

# FI255 - Tópicos de Óptica e Fotônica II

## Óptica Não-Linear

2<sup>a</sup>. aula

UNICAMP - 9 de março de 2018

# Breve revisão da 1ª. Aula

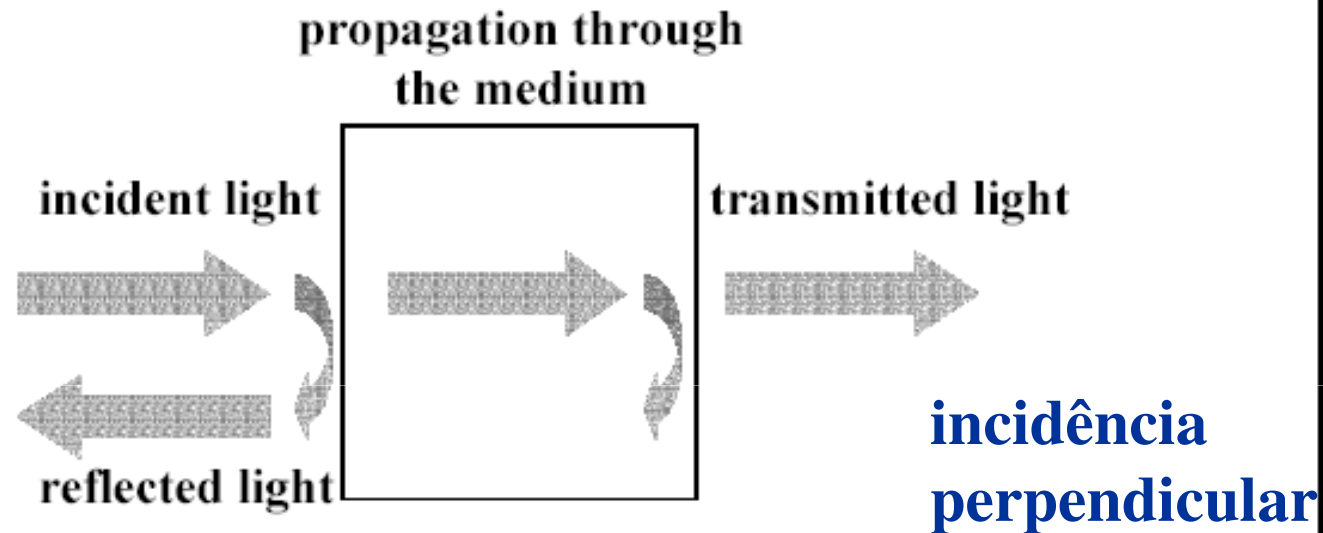
- Como descrever a absorção óptica, a refração, o espalhamento de luz e a luminescência?
- Qual a origem do índice de refração?
- Como a luz se propaga através de meios transparentes e absorvedores?
- O que muda (propriedades) quando se estuda diferentes tipos de sistemas físicos (sólidos, líquidos, gases)?
- Espectroscopias e algumas aplicações práticas

**Interação Radiação – Matéria**

**Óptica Linear e Não Linear**

**Regimes – perturbativo e não-perturbativo**

## Optical coefficients

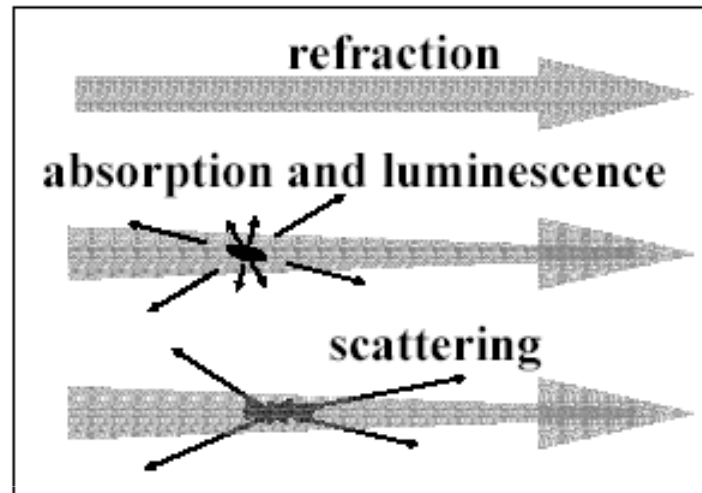


**Figure 1.1: Optical coefficients**

- Reflectivity = reflected / incident power
- Transmissivity = transmitted / incident power
- $T + R = 1$  if medium is transparent

$$R = \left| \frac{n - 1}{n + 1} \right|^2$$

Sílica:  $n = 1.5$       $R = \left| \frac{1.5 - 1}{1.5 + 1} \right|^2 = \left| \frac{1}{5} \right|^2 = 4\%$



## Propagation

Figure 1.2:  
Propagation of  
light through a  
medium

- Velocity  $v = c/n$ ,  $n$  is the **refractive index**
- $I(z) = I_0 \exp(-\alpha z)$ ,  $\alpha$  is the **absorption coefficient**
- $T = (1-R_1) \exp(-\alpha L) (1-R_2)$
- **Luminescence** : re-emission at lower frequency
- **scattering**: *elastic*- change of direction  
*inelastic* - change of direction and frequency

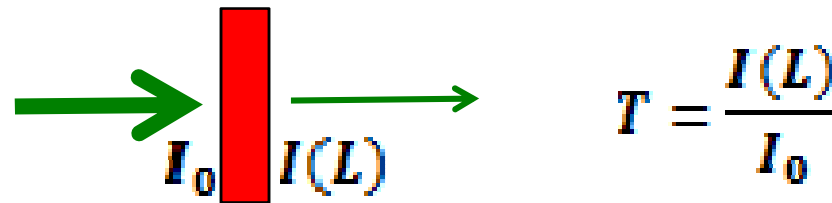
## Absorção

Se um feixe está propagando na direção  $z$  e a intensidade (**potência óptica por unidade de área**) na posição  $z$  for  $I(z)$ , a variação de intensidade numa fatia de espessura  $dz$  é dada por

$$dI = -\alpha_0 dz \times I(z)$$

portanto:

$$I(z) = I_0 \exp(-\alpha_0 z) \quad (\text{Lei de Beer})$$

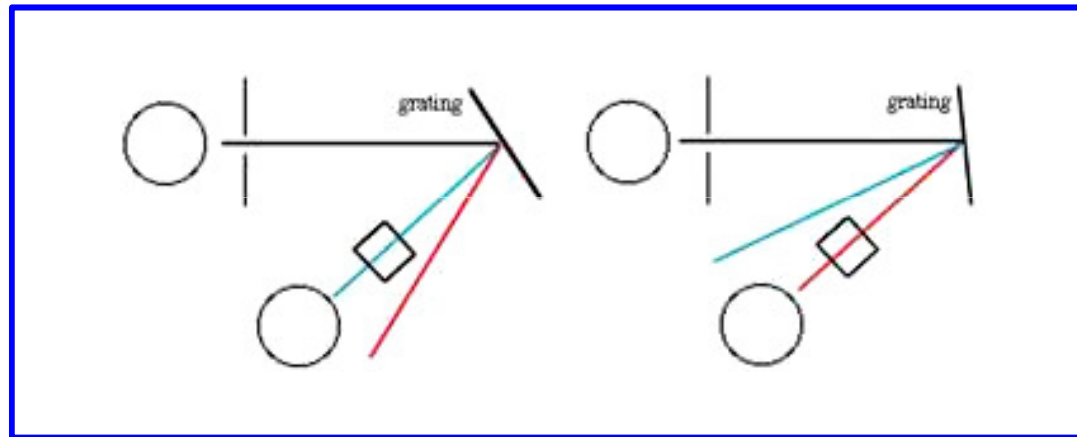


**Transmissividade** de um meio absorvedor de espessura  $L$ :

$$T = (1-R_1) \exp(-\alpha_0 L) (1-R_2)$$

$R_1$  e  $R_2$  são as refletividades nas duas faces do meio

A absorção óptica de um meio pode ser quantificada em termos da **densidade óptica** (O.D.) ou **absorbância**



$$\text{O.D.} = -\log_{10} [ I(L)/I_0 ] = 0.434 \alpha_0 L$$

# Índice de refração complexo e constante dielétrica

$$\tilde{n} = n_0 + i\kappa$$

$\kappa$  é o **coeficiente de extinção**.

Relação entre  $\kappa$  e  $\alpha_0$  :

Onda plana propagando na direção z.

$$E(z, t) = E_0 \exp i(kz - \omega t)$$

Meio absorvedor

$$k = \tilde{n}\omega/c = (n_0 + i\kappa)\omega/c$$

Substituindo na expressão para o campo elétrico vemos que o coeficiente de extinção introduz um decaimento exponencial da amplitude do campo no meio.

Então a intensidade óptica,  $I \propto E^*E$ , decai com o expoente  $2\kappa\omega/c$ .

Comparando com a lei de Beer obtemos:

$$\alpha_0 = 2\kappa\omega/c$$



Num meio absorvedor a constante dielétrica é uma quantidade complexa

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + i \varepsilon_2$$

Por analogia definimos:

$$\tilde{n}^2 = \varepsilon_1 + i \varepsilon_2$$

Num **meio fracamente absorvedor** obtemos:

$$n_0 = \sqrt{\varepsilon_1}$$

$$\kappa = \varepsilon_2 / 2n_0$$

Num material transparente  $\varepsilon_2$  é muito pequeno e, portanto,  $n_0$  e  $\varepsilon$  são considerados **reais**.

# 2<sup>a</sup>. aula

# Interação átomo-luz

Modelo de Bohr

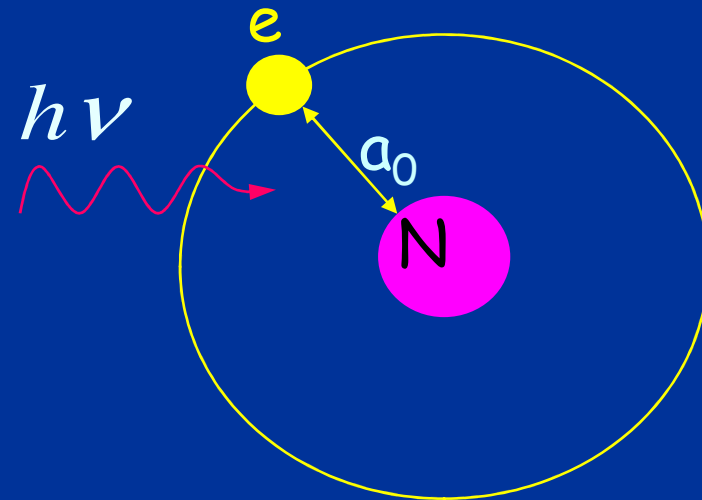
campo intra atômico

$$E_{at} = e / a_0^2$$

$$a_0 = \hbar^2 / m e^2$$

$$E_{at} \approx 2 \times 10^{-7} \text{ esu}$$

$$3 \times 10^8 \text{ V/cm}$$



## Ionização ocorre envolvendo os elétrons mais externos do átomo ou molécula

Rigidez dielétrica do ar  
ao nível do mar:



Aprox.  $3 \times 10^4$  V/cm

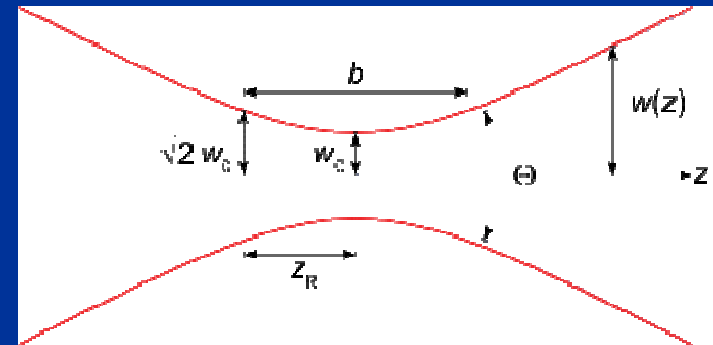
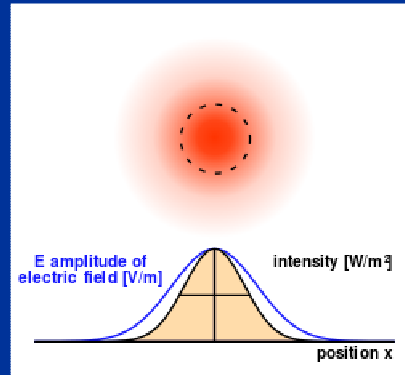
depende da umidade



Entre 20 e 30 kV

Gap: 1 mm

$$\frac{20 \times 10^3}{0.1} = 2 \times 10^5 \text{ V/cm}$$



$$P = 5 \text{ mW}; w_0 = 100 \times 10^{-6} \text{ m}$$

$$I = \frac{P}{\text{área}} = \frac{P}{\pi w_0^2}$$

$$I = 2n_0 \left( \frac{\epsilon_0}{\mu_0} \right)^{0.5} |E|^2$$

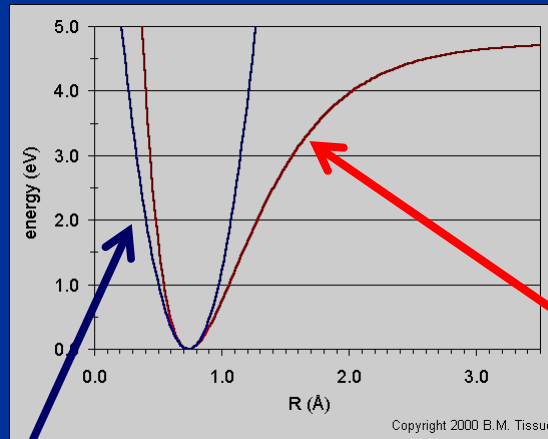
$$|E| = 55 \text{ V/cm}$$

Laser pulsado  
300 kW

$$|E| = 4.4 \times 10^4 \text{ V/cm}$$



# Átomo como um oscilador - muito abaixo do limite de ionização



Oscilador  
harmônico

Oscilador  
anarmônico

Energia potencial do elétron

$$U(x) = \frac{1}{2}m_0\omega_0^2x^2 + \frac{1}{3}m_0K_ax^3 + \frac{1}{4}m_0K_bx^4 + \dots \quad \omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m_0}}$$

Força restauradora:

$$F(x) = -\frac{dU}{dx} = -m_0\omega_0^2x - m_0K_ax^2 + \dots$$

## Átomo como oscilador clássico

### Modelo uni-dimensional

$$F = m_0 \frac{d^2 x}{dt^2} = - \frac{dU}{dx}$$

$$U = \frac{1}{2} m_0 \omega_0^2 x^2$$

$$\text{Força de "dissipação"} = -\gamma \frac{dx}{dt}$$

$$m_0 \frac{d^2 x}{dt^2} = -m_0 \omega_0^2 x - \gamma \frac{dx}{dt}$$

$$m_0 \frac{d^2 x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + m_0 \omega_0 x = 0$$

Força externa devida ao campo óptico:

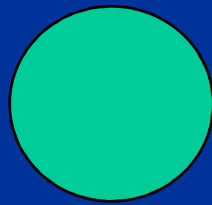
$$F_{elet} = -eE(t)$$

$$m_0 \frac{d^2 x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + m_0 \omega_0 x = -eE(t)$$

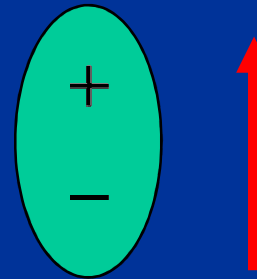
$$E(t) = E_0 \cos \omega t = \frac{1}{2} E_0 (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$$

$$x(\omega, t) = \frac{1}{2} (X e^{i\omega t} + c.c) \quad X = -\frac{eE_0}{m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\gamma\omega}$$





$$E = 0$$



$$E \neq 0$$

Momento de  
dipolo induzido

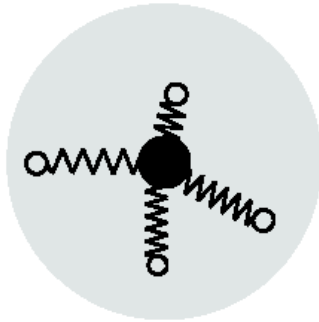
$$p(\omega, t) = -ex(\omega, t)$$

Polarização

$$P(\omega, t) = -Nex(\omega, t)$$

$N$  é o número de dipolos por unidade de volume

# Electron oscillators



**Figure 2.1:** classical model of an atom. Electrons are bound to the nucleus by springs which determine the natural frequencies

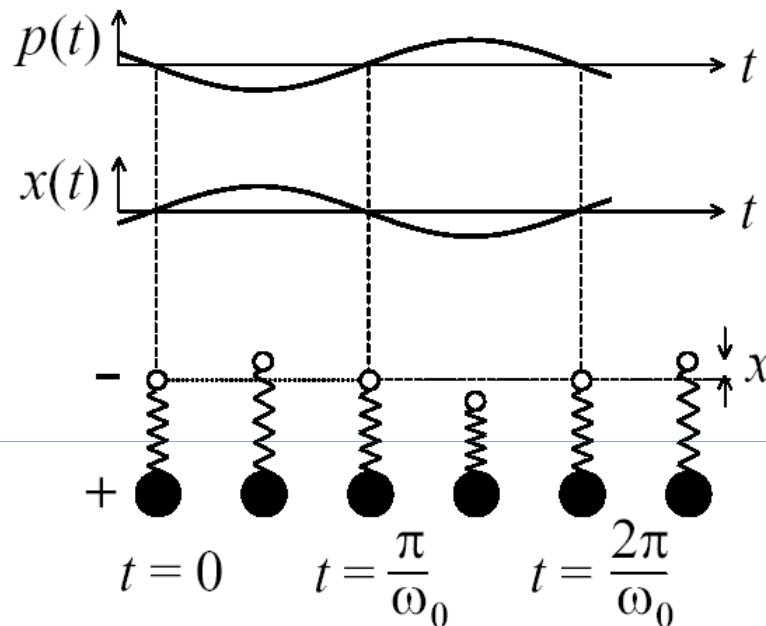
## Bound electrons (insulators, intrinsic semiconductors)

- restoring force for small displacements  $F = -k x$   
 $\Rightarrow$  natural resonant frequency  $\omega_0 = (k/m)^{1/2}$
- $\omega_0$  lies in the near infrared / visible / UV spectral regions

## Free electrons (metals, doped insulators)

- $k = 0 \Rightarrow \omega_0 = 0$

# Dipole oscillators



$$\begin{aligned} p(t) &= -e x(t) \\ \mathbf{P} &= N \mathbf{p} \\ \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_r \epsilon_0 \mathbf{E} \end{aligned}$$

## Light emission

- natural oscillations at  $\omega_0$  cause radiation at  $\omega_0$
- “Hertzian dipoles”

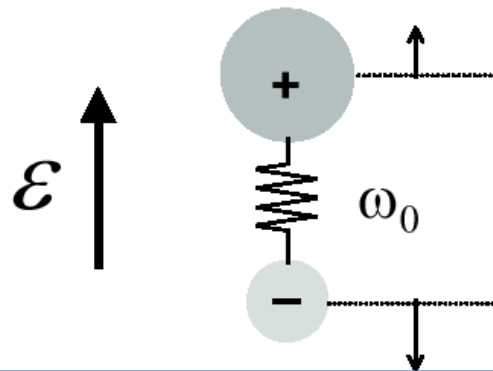
## Refractive index

- light  $\equiv$  AC electric field at  $\omega$  ( $\neq \omega_0$ )
- forced oscillations at  $\omega$
- atoms lag on the driving field and re-radiate in phase

## Absorption

- light frequency =  $\omega_0$
- resonance phenomenon
- atoms absorb energy from the light beam

# Vibrational oscillators



polar molecule

**Dipolo oscillante no tempo**

## Molecular physics

IR absorption at resonant frequency of the vibrational modes

## Ionic crystals

IR absorption at frequency of optically-active lattice vibrations  
i.e. the transverse optic (TO) phonons

$$P_R = -\frac{Ne^2}{2m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\gamma\omega} E_0$$

$$P = P_{NR} + P_R$$

$$D = \epsilon_0 E + P$$

$$D = \epsilon_0 E + \epsilon_0 \chi E + P_R$$

$$D = \epsilon_0 \epsilon_r E$$

$$\epsilon_r = 1 + \chi + \frac{Ne^2}{2m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\gamma\omega} E_0$$

$$\epsilon_1(\omega) = 1 + \chi + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}$$

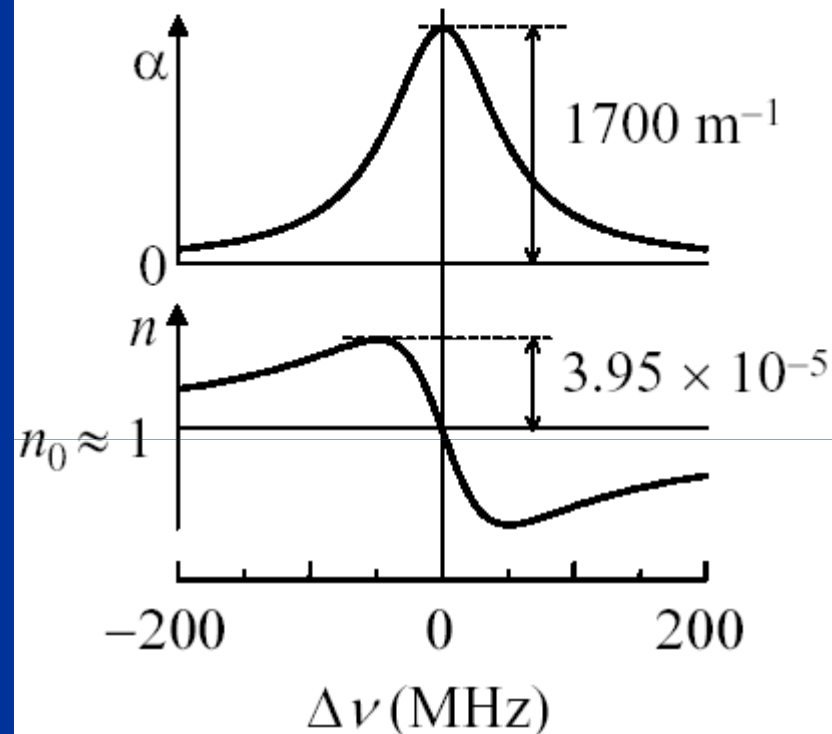
$$\epsilon_2(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}.$$

$$\tilde{n} = n_0 + i\kappa \qquad \alpha_0 = 2\kappa\omega/c \qquad \tilde{n}^2 = \epsilon_1 + i\epsilon_2$$

$$n_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} \{ \epsilon_1 + (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} \}^{1/2}$$

$$\kappa = \frac{1}{\sqrt{2}} \{ -\epsilon_1 + (\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)^{1/2} \}^{1/2}$$

## Example: atomic absorption line



### Lorentzian lineshape

$$\alpha(\omega) = \alpha_0 \frac{2\gamma^2}{4\Delta\omega^2 + \gamma^2}$$

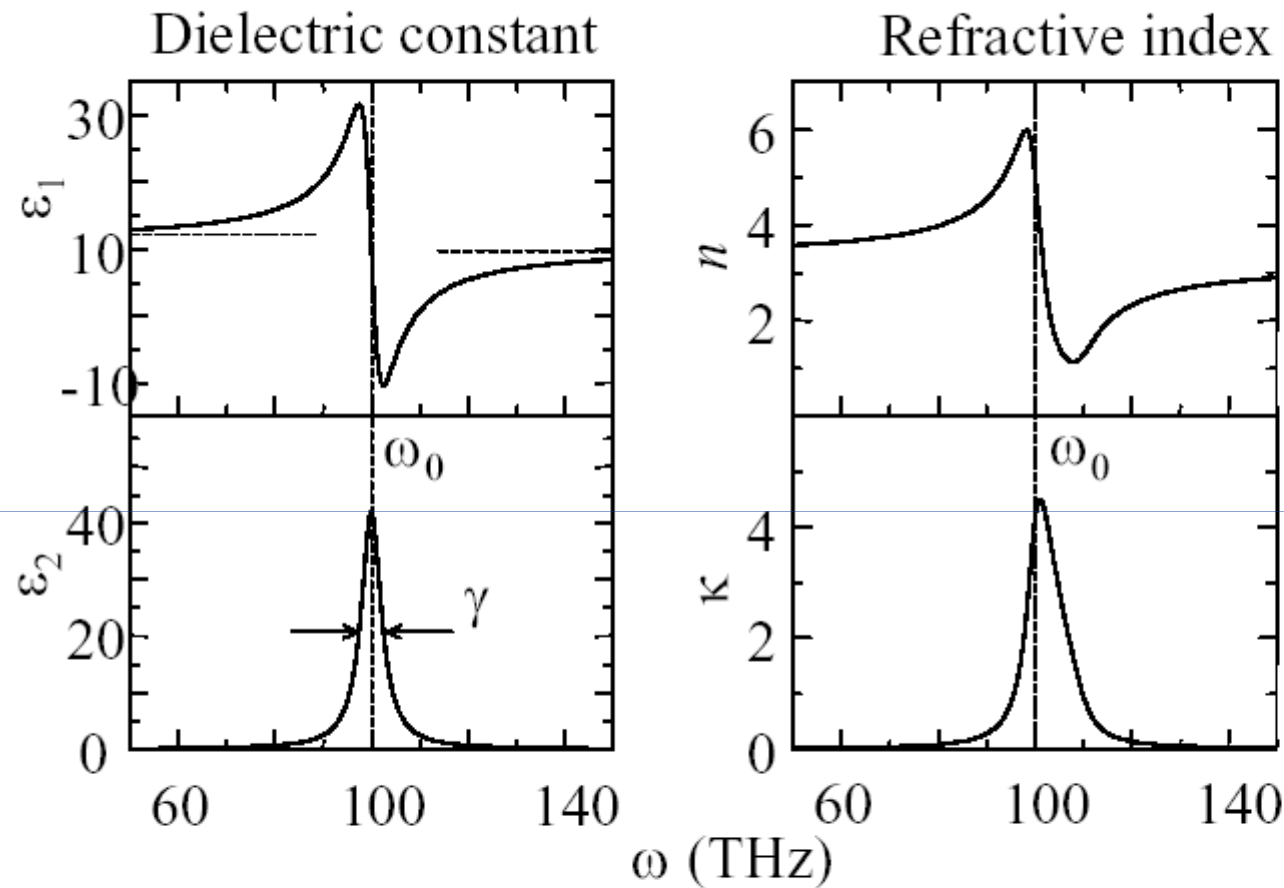
$$n(\omega) = n_0 + \Delta n \frac{4\gamma\Delta\omega}{4\Delta\omega^2 + \gamma^2}$$

$$\Delta\omega = \omega - \omega_0$$

**Figure 2.5**

- sodium gas,  $N = 1 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  (low density  $\Rightarrow n_0 \approx 1$ )
- $D_2$  line at 589.0 nm, hyperfine component with FWHM = 100 MHz

# Lorentz oscillators



**Figure 2.4**

Lorentz oscillator with

$$\omega_0 = 100 \text{ THz}$$

$$\gamma = 5 \text{ THz}$$

$$\epsilon_{\text{st}} = 12.1$$

$$\epsilon_{\infty} = 10$$

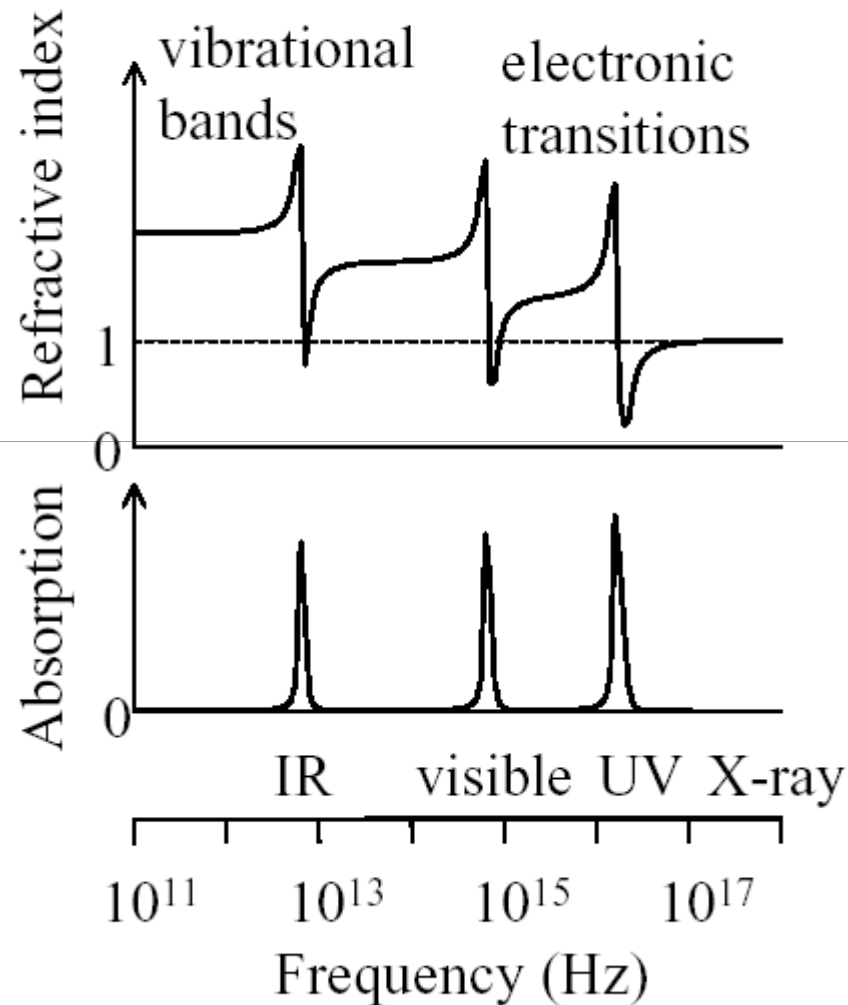
$$1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$$

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$

- absorption at  $\omega_0$
- FWHM =  $\gamma$



# Multiple resonances



**Figure 2.6**

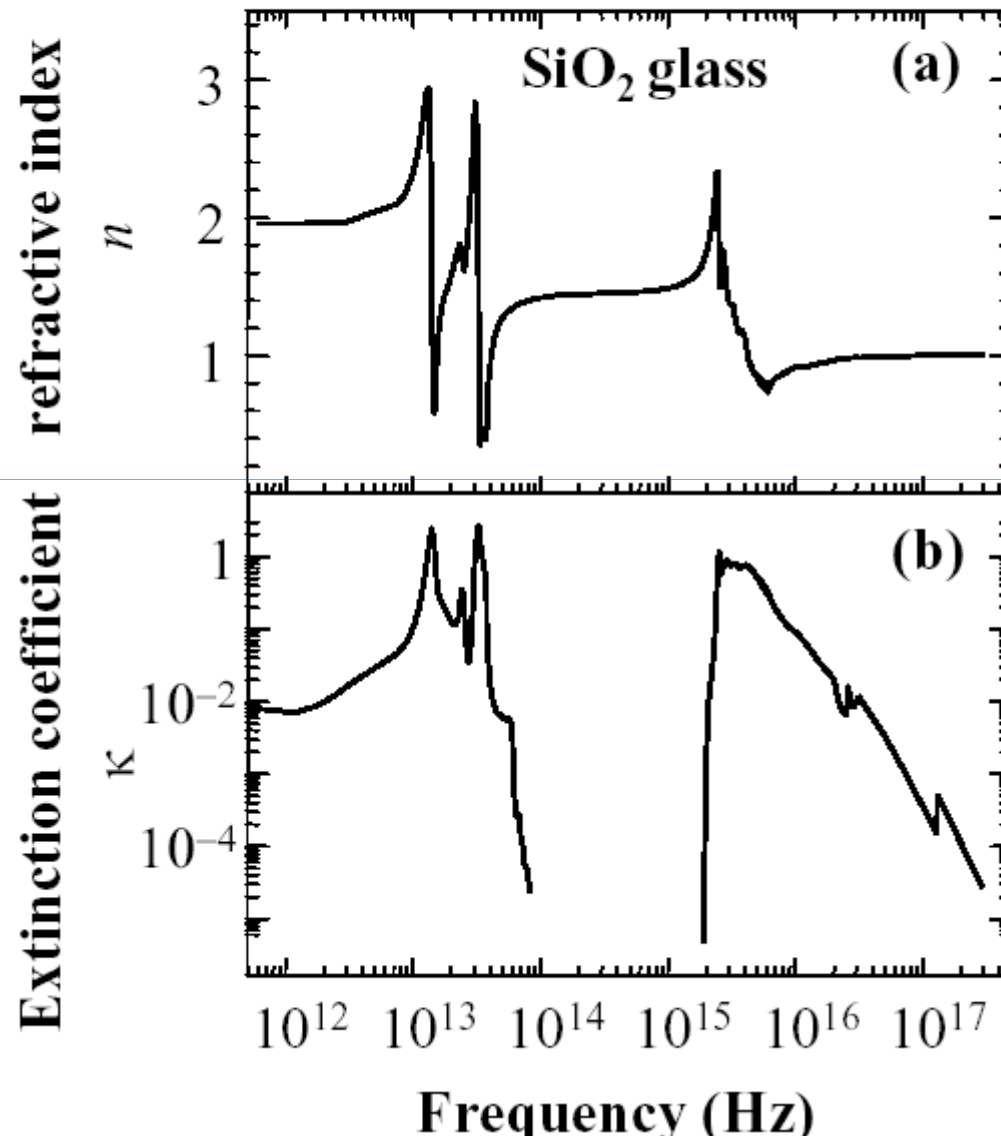
resonant frequencies:

phonons	IR
valence electrons	vis/UV
core electrons	X-ray

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \sum_j \frac{f_j}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\gamma_j \omega)}$$

- $f_j$  = **oscillator strength**
- classical theory  $\Rightarrow f_j = 1$
- quantum theory  $\Rightarrow f_j$  determined by transition probability

## Example: SiO<sub>2</sub> glass

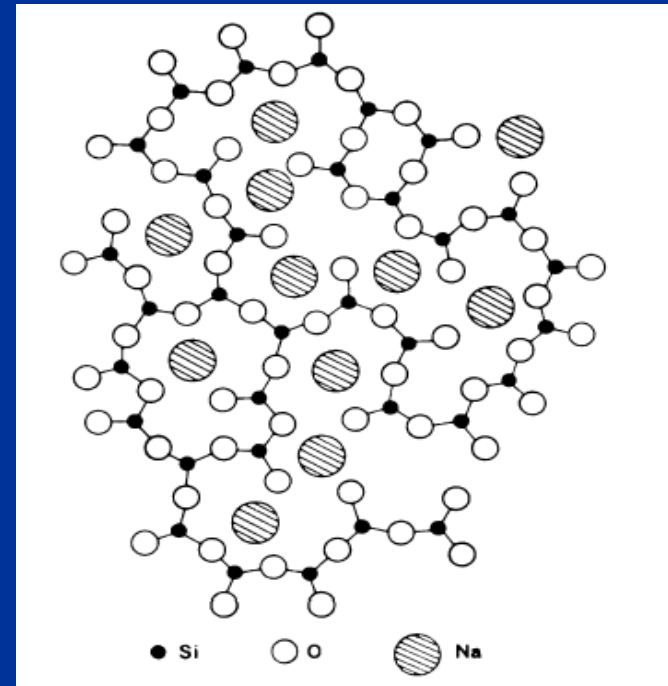


**Figure 2.7**  
real and imaginary  
part of the refractive  
index for SiO<sub>2</sub> glass

Transparency region  
between  
phonon frequencies in IR  
and band gap in UV

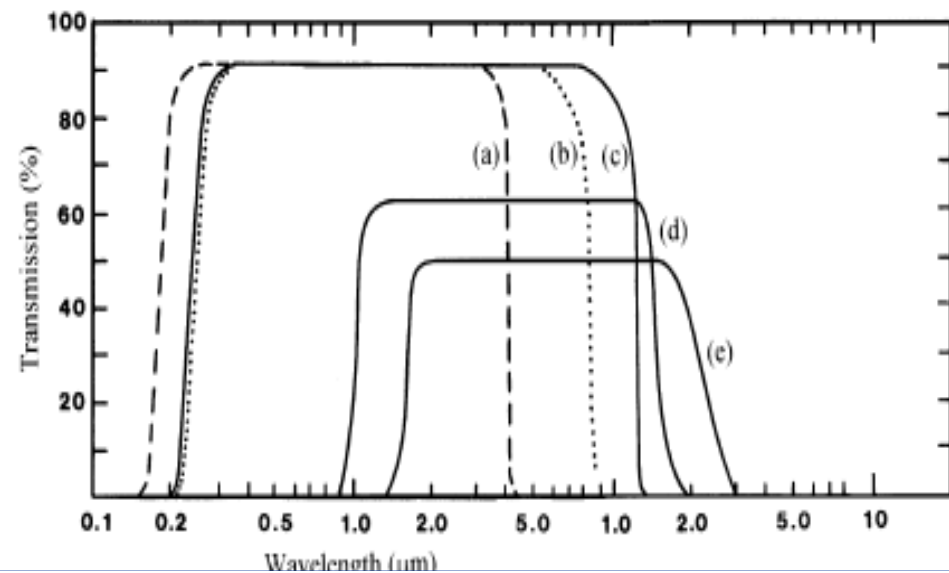
**Table 1.3** Refractive index of synthetic fused silica versus wavelength. After [2].

Wavelength (nm)	Refractive index
213.9	1.53430
239.9	1.51336
275.3	1.49591
334.2	1.47977
404.7	1.46962
467.8	1.46429
508.6	1.46186
546.1	1.46008
632.8	1.45702
706.5	1.45515
780.0	1.45367
1060	1.44968
1395	1.44583
1530	1.44427
1970	1.43853
2325	1.43293

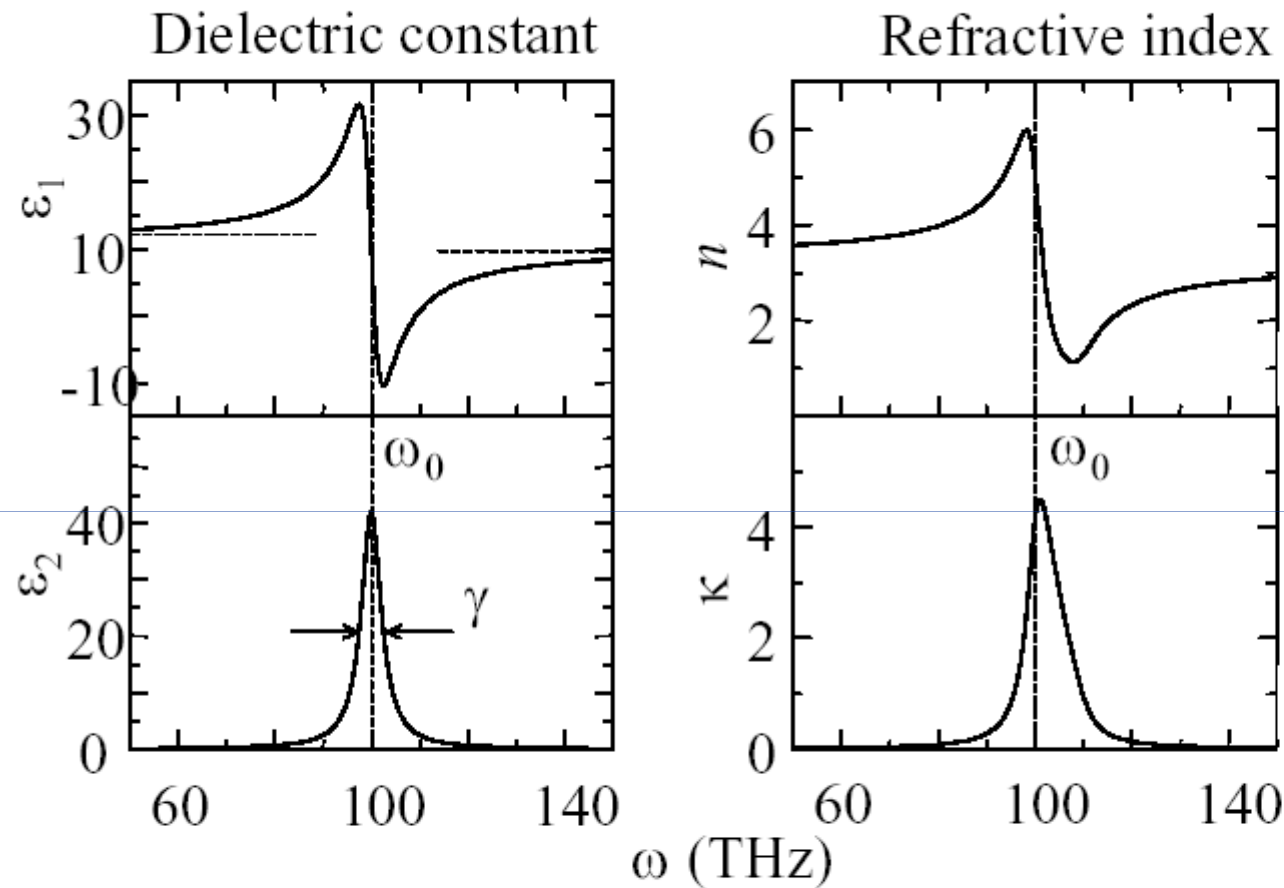


**SiO<sub>2</sub>**

sílica



# Lorentz oscillators



**Figure 2.4**

Lorentz oscillator with

$$\omega_0 = 100 \text{ THz}$$

$$\gamma = 5 \text{ THz}$$

$$\epsilon_{st} = 12.1$$

$$\epsilon_\infty = 10$$

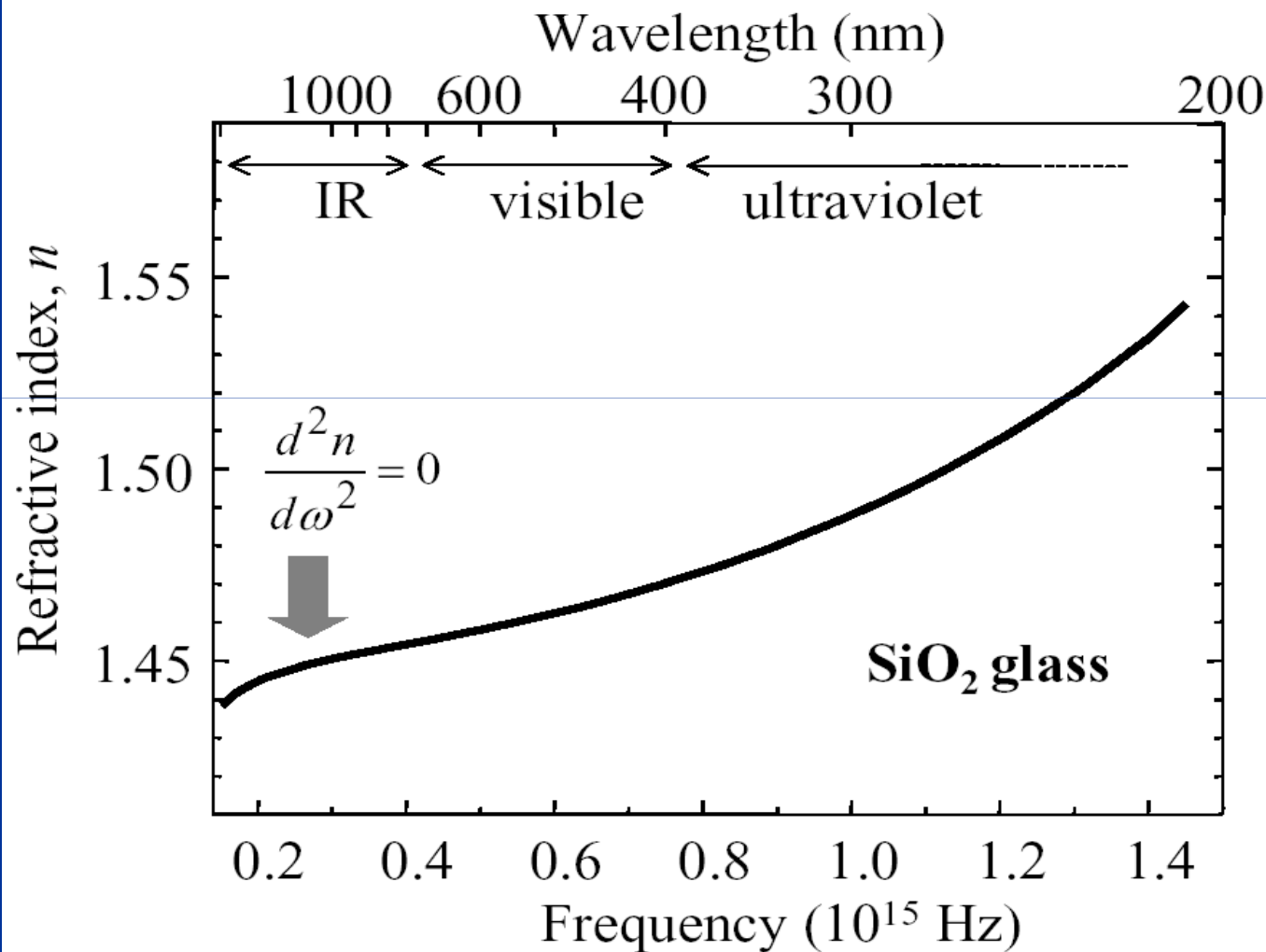
$$1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$$

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$

- absorption at  $\omega_0$
- FWHM =  $\gamma$

# Dispersion

**Figure 2.9**  
glass dispersion



- Group velocity dispersion (GVD)  $\propto \frac{d^2n}{d\omega^2}$
- GVD determines pulse spreading in optical fibres
- GVD = 0 near 1300 nm

SILICA É UM VIDRO PORTANTO A ABSORÇÃO  
NO INFRAVERMELHO É DEVIDO À MOLÉCULAS  
DE  $\text{SiO}_2$   $1,4 \times 10^{13} \text{ Hz}$  ( $21 \mu\text{m}$ )  
 $3,3 \times 10^{13} \text{ Hz}$  ( $9,1 \mu\text{m}$ )

ABSORÇÃO NO UV  $\Rightarrow$  GAP  $10 \text{ eV}$   
 $2 \times 10^{15} \text{ Hz}$  ( $150 \text{ nm}$ )

---

//

VERIFIQUE QUE O ÍNDICE DE REFRAÇÃO É  
MENOR QUE 1 PARA ALGUMAS FREQUÊNCIAS

ISTO NÃO SIGNIFICA QUE A LUZ VIAJA MAIS  
RÁPIDO QUE NO VÁCUO

---

//

NUM MEIO DISPERSIVO O PACOTE DE ONDAS  
SE PROPAGA NA VELOCIDADE DE GRUPO

$$v_g = \frac{d\omega}{dk}$$

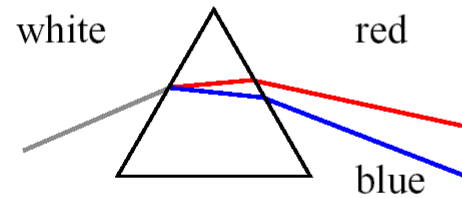
A VELOCIDADE DE FASE  
É  $v = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n}$

PORTANTO

$$v_g = v \left( 1 - \frac{k}{n} \frac{dn}{dk} \right)$$

$\frac{dn}{dk} > 0$  NA  
MAIORIA DOS  
MATERIAIS

## Dispersive prisms



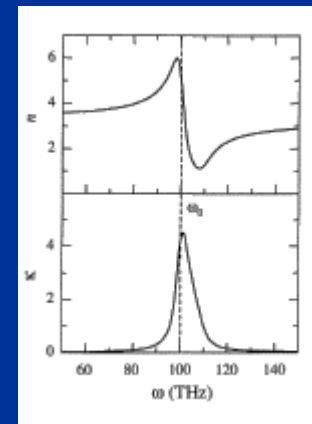
**Figure 2.10**

Dispersion of light by a prism

- NORMAL dispersion:  $n$  increase with frequency
- ANOMALOUS dispersion: occurs near resonance lines

Índice de refração

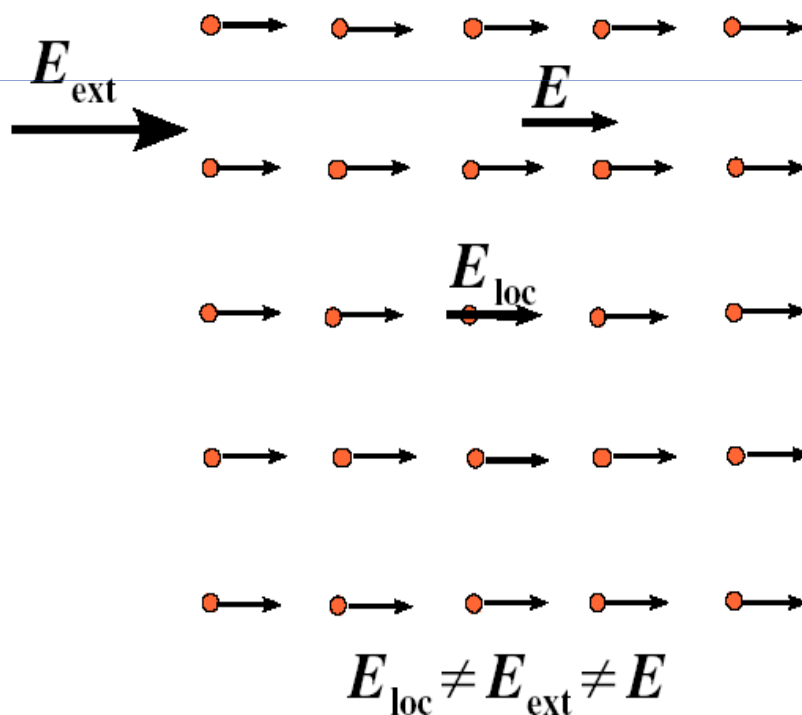
Coeficiente de absorção



# O cálculo que mostrei serve para um meio rarefeito

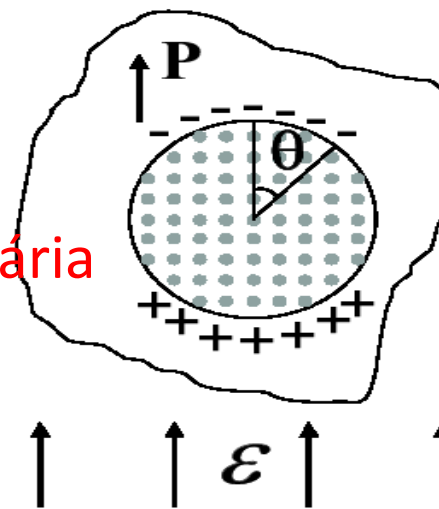
Como descrever um meio denso ?

Considere um meio homogêneo denso submetido a um campo óptico externo



constituintes ativos  
sentem o campo local

Esfera  
imaginária





$$E_{loc} = E + \frac{P}{3\epsilon_0}$$

Polarizabilidade

$$p = \epsilon_0 \alpha E_{loc} \quad \longrightarrow \quad P = Np$$

$$P = N\epsilon_0 \alpha \left( E + \frac{P}{3\epsilon_0} \right)$$

Susceptibilidade linear

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E$$

$$\chi^{(1)} = \frac{N\alpha}{1 - \frac{N\alpha}{3}}$$

$$\epsilon^{(1)} = 1 + \chi^{(1)}$$

Relação de Clausius-Mossoti

$$\frac{\epsilon^{(1)} - 1}{\epsilon^{(1)} + 2} = \frac{N\alpha}{3}$$

$$\chi^{(1)} = \frac{\epsilon^{(1)} + 2}{3} N\alpha$$



Fator de campo local

Engrandecimento da susceptibilidade linear

- Resultados experimentais demonstrando a influência do campo local sobre a resposta óptica linear e não linear

Maki et al. Phys. Rev. Lett . 68, 972 (1991)

### Análise dos efeitos de campo local em compósitos

Fischer et al. Phys. Rev. Lett. 74, 1871 (1995)

Nelson et al. Appl. Phys. Lett. 74, 2417 (1999)

### Nanocoloides

Reyna + de Araujo Adv. Opt. Photonics 9, 720 (2017)

Discutiremos uma parte deste artigo próximo ao fim do curso

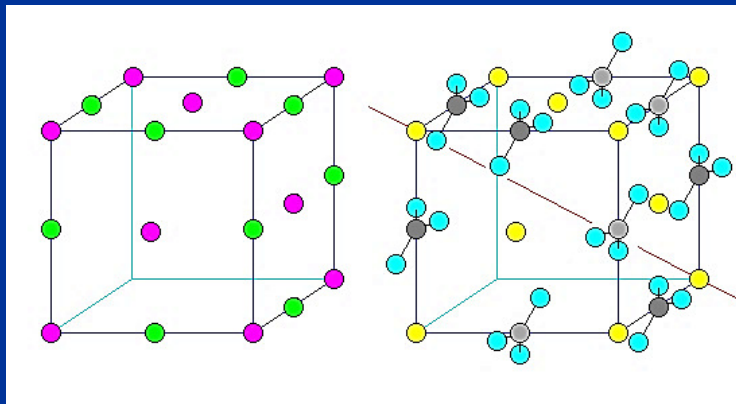
## ANISOTROPIA ÓPTICA

ÁTOMOS NUM GAZ OU LÍQUIDO NÃO TÊM DIREÇÕES  
PREFERENCIAIS SE NÃO HOUVER UMA PERTURBAÇÃO  
EXTERNA

DEVIDO À SIMETRIA DA REDE CRISTALINA OS  
SÓLIDOS PODEM APRESENTAR ANISOTROPIA ÓPTICA  
DANDO ORIGEM AO FENÔMENO DE BIRREFRINGÊNCIA

### CONSEQUÊNCIA

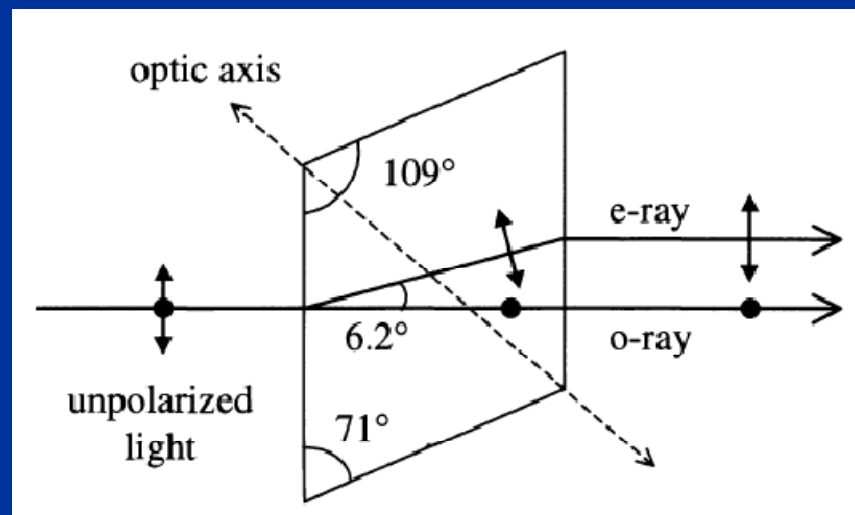
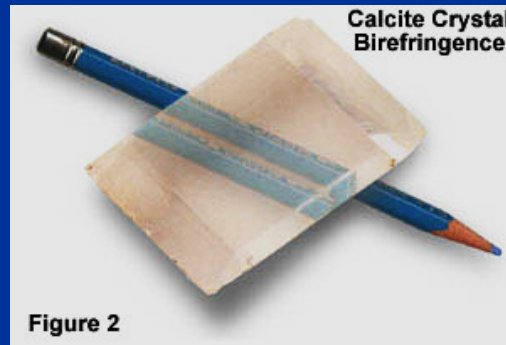
OS ÍNDICES DE REFRAÇÃO DEPENDEM DA DIREÇÃO  
DE PROPAGAÇÃO DA LUZ



Amarelo = Cálcio

Cinza = Carbono

# Dupla - refração



A SUSCEPTIBILIDADE É REPRESENTADA POR UM TENSOR

$$\vec{P} = \epsilon_0 \vec{\chi} : \vec{E}$$

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} \\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}$$

EXPRESSO EM TERMOS DOS EIXOS CRISTALINOS PRINCIPAIS E USANDO COORDENADA CARTEZIANAS

$$\vec{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{pmatrix}$$

A RELAÇÃO ENTRE AS COMPONENTES  $\chi_{ii}$  VAI DEPENDER DA SIMETRIA CRISTALINA

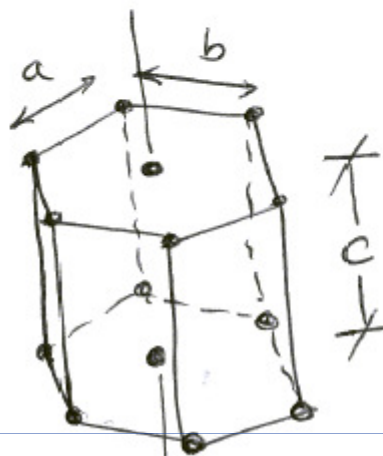
CRISTAL CÚBICO  $\chi_{11} = \chi_{22} = \chi_{33}$

(PROPRIEDADES ÓPTICAS SÃO ISOTRÓPICAS)

CRISTAIS HEXAGONAIS

UNIAXIAIS

$$a = b \neq c$$



PROP. IGUAIS AO  
LONGO DE x E y

MAS DIFERENTES  
AO LONGO DE z

$$\chi_{11} = \chi_{22} \neq \chi_{33}$$

eixo óptico  
z

CRISTAIS ORTORÔMBICOS, MONOCLÍNICOS OU TRICLÍNICOS  
SÃO CHAMADOS BI-AXIAIS

$$\chi_{11} \neq \chi_{22} \neq \chi_{33}$$

DOIS EIXOS ÓPTICOS

# EXEMPLO: CRISTAL UNIAXIAL (TRANSPARENTE)



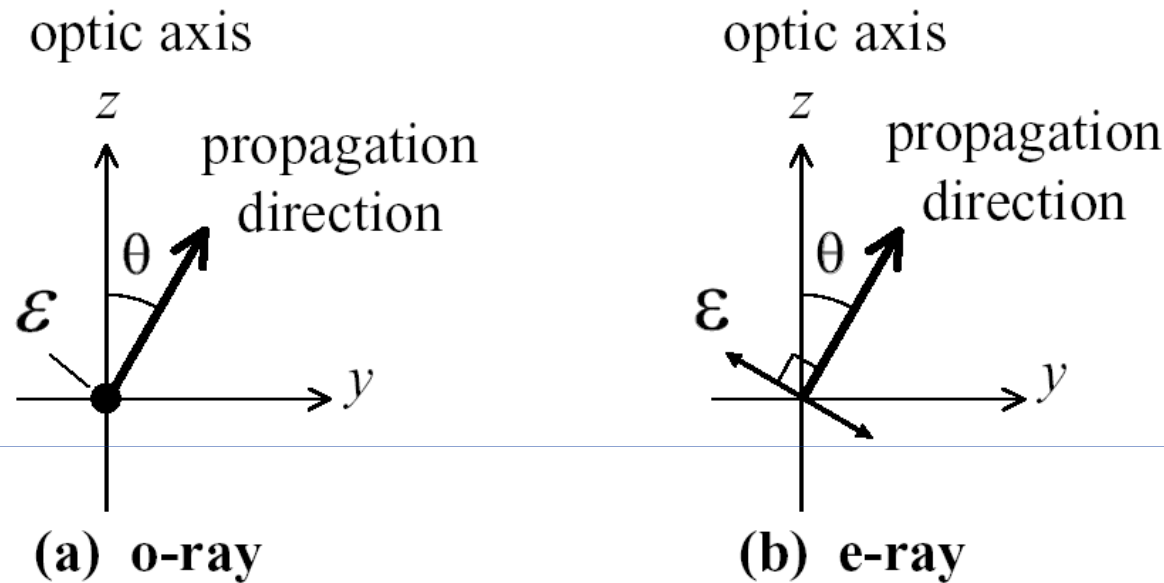
$$\vec{D} = \epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_0 \vec{E} + \epsilon_0 \vec{\chi} \vec{E} = \epsilon_0 (\vec{1} + \vec{\chi}) \vec{E}$$

$$\epsilon_r = 1 + \chi = \begin{pmatrix} 1 + \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 1 + \chi_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 1 + \chi_{33} \end{pmatrix}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{ONDA ORDINÁRIA : } n_o^2 = 1 + \chi_{11} = 1 + \chi_{22} \\ \text{ONDA EXTRAORDINÁRIA : } n_e^2 = 1 + \chi_{33} \end{array} \right.$$



# Optical anisotropy



**Figure 2.12**

Birefringence caused by difference of dielectric constants (and hence refractive index) along the different crystal axes.

$$\begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}$$

Para complementar a 1ª. e 2ª. aulas  
sugiro que leiam

M. Fox  
Optical Properties of Solids  
Cap. 1 e 2