gap, na região de transparência destes materiais.

Todas as amostras de CdTe aqui estudadas apresentaram efeito de absorção de dois fótons. Como vimos na descrição teórica da técnica, mesmo quando os materiais apresentam este tipo de efeito conseguimos obter da varredura-Z o índice de refração não linear n_2 . Para isto, basta fazermos medidas de varredura-Z nas mesmas condições, uma com abertura ($S < 1$) e outra sem abertura ($S=1$) e fazer a razão entre elas ($S < 1/S = 1$). O resultado é uma curva típica de varredura-Z de um meio com o mesmo n_2 , mas sem absorção de dois fótons. A figura 6.5 apresentamos os resultados

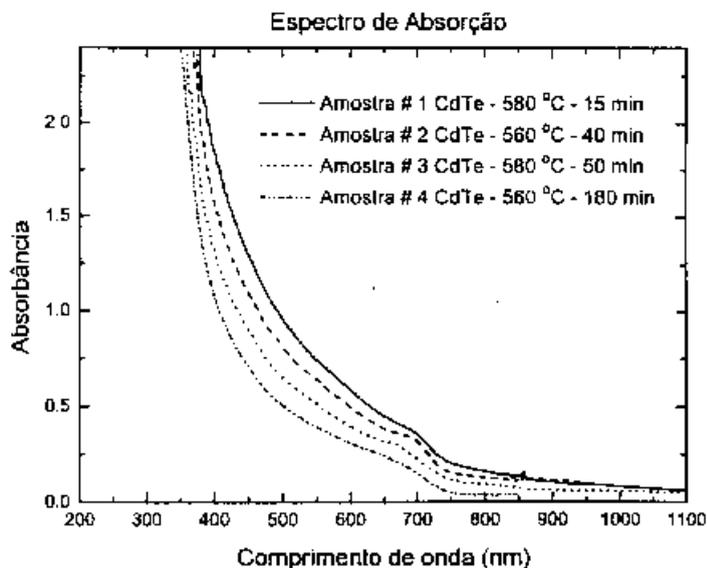


Figura 6.4: Espectro de absorção das amostras de CdTe

da varredura-Z obtidos nas quatro amostras estudadas, onde foram feitas medidas com a abertura em 40% ($S=0.4$), sem a abertura ($S=1$), e a razão ($S=0.4/S=1$). A intensidade utilizada, a espessura, a variação de transmitância (ΔT_{p-v}), e o valor de n_2 obtidos para cada amostra estão também apresentada na tabela 6.2.

Tabela 6.2: Intensidade utilizada e o valor absoluto de n_2 para 4 amostras de CdTe, utilizando a técnica de varredura-Z

Amostras (#)	T (°C)	t (min)	Espessura (mm)	Intensidade (GW/cm^2)	ΔT_{p-v} (%)	n_2 (cm^2/W)
1	580	15	0.7	7.5	16	2.0×10^{-14}
2	560	40	0.7	9.3	15	1.5×10^{-14}
3	580	50	0.5	5.2	20	5.1×10^{-14}
4	560	180	0.7	8.6	14	1.6×10^{-14}

Vidros de CdTe

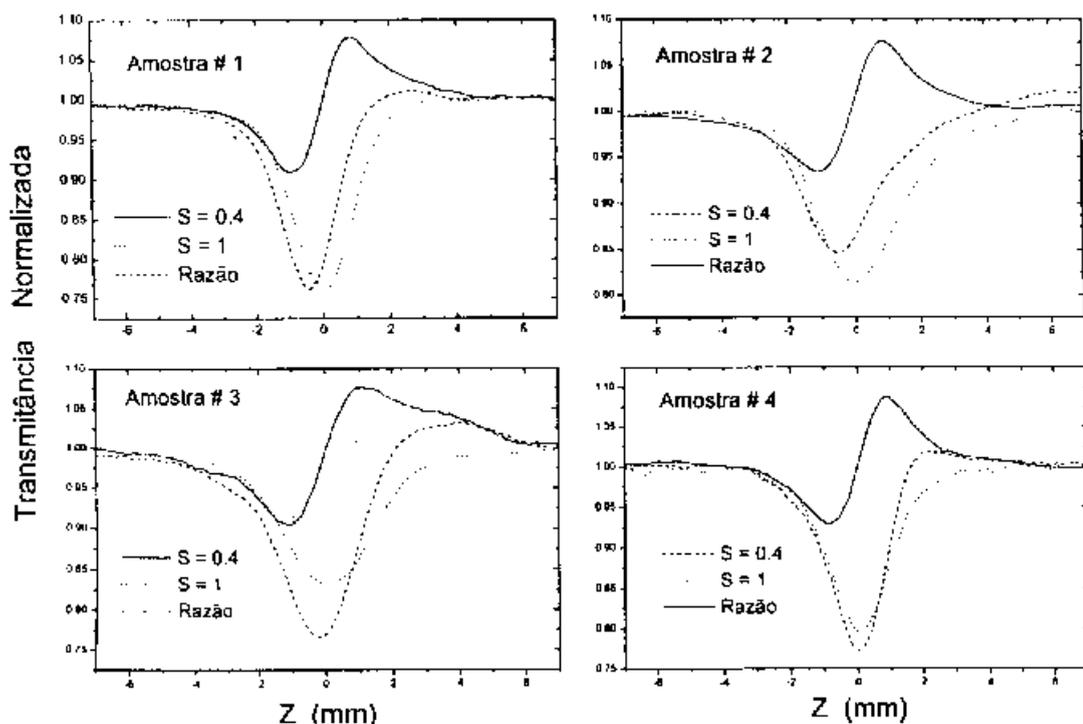


Figura 6.5: Medidas de varredura-Z nas quatro amostras de CdTe, onde foram feitas medidas em $S=0.4$, $S=1$, e a razão $S=0.4/S=1$

Na figura 6.6, apresentamos o resultado da variação de transmitância em função da intensidade em cada amostra. As amostras # 2 e 3, como podemos observar desta figura apresentam um comportamento linear, indicando que a contribuição para a refração não linear é devida a não linearidade cúbica. Nas amostras # 1 e 4, observa-se um desvio do comportamento linear em altas intensidades, que possivelmente pode ser causado por não linearidades de quinta ordem como mencionado na referência [4].

Os resultados apresentados pelas amostras dopados com microcristalitos de semicondutor de CdTe, que estão representadas na tabela 6.3 são os maiores valores de n_2 até hoje encontrado na literatura em vidros inorgânicos, na região de transparência, a de se destacar a amostra de 580°C tratada por 50min, pois ela apresentou n_2 1.7 vezes maior do que o do CS_2 . Os altos valores de n_2 observados nestas amostras são

Vidros de CdTe

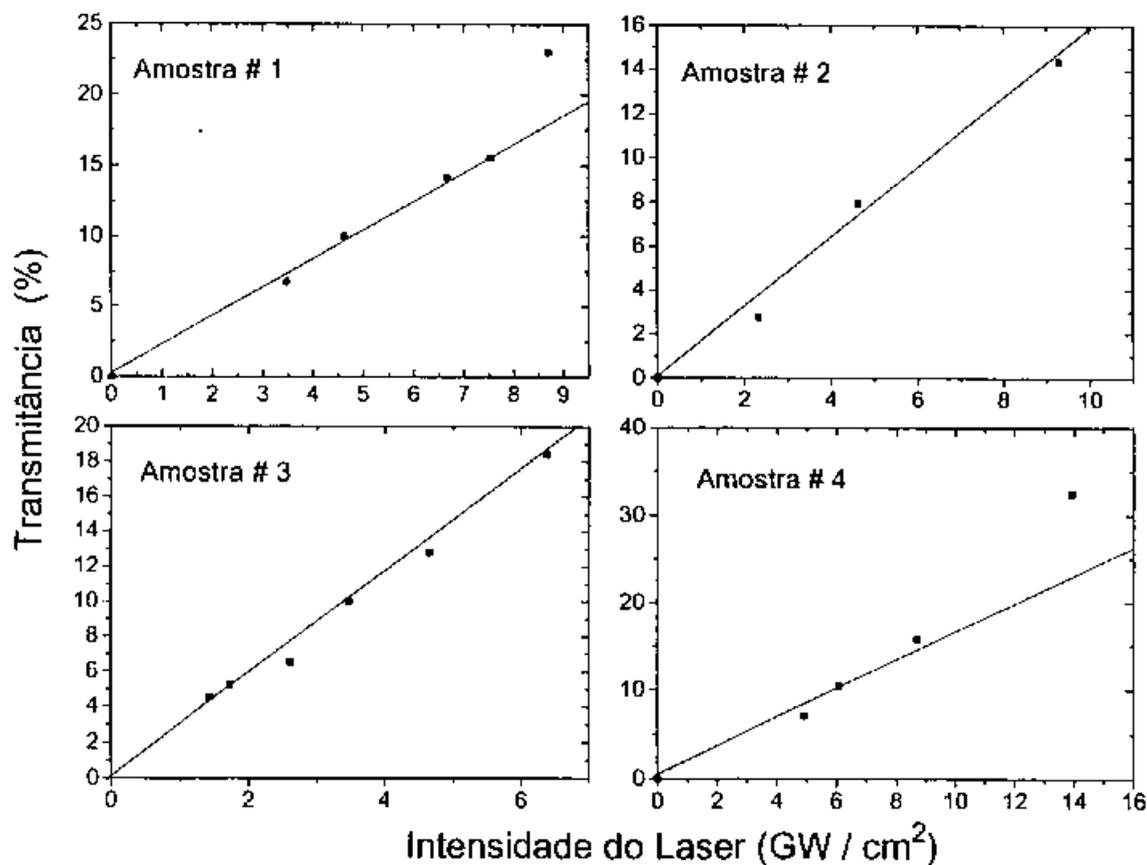


Figura 6.6: Variação da transmitância em função da intensidade, nas quatro amostra de CdTe estudada

devido à uma não linearidade ressonante de dois fótons.

Bibliografia

- [1] N. F. Borrelli, D. W. Hall, H. J. Holland e D. W. Smith, "Quantum confinement effects of semiconducting microcrystallites in glass", *J. Appl. Phys.* 61 (12), 5399 (1987).
- [2] H. Ma, A. S. L. Gomes and Cid B. de Araujo "Infrared nonlinearity of commercial Cd(S, Se) glass composites", *Op. Commun.*, 87, 19 (1992).
- [3] J. A. Medeiros Neto, "Desenvolvimento e Caracterização de Nanoestruturas do Tipo $CdFe_xS_{1-x}$ em Vidros Borosilicatos", Tese de Doutorado - IFGW/UNICAMP, 1992.
- [4] Monsoor Sheik-Bahae, Ali A. Said, Tai-Huei, David J. Hagan, and E. W. Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," *IEEE J. Quantum Electron.*, 26, 760 (1990).

Capítulo 7

Conclusões e Perspectivas

Foi descrito o desenvolvimento e funcionamento de um sistema de medição do índice de refração não linear de materiais baseado na técnica de varredura-z. Utilizando um laser com estabilidade pulso-a-pulso de 2 % e compensação de flutuações com detecção sensível a fase (Lock-in) o nosso sistema permite fazer medidas relativas de n_2 com um erro de $\pm 0.35\%$. Medidas absolutas de n_2 possui um erro estimado em $\pm 10\%$ devido à incerteza na determinação do perfil de intensidade do laser no foco.

Foram feitas medidas de calibração do sistema, para as quais utilizamos dissulfeto de carbono (CS_2) líquido. O valor encontrado para o coeficiente de refração não linear está dentro do 5%, em relação ao valor mais aceito na literatura, medido através da técnica de mistura de quatro ondas degeneradas. Com isso concluímos que dispomos de um sistema que é inteiramente sensível e confiável na determinação de n_2 .

Com esse sistema realizamos medidas do coeficiente de refração não linear em vidros dopados com semicondutores comerciais fabricados pela Corning, e fabricados no Laboratório de Materiais vítreos do IFGW. Para os vidros da Corning, o coeficiente de refração não linear apresentou valores de n_2 que são até 12 vezes menores que o coeficiente não linear do CS_2 . Efeitos de absorção de dois fótons não foram observados no comprimento de onda ($1,06\mu m$) e as intensidades (até 10 GW/cm^2) estudadas. As medidas da variação de transmitância em função da intensidade apresentaram um comportamento linear, indicando que a não linearidade do material observada é devida à susceptibilidade de terceira ordem (parte real de $\chi^{(3)}$). No caso das amostras de CdTe os valores medidos foram de 1.5 à $5.1 \times 10^{-14}\text{ cm}^2/W$. Em todas as amostras de CdTe estudadas foram observados efeitos de absorção de dois fótons. As medidas de variação de transmitância em função da intensidade para as amostras tratadas a $580^\circ C$ por 15min e $560^\circ C$ por 180min não apresentaram um comportamento linear característico

de não linearidades cúbicas em altas intensidades, mas um comportamento que nos leva a crer ser devido a não linearidades de ordem superior, causado por portadores de carga gerados pela absorção de dois fótons, e que neste caso não linearidades de quinta ordem $\chi^{(5)}$ ficam significante. Para as amostras tratadas a $580^{\circ}C$ por 50min e $560^{\circ}C$ por 40min apresentaram apenas contribuições de terceira ordem. A observação mais importante a ser feita acerca destes materiais é que eles apresentaram os valores mais altos de n_2 até hoje encontrado na literatura em vidros no comprimento de onda aqui estudado, indicando que estes vidros são potencialmente interessantes para aplicações em dispositivos ópticos

Finalmente, como perspectiva de trabalhos subsequente, temos o estudo de várias famílias de vidros dopados com $CdTe_xS_{1-x}$, para várias composições de enxofre (x variando de 0 a 1) para verificação de como o índice de refração se altera com a variação da estequiometria do composto, e conseqüentemente com a energia do gap do material. Já foram iniciadas medidas do coeficiente de refração não linear em polímeros. Pretendemos também fazer medidas em $1.5\mu m$ (que é um comprimento de onda de interesse em telecomunicações).