

FI255 - Tópicos de Óptica e Fotônica II

Óptica Não-Linear

2^a. aula

UNICAMP - 9 de março de 2018

Breve revisão da 1^a. 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

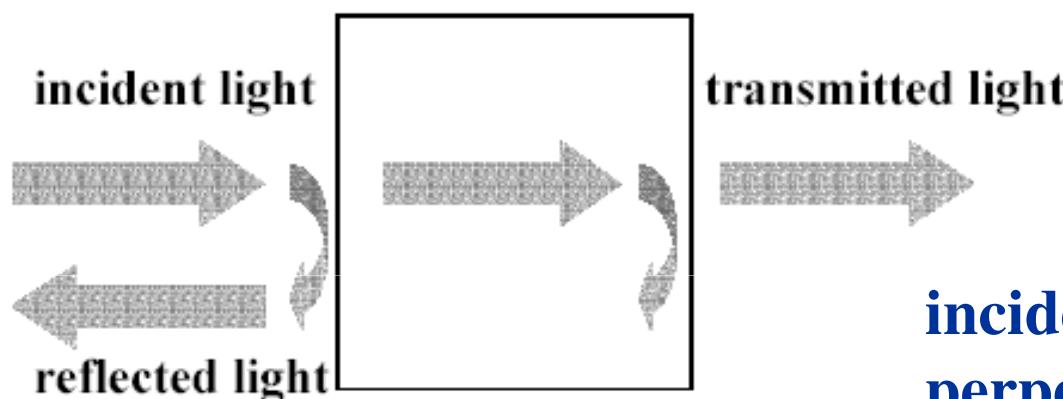
Interação Radiação – Matéria

Óptica Linear e Não Linear

Regimes – perturbativo e não-perturbativo

Optical coefficients

propagation through
the medium



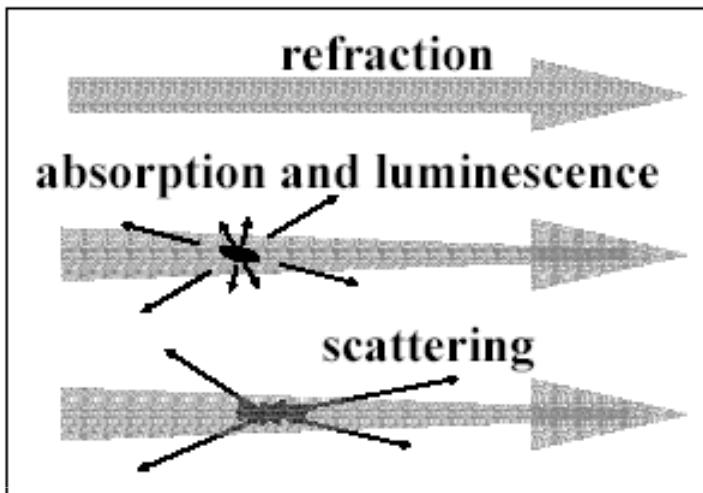
incidência
perpendicular

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**
- $I(z) = I_0 \exp(-\alpha z)$, α 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

REVISÃO

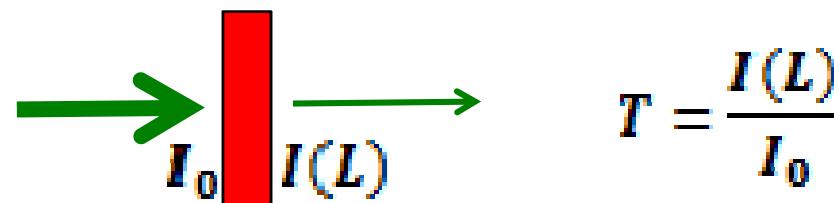
Absorção

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:

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

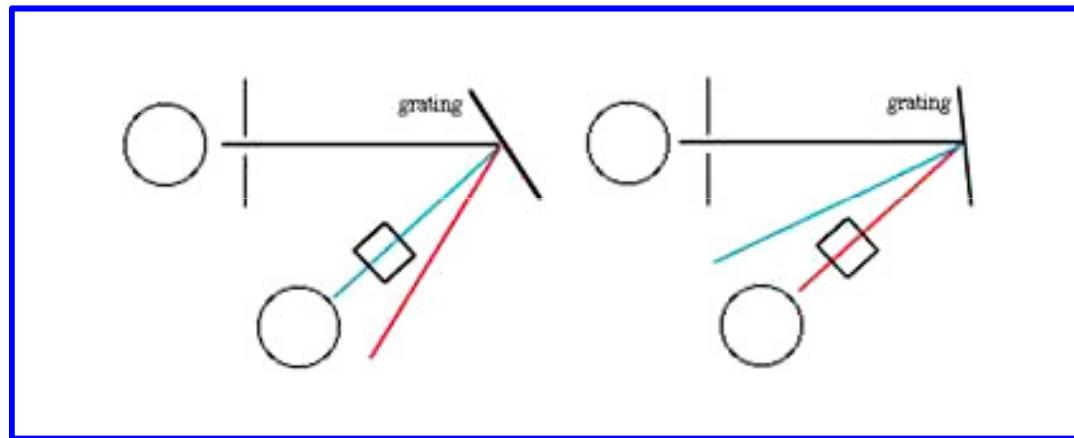


Transmissividade de um meio absorvedor de espessura L :

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

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

$$\tilde{n} = n_0 + ik$$

κ é o **coeficiente de extinção**.

Relação entre κ e α_0 : Onda plana propagando na direção z.

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

Meio absorvedor

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

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:

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

REVISÃO

Num meio absorvedor a constante dielétrica é uma quantidade complexa

$$\epsilon = \epsilon_1 + i \epsilon_2$$

Por analogia definimos:

$$\tilde{n}^2 = \epsilon_1 + i \epsilon_2$$

Num **meio fracamente absorvedor** obtemos:

$$n_0 = \sqrt{\epsilon_1}$$

$$\kappa = \epsilon_2 / 2n_0$$

Num material transparente ϵ_2 é muito pequeno e, portanto, n_0 e ϵ são considerados **reais**.

2^a. aula

Interação átomo-luz

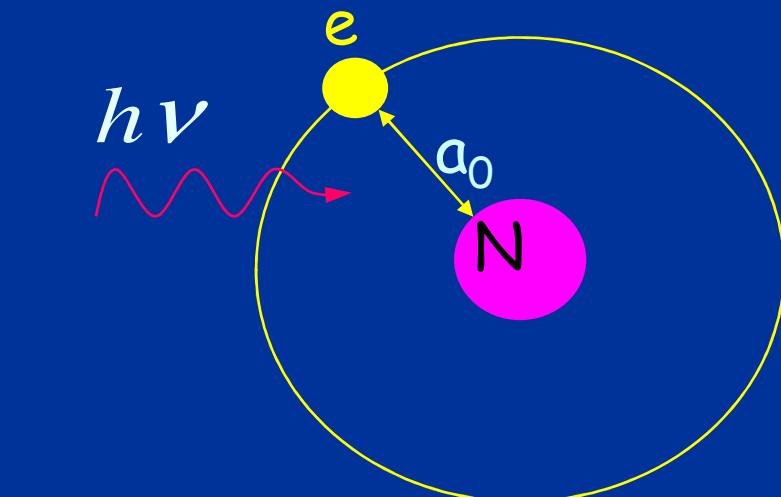
Modelo de Bohr

campo intra atômico

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

$$a_0 = \hbar^2 / me^2$$

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



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

Ionização ocorre envolvendo os elétrons mais externos
do átomo ou molécula

Rigidez dielétrica do ar
ao nível do mar:



Aprox. 3×10^4 V/cm

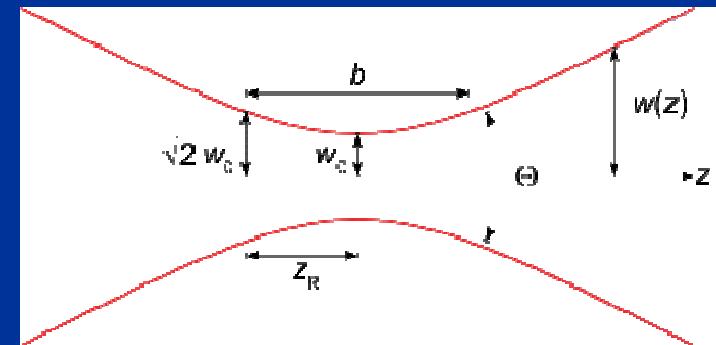
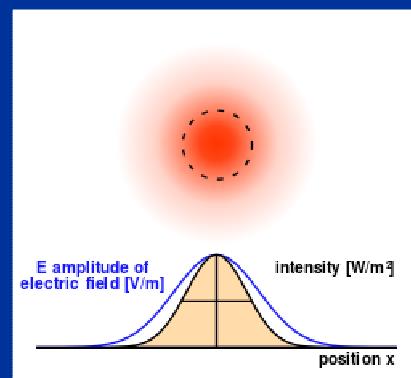
depende da umidade



Entre 20 e 30 kV

Gap: 1 mm

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



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

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

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

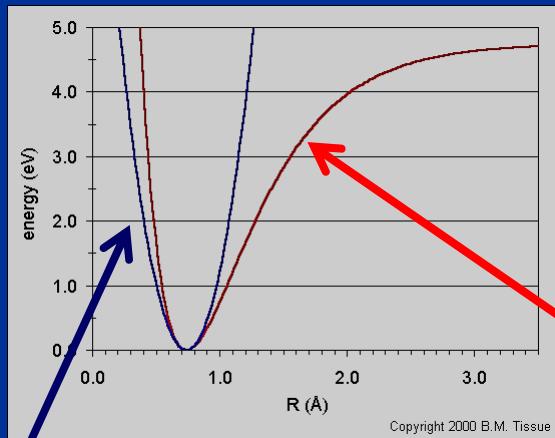
$$|E| = 55 \text{ V/cm}$$

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

$$U(x) = \frac{1}{2}m_0\omega_0x^2 + \frac{1}{3}m_0K_ax^3 + \frac{1}{4}m_0K_bx^4 + \dots \quad \omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m_0}}$$

Força restauradora: $F(x) = -\frac{dU}{dx} = -m_0\omega_0^2x - m_0K_ax^2 + \dots$ 14

Átomo como oscilador clássico

Modelo uni-dimensional

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

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

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

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

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

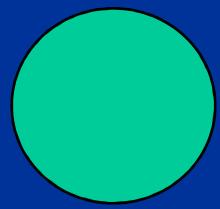
Força externa devida ao campo óptico:

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

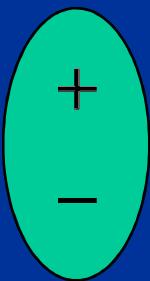
$$m_0 \frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + m_0 \omega_0 x = -eE(t)$$

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

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



$$E = 0$$



$$E \neq 0$$

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

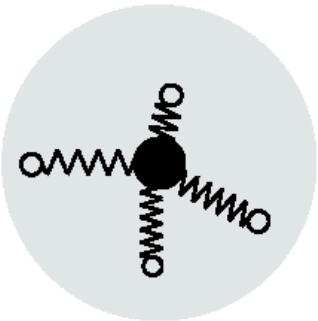


Figure 2.1: classical model of an atom.
Electrons are bound to the nucleus by springs
which determine the natural frequencies

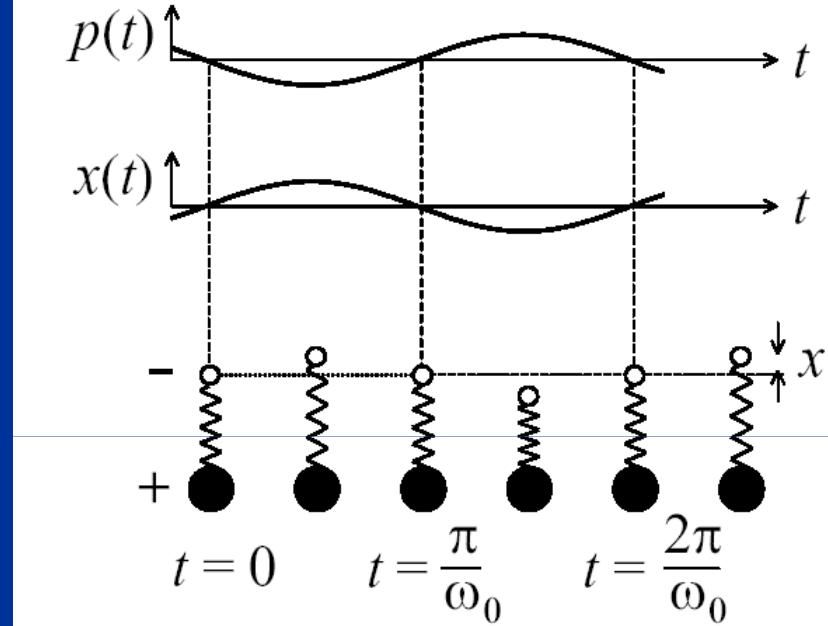
Bound electrons (insulators, intrinsic semiconductors)

- restoring force for small displacements $F = -k x$
 \Rightarrow natural resonant frequency $\omega_0 = (k/m)^{1/2}$
- ω_0 lies in the near infrared / visible / UV spectral regions

Free electrons (metals, doped insulators)

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

Dipole oscillators



$$p(t) = -e x(t)$$

$$\mathbf{P} = N \mathbf{p}$$

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_r \epsilon_0 \mathbf{E}$$

Light emission

- natural oscillations at ω_0 cause radiation at ω_0
- “Hertzian dipoles”

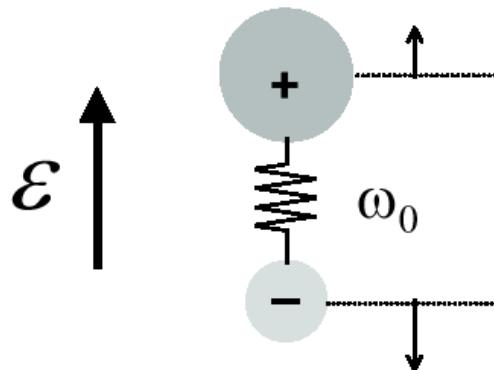
Refractive index

- light \equiv AC electric field at ω ($\neq \omega_0$)
- forced oscillations at ω
- 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 oscilante 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

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

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

$$D = \epsilon_0 E + P$$

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

$$D = \epsilon_0 \epsilon_r E$$

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

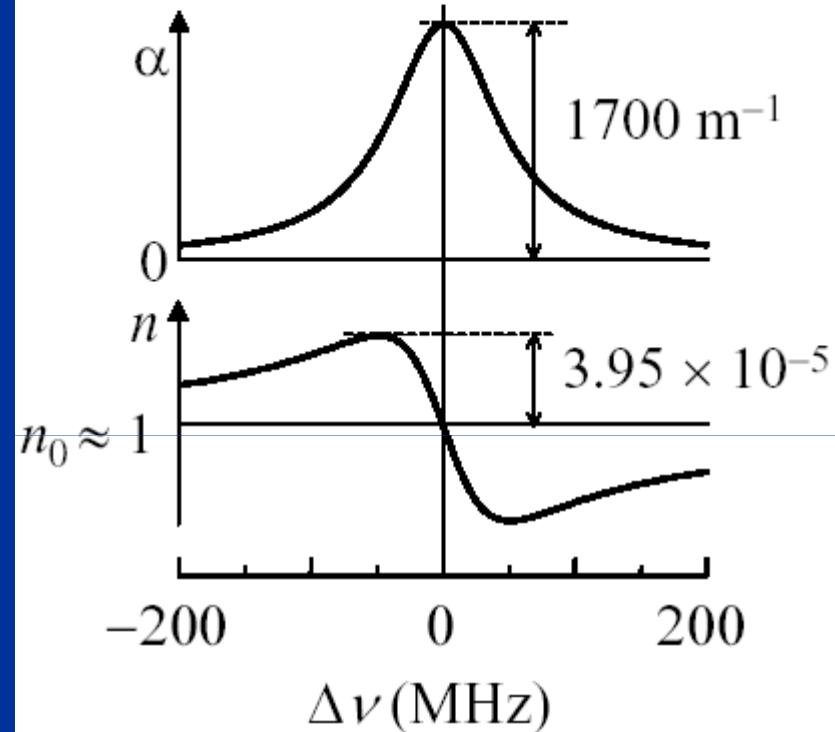
$$\begin{aligned}\epsilon_1(\omega) &= 1 + \chi + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2} \\ \epsilon_2(\omega) &= \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_0} \frac{\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}.\end{aligned}$$

$$\tilde{\mathbf{n}} = \mathbf{n}_0 + i\kappa \quad \alpha_0 = 2\kappa\omega/c \quad \tilde{n}^2 = \epsilon_1 + i\epsilon_2$$

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

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

Example: atomic absorption line



Lorentzian lineshape

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

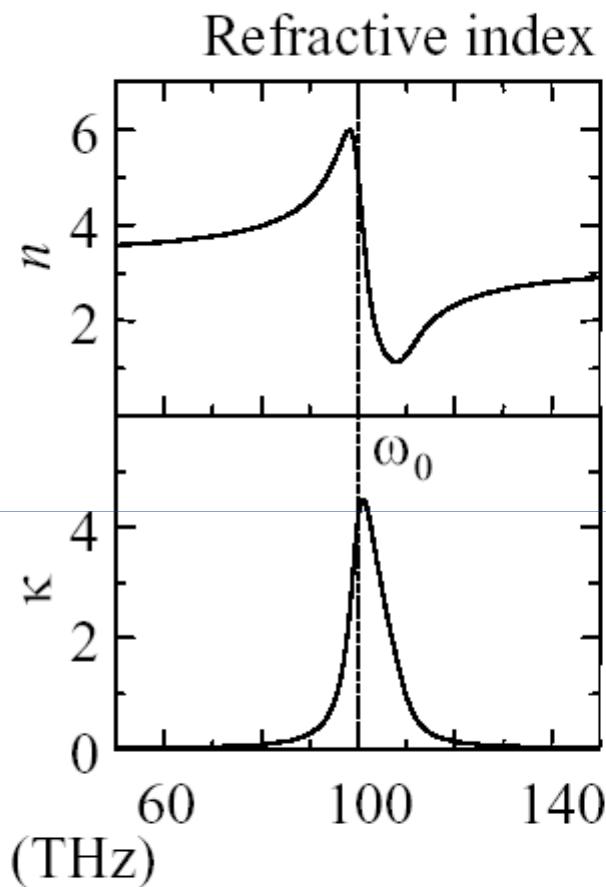
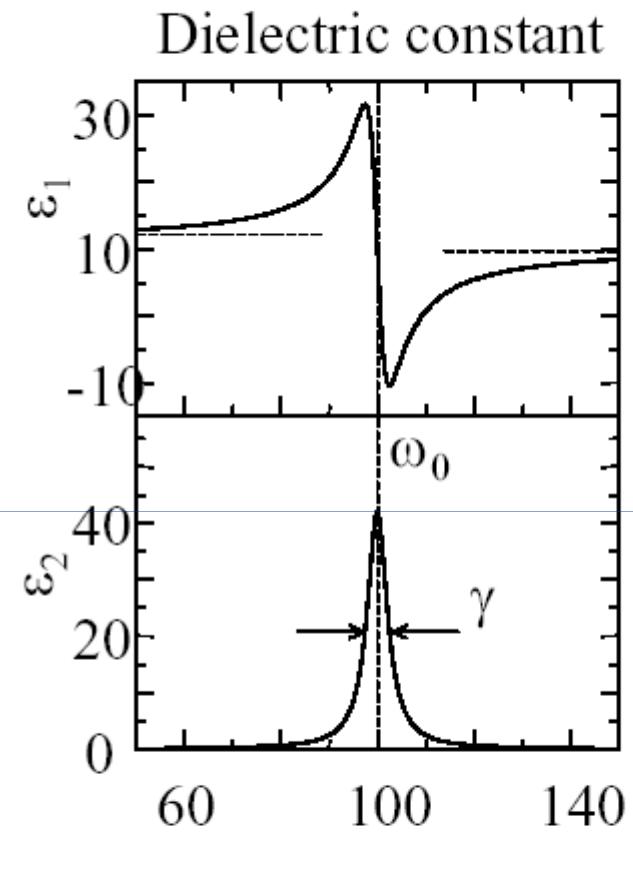
$$n(\omega) = n_0 + \Delta n \frac{4\gamma\Delta\omega}{4\Delta\omega^2 + \gamma^2}$$

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

Figure 2.5

- sodium gas, $N = 1 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ (low density $\Rightarrow n_0 \approx 1$)
- D₂ line at 589.0 nm, hyperfine component with FWHM = 100 MHz

Lorentz oscillators



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

- absorption at ω_0
- FWHM = γ

Figure 2.4

Lorentz oscillator with
 $\omega_0 = 100$ THz
 $\gamma = 5$ THz
 $\epsilon_{st} = 12.1$
 $\epsilon_\infty = 10$

1 THz = 10^{12} Hz

Multiple resonances

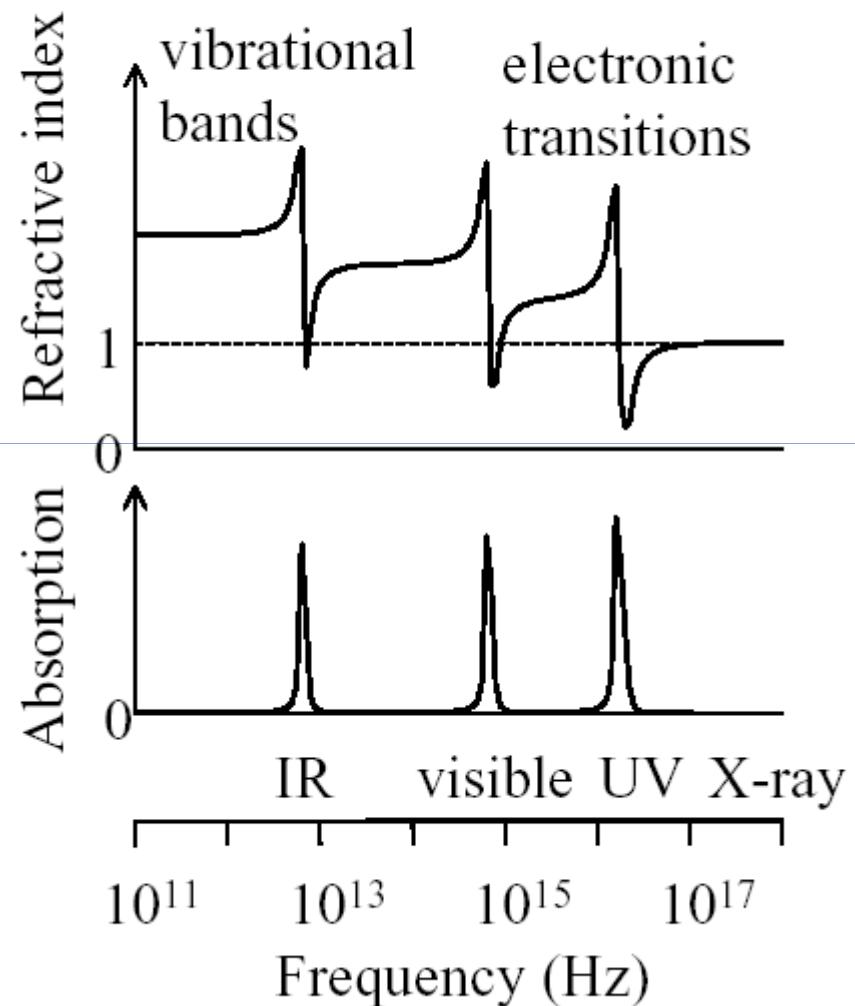


Figure 2.6
resonant frequencies:
phonons
valence electrons
core electrons

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_0} \sum_j \frac{f_j}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\gamma_j \omega)}$$

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

Example: SiO₂ glass

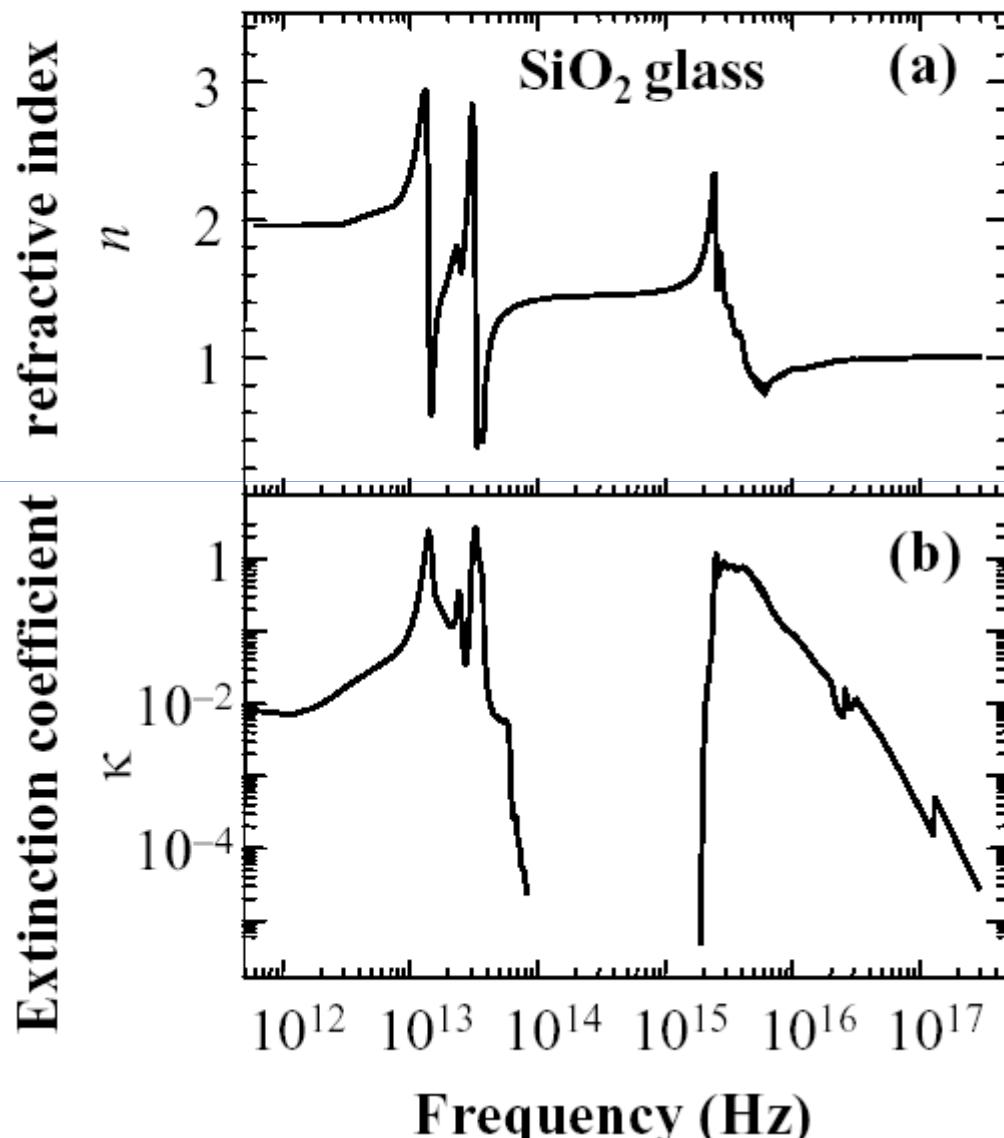


Figure 2.7
real and imaginary
part of the refractive
index for SiO₂ glass

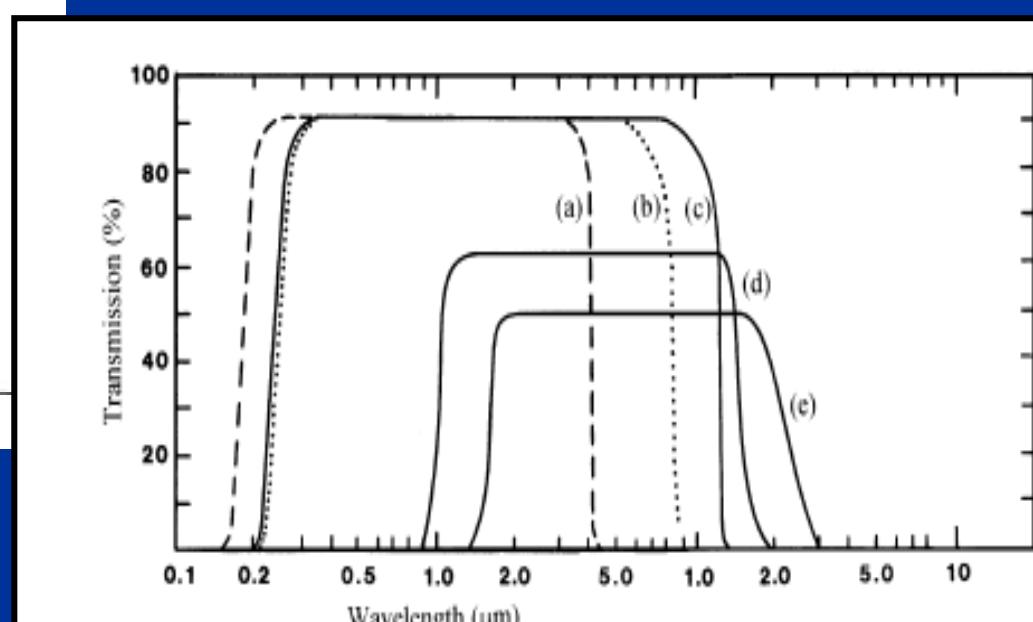
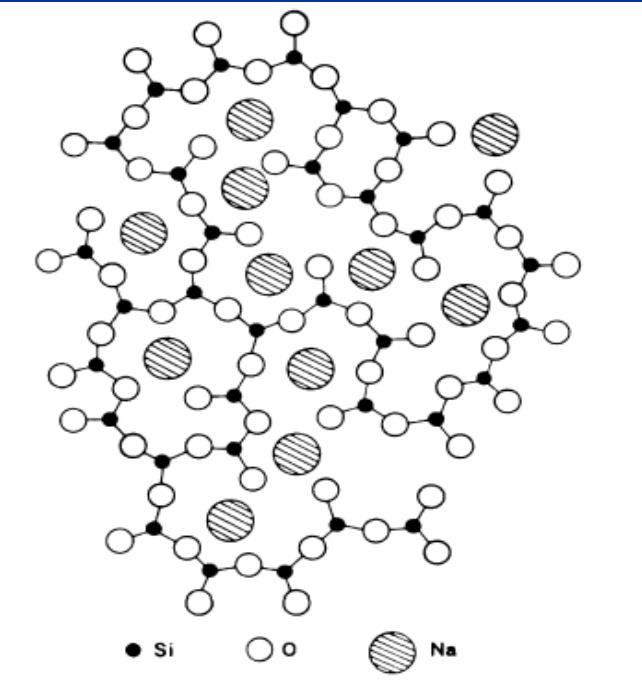
Transparency region
between
phonon frequencies in IR
and band gap in UV

SiO_2

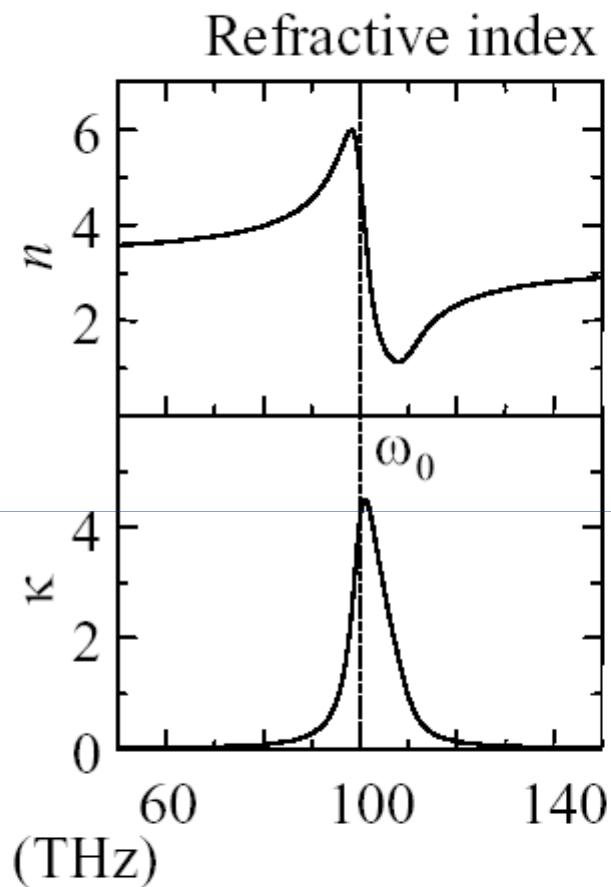
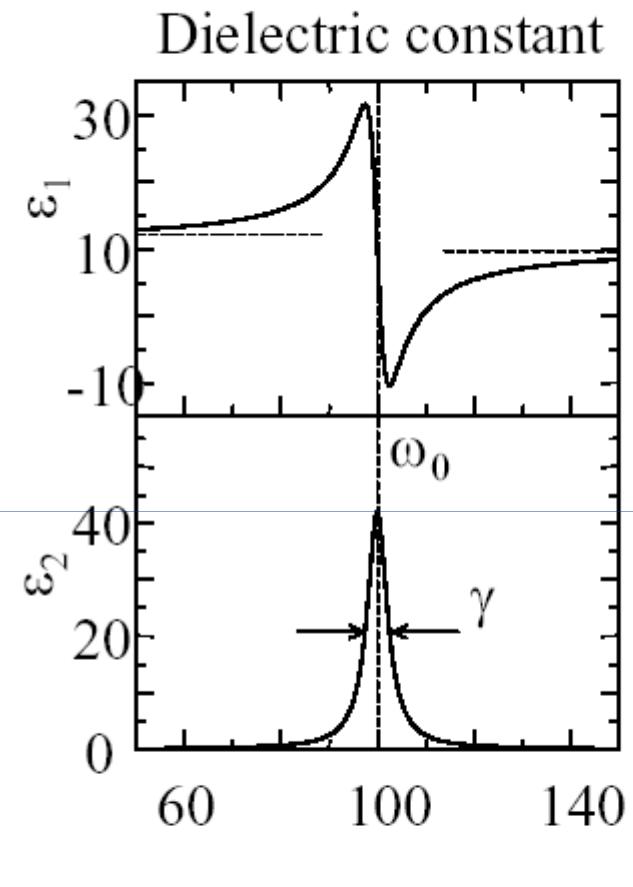
sílica

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



Lorentz oscillators



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

- absorption at ω_0
- FWHM = γ

Figure 2.4

Lorentz oscillator with
 $\omega_0 = 100$ THz
 $\gamma = 5$ THz
 $\epsilon_{st} = 12.1$
 $\epsilon_\infty = 10$

1 THz = 10^{12} Hz

Dispersion

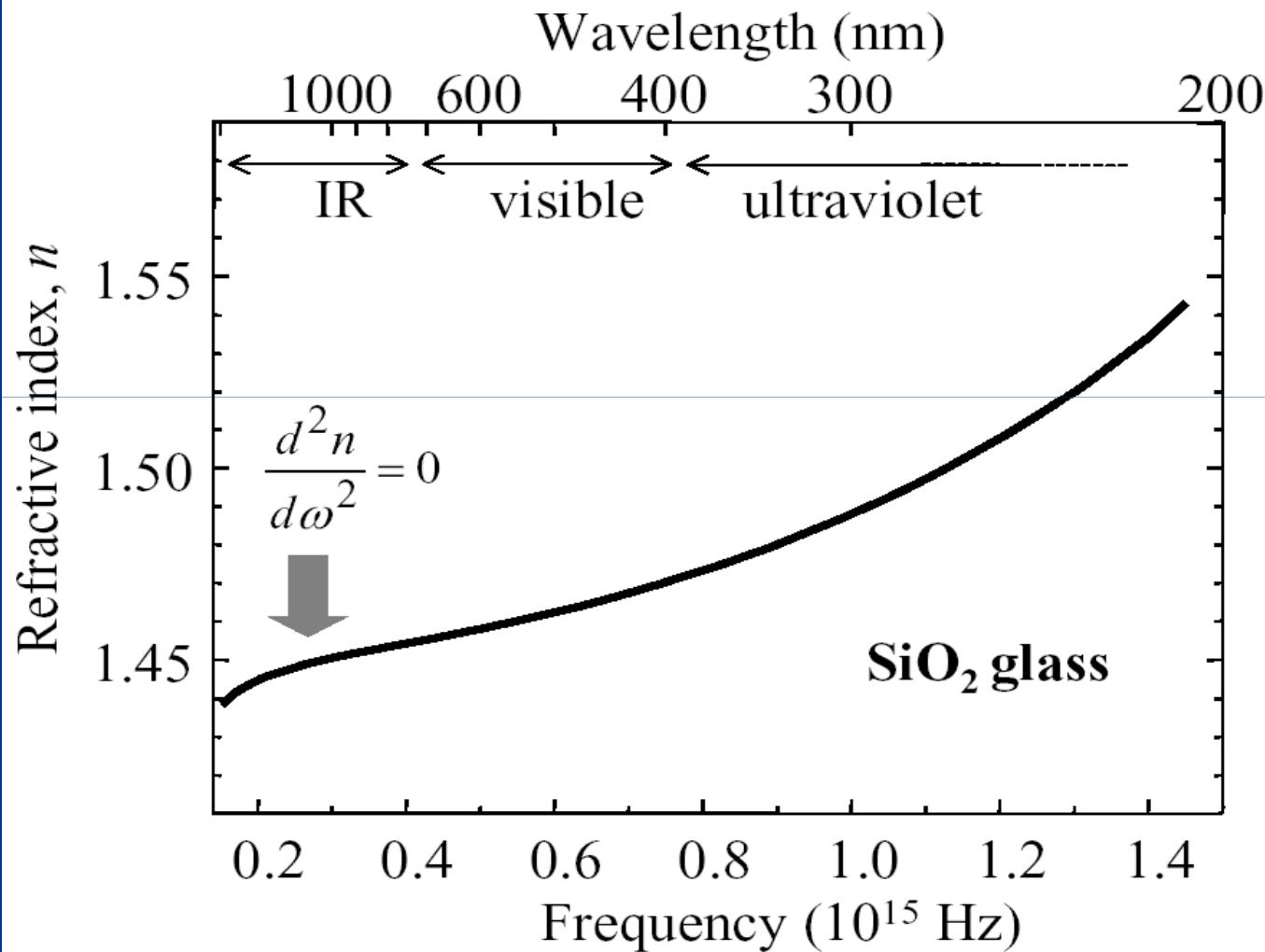


Figure 2.9
glass dispersion

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

SILICA É UM VIDRO PORTANTO A ABSORÇÃO NO INFRAREMELHO É DEVIDO À MOLECULAS DE 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 eV

$2 \times 10^{15} \text{ Hz}$ (150 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 $v = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n}$

POR TANTO

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

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

Dispersive prisms

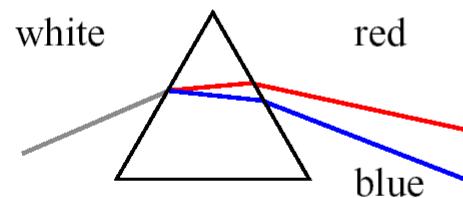


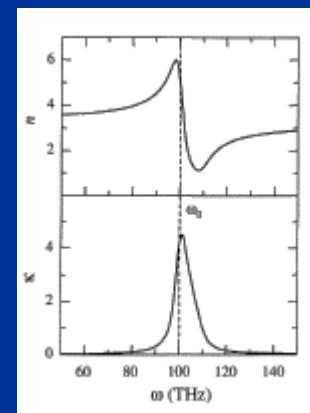
Figure 2.10

Dispersion of light by a prism

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

Índice de refração

Coeficiente de absorção

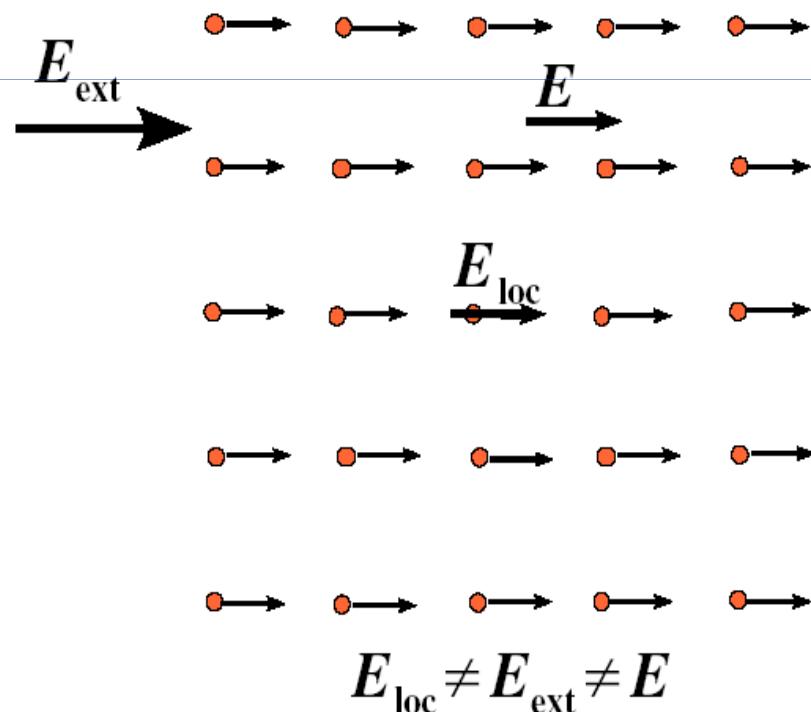


O cálculo que mostrei serve para um meio rarefeito

Campo local

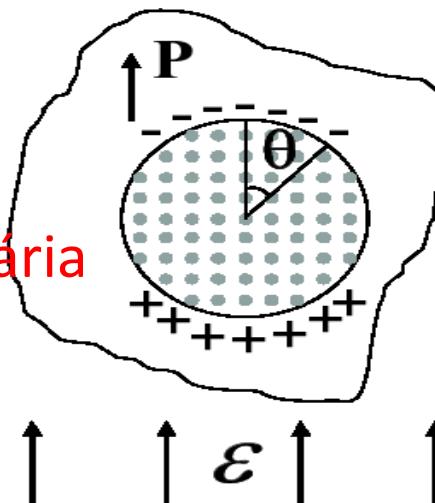
Como descrever um meio denso ?

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

- Se o meio apresentar absorção o fator de 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

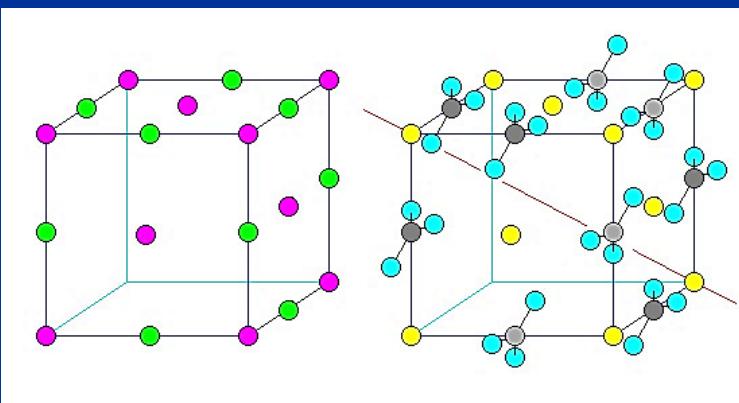
ANISOTROPIA ÓPTICA

ÁTOMOS NUM GAZ OU LÍQUIDO NÃO TÊM DIREÇÕES PREFERENCIAS 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

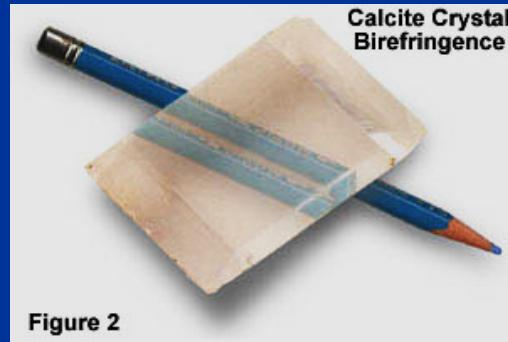
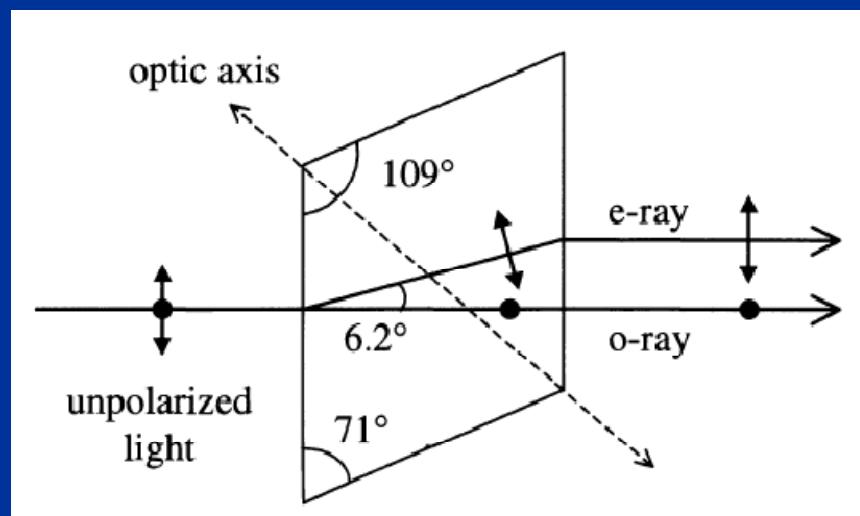


Figure 2



A SUSCEPTIBILIDADE É REPRESENTADA POR
UM TENSOR

$$\vec{\rho} = \epsilon_0 \vec{X} : \vec{E}$$

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

EXPRESSO EM TERMOS DOS EIXOS CRISTALINOS
PRINCIPAIS E USANDO COORDENADA CARTEZIANAS

$$\vec{X} = \begin{pmatrix} X_{11} & 0 & 0 \\ 0 & X_{22} & 0 \\ 0 & 0 & X_{33} \end{pmatrix}$$

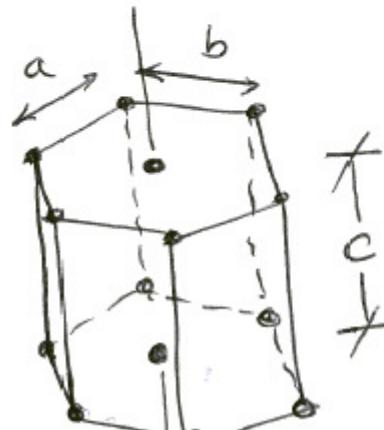
A RELAÇÃO ENTRE AS COMPONENTES X_{ii}
VAI DEPENDER DA SIMETRIA CRISTALINA

CRISTAL CÚBICO $\chi_{11} = \chi_{22} = \chi_{33}$
 (PROPRIEDADES ÓPTICAS SÃO ISOTRÓPICAS)

CRISTALS HEXAGONAIS

UNIAXIAIS

$$a=b \neq c$$



PROP. IGUAIS AO
 LONGO DE \underline{x} E
 MAS DIFERENTES
 AO LONGO DE \underline{z}

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

eixo óptico
 \underline{z}

CRISTALS ORTORÔMBICOS, MONOCLÍNICOS OU TRICLÍNICOS
 SÃO CHAMADOS BI-AXIAIS

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

DOIS EIXOS ÓPTICOS

EXEMPLO: CRISTAL UNIAXIAL (TRANSPARENTE)



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

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

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

Optical anisotropy

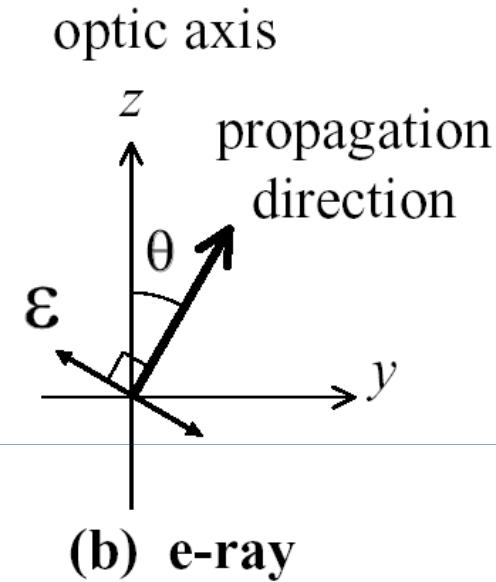
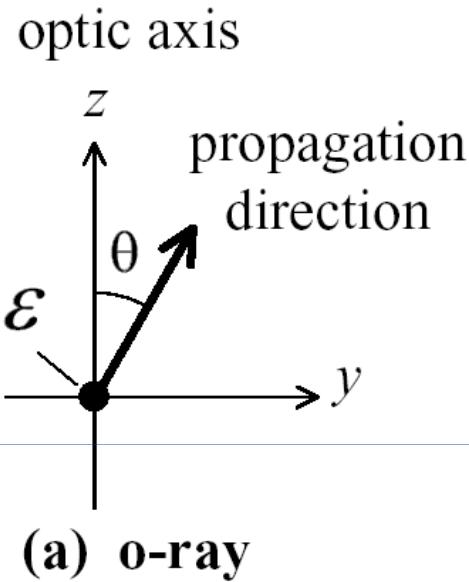


Figure 2.12

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 1^a. e 2^a. aulas
sugiro que leiam

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