

3 Óptica Não-linear

A óptica não-linear está associada aos fenômenos ópticos que surgem devido à interação não-linear da luz com a matéria. Estes fenômenos somente são observados quando usamos luz intensa no material. O estudo da óptica não-linear tem aumentado o nosso conhecimento a respeito da interação da luz com a matéria, como também uma mudança na tecnologia, permitindo a criação de dispositivos ópticos não-lineares. Nesta seção faremos uma ligeira introdução sobre a óptica não-linear, como uma breve descrição da não-linearidade de terceira ordem. Será abordada a técnica Z-scan capaz de medir as propriedades ópticas não-lineares de terceira ordem.

3.1. Não-linearidade de terceira ordem

Na presente seção será abordada uma breve descrição do **efeito não-linear de 3º ordem** que surge como um resultado da interação da luz com a matéria. Este efeito é aquele no qual as propriedades ópticas de refração e absorção são dependentes da intensidade do feixe incidente. Quando o campo elétrico interage com um material, uma polarização é induzida. Esta polarização está relacionada com o surgimento de momentos de dipolos elétricos devido à existência de partículas carregadas. A polarização \mathbf{P} induzida num material depende da intensidade do campo elétrico \mathbf{E} da radiação incidente. Quando a intensidade do campo aplicado é baixa, a polarização varia linearmente com o campo elétrico:

$$P_L(t) = \varepsilon_o \chi^{(1)} E(t) \quad (2.62)$$

onde ε_o é a permissividade elétrica do vácuo e $\chi^{(1)}$ é a **susceptibilidade linear do meio**. A susceptibilidade linear de 1º ordem é responsável pelos efeitos ópticos lineares como refração e absorção. Em um meio isotrópico, a permissividade elétrica $\varepsilon(\omega)$ e a susceptibilidade estão relacionadas por:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_o (1 + \chi^{(1)}(\omega)) \quad (2.63)$$

Neste meio, o **índice de refração** $n(\omega)$ descreve a resposta óptica do meio à propagação do feixe e está associado à susceptibilidade elétrica por:

$$n^2(\omega) = \varepsilon(\omega) = \varepsilon_o (1 + \chi^{(1)}(\omega)) \quad (2.64)$$

O índice de refração pode apresentar uma componente real e imaginária, isto é:

$$n = n_R + n_{Im} \quad (2.65)$$

onde a parte real do índice de refração determina a refração e o espalhamento, enquanto que a parte imaginária está associada à absorção da luz.

$$\alpha = 2n_{\text{lm}} \frac{W}{c} \quad (2.66)$$

Porém, se a radiação incidente for de alta intensidade (como por exemplo, emitida por um laser), a resposta do meio torna-se não-linear com o campo elétrico aplicado. Desta forma, surge uma **polarização não-linear** $P_{NL}(t)$ dependente do campo E :

$$P_{NL}(t) = \varepsilon_o [\chi^{(2)} E(t) + \chi^{(3)} E(t) + \dots + \chi^{(n)} E(t)] \quad (2.67)$$

onde $\chi^{(2)}$ e $\chi^{(3)}$ são as susceptibilidades de 2° ordem e 3° ordem respectivamente. No caso em que não há dispersão ou perdas, as susceptibilidades são números escalares e reais. Porém, se levarmos em conta a natureza tensorial do fenômeno, a expressão geral para a polarização não-linear fica:

$$P_{NL}(t) = \varepsilon_o [\chi^{(2)} : E(t)E(t) + \chi^{(3)} : E(t)E(t)E(t) + \dots] \quad (2.68)$$

Vamos somar a equação (2.62) com a (2.68) para obter a polarização total induzida devido à interação do feixe de alta intensidade.

$$P_T(t) = P_L(t) + P_{NL}(t)$$

$$P_T(t) = \varepsilon_o [\chi^{(1)} . E(t) + \chi^{(2)} : E(t)E(t) + \chi^{(3)} : E(t)E(t)E(t) + \dots], \quad (2.69)$$

onde $\chi^{(n)}$ com $n = 1, 2, 3, \dots$ São tensores de n-ésima ordem e representam as susceptibilidades de ordem n. A não-linearidade óptica de 3° ordem é uma propriedade encontrada em qualquer material, independentemente da sua simetria espacial. No caso em que o material é **centro-simétrico** as susceptibilidades não-lineares pares são nulas por razões de simetria³¹. A não-linearidade de 3° ordem gera um efeito dependente da intensidade no índice de refração. O índice de refração pode ser reescrito de forma a contar o termo linear e não-linear:

$$n = n_o + n_2 I \quad , \quad (2.70)$$

onde n_o é o índice de refração do meio na ausência de um campo de luz intensa e n_2 o **índice de refração não-linear** dado por:

$$n_2 = \left(\frac{2\pi}{n_o}\right)^2 \text{Re}(\chi^{(3)}) \quad , \quad (2.71)$$

onde $\chi^{(3)}$ é a susceptibilidade de 3º ordem. A intensidade I da radiação laser é dada por:

$$I = 2n_o \varepsilon_0 c |E(w)|^2 \quad . \quad (2.72)$$

A parte da polarização não-linear que influencia na propagação do feixe é:

$$P_{NL}(w) = 3\varepsilon_0 \chi^{(3)}(w) |E(w)|^2 E(w) \quad (2.73)$$

Adicionando a contribuição da parte linear na polarização, obteremos a polarização total que é dada por:

$$P(w) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(w) E(w) + 3\varepsilon_0 \chi^{(3)}(w) |E(w)|^2 E(w) = \varepsilon_0 \chi_{eff} E(w) \quad (2.74)$$

onde $\chi_{eff} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E(w)|^2$ (2.75) é a **susceptibilidade efetiva do meio**.

Para determinar a relação direta entre a susceptibilidade de 3º ordem com o índice de refração não-linear, utilizaremos a seguinte equação³¹:

$$n_2 = 1 + \chi_{eff} \quad (2.76)$$

Se substituirmos a equação (2.70) no lado esquerdo da equação (2.76) e a equação (2.75) sobre o lado direito da equação (2.76) veremos que:

$$[n_0 + 2n_2 n_0 \epsilon_0 c |E(w)|^2]^2 = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E(w)|^2 \quad (2.77)$$

Expandindo a expressão acima e mantendo os termos até a ordem de $|E(w)|^2$, obteremos os índices de refração linear e não-linear:

$$n_0 = (1 + \chi^{(1)})^{1/2} \quad (2.78)$$

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 \epsilon_0 c} \text{Re}(\chi^{(3)}) \quad (2.79)$$

Sabendo que em regimes onda há feixes com altas intensidades o índice de absorção, assim como o índice de refração n , tem uma dependência com a intensidade dada por $\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 I$. Podemos seguir os mesmos passos adotados acima para obter a expressão da absorção não-linear:

$$\alpha_2 = \frac{3w}{2n_0^2 \epsilon_0 c^2} \text{Im}(\chi^{(3)}) \quad (2.80)$$

Na presente dissertação estaremos preocupados na determinação do índice de refração não-linear assim como o coeficiente de absorção não-linear antes e depois do aquecimento de filmes finos de Au para 3 espessuras específicas (6nm, 10nm e 20nm). Para isto, utilizaremos a técnica Z-scan que será abordada na seção seguinte.

3.2. Técnica Z-scan

A técnica de varredura Z permite medir efeitos de refração não-linear (n_2) e absorção não-linear (α_2). Esta técnica vem sendo amplamente utilizada para caracterizar propriedades ópticas não-lineares em nanopartículas metálicas. Um feixe com perfil gaussiano, ao se propagar por um meio não-linear modifica o índice de refração do material. Em 1990 Sheik-Bahae e colegas realizaram um experimento objetivando determinar de forma simultânea, o n_2 e α_2 utilizando um feixe único³². O experimento consiste em transladar uma amostra perpendicularmente através de um feixe de laser focalizado e analisar o feixe transmitido para cada posição da amostra em relação ao foco (figura 12).

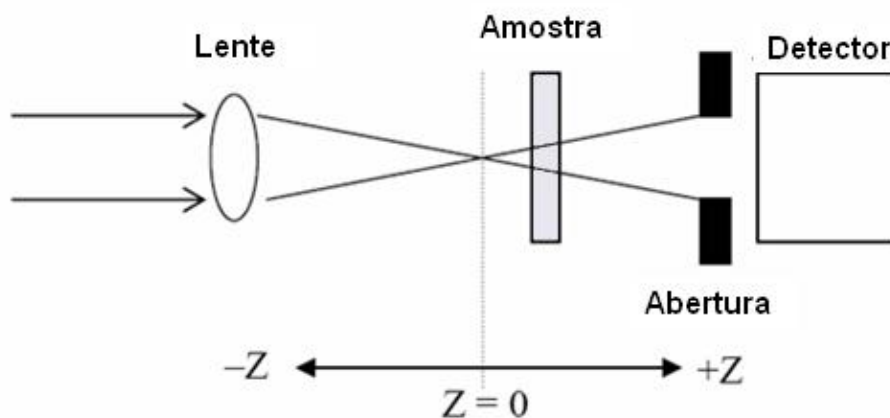


Figura 12: Esquema ilustrativo do experimento proposto por Sheik Bahae para medir o índice de refração não-linear e a absorção não-linear³³.

Esta técnica ficou conhecida como varredura Z (Z-Scan). No percurso do feixe, em uma região longe do foco, coloca-se um fotodetector posicionado na frente de uma íris. O fotodetector detecta a energia transmitida através da íris em função da posição da amostra (figura 13).

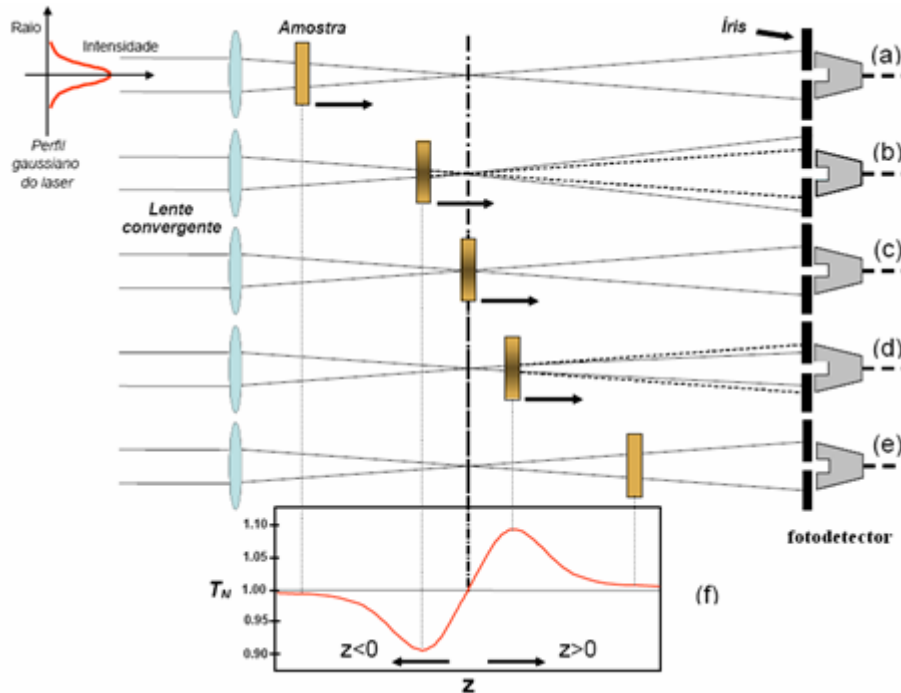


Figura 13: Esquema ilustrativo mostrando a obtenção da transmitância em função da posição de varredura Z^{33} .

Observando a figura 13 vemos que é possível obter o gráfico da transmitância em função da posição Z . Por convenção adotaremos que a parte negativa de Z fica ao lado esquerdo do foco do feixe. A relação entre o raio de abertura da íris r_a , e a transmitância, que chamaremos de S , é dada por:

$$S = 1 - \exp\left(\frac{-2r_a^2}{w_a^2}\right), \text{ onde } w_a \text{ é a cintura do feixe na posição da íris. Dois tipos}$$

de medidas são realizados nesta configuração. Uma em que a fenda está totalmente aberta ($S=1$) e outra em que a fenda está parcialmente fechada ($S<1$).

A medida que a amostra aproxima-se do foco do feixe, dois efeitos não-lineares ocorrem: a **absorção saturada** ou a **absorção multifotônica**. A absorção saturada ocorre quando a intensidade da luz incidente sobre a amostra muda a população dos estados excitados e do estado fundamental, de modo a reduzir a probabilidade de absorção de novos fótons. O aumento da transmitância do feixe pela amostra, devido ao efeito de absorção saturada, leva a um aumento na intensidade medida pelo fotodetector. Este efeito aparece como um pico na curva de transmitância versus posição Z (figura 14) e o aumento da transmitância do feixe reflete na diminuição do coeficiente de absorção do material, portanto, a

variação do coeficiente de absorção é negativa. O efeito de absorção multifotônica é o inverso, de modo que a probabilidade de absorver novos fótons aumenta devido ao aumento da intensidade que interage com o meio. O aumento da absorção leva a uma diminuição da luz transmitida. Em vez de um pico, veremos um vale na curva de transmitância versus posição Z (figura 15). A diminuição da transmitância está associada com o aumento da absorção resultante de um $\alpha_2 > 0$.

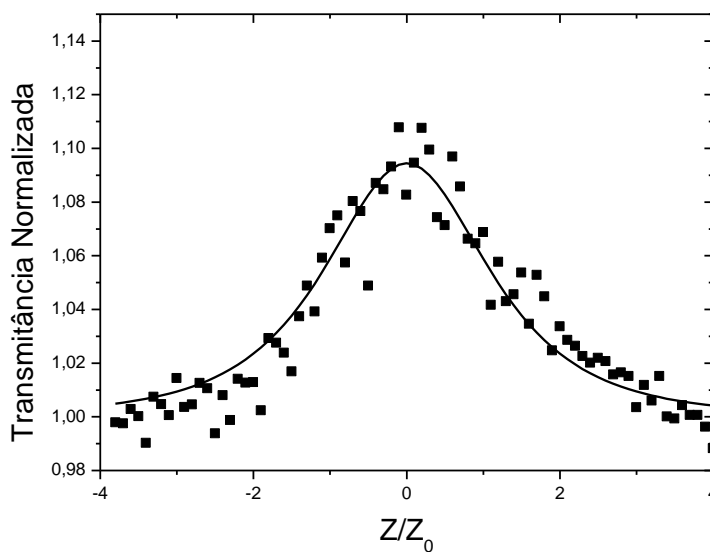


Figura 14: Gráfico da transmitância normalizada em função da varredura Z do filme de ouro antes do aquecimento a 600°C por 4 minutos.

Além disso, o aumento da transmitância reflete em um aumento no valor do índice de refração não-linear. Analogamente a redução da transmitância diminui o valor do índice de refração não-linear. Esta dependência pode ser visualizada na equação abaixo:

$$n_2 = \frac{\Delta T_{pv} \lambda}{2\pi \cdot 0,406 \cdot (1-S)^{0,25} \cdot I_0 \cdot L} \quad , \quad (2.81)$$

onde ΔT_{pv} é a variação da transmitância pico vale, λ o comprimento de onda da radiação laser, L a espessura da amostra e I_0 é a intensidade de pico do laser no foco.

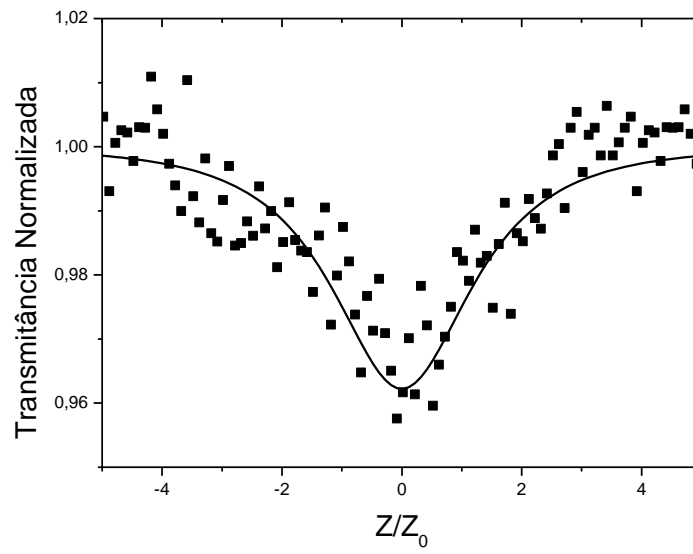


Figura 15: Gráfico da transmitância normalizada em função da varredura Z do filme de ouro depois do aquecimento a 600°C por 4 minutos.