

UNIVERSIDAD DE GUANAJUATO



APLICACION DE LA TECNICA Z-SCAN
A MEDIOS SATURABLES

Tesis presentada por:

*M. en C. María del Rayo A. Aparicio
Fernández*

*como requisito parcial para obtener el grado de Doctor
en ciencias (Optica)*

Asesores

*Dr. Yuri O. Baruenkov
Dr. Alexander V. Kir'yanov*

León Gto.

Diciembre del 2002.

Agradecimientos

Quiero agradecer a las siguientes Instituciones y personas por el apoyo que me brindaron durante mis estudios de doctorado:

Al CONACyT, por el apoyo económico que me brindó mediante una beca crédito para estudios de doctorado.

Al CIO y Dr. Luis Efraín Regalado, exdirector de este centro, por su apoyo y la ayuda prestada a través de una beca institucional.

Mi más sinceros agradecimientos son para mis asesores de tesis, Dr. Yuri O. Barmenkov y Dr. Alexander V. Kir'yanov, que no solo dedicaron tiempo y esfuerzo a dirigir mi trabajo sino también fueron (y son), para mi, excelentes profesores en los cursos que imparten.

Gracias al Dr. Efraín Mejía Beltrán por sus valiosos comentarios y correcciones a este trabajo.

Al director de formación académica Lic. Antonio Martínez Castillo, a la licenciada Guillermina Muños, y a las personas de su equipo de trabajo que con su desempeño aligeran la carga de los estudiantes.

Dedico este trabajo a mi esposo y mis hijos por compartir su vida conmigo, a mis padres y hermanos, por el cariño y apoyo moral que siempre nos hemos dado mutuamente.

A todos mis amigos, y en especial a todos aquellos que me asesoraron de alguna manera.

A Evguenii, Vasili y Nikolai

Contenido

	página
Agradecimientos	i
Dedicatoria	ii
Contenido	iii
Lista de tablas y figuras	iv
CAPITULO I. Introducción	1
CAPITULO II. Técnica Z-scan	6
2.1 Arreglo experimental	7
2.2 Fundamentos teóricos	12
Referencias	19
CAPITULO III. Aplicación de la técnica z-scan a muestras de bR	21
3.1 Absorbedores saturables	22
3.2 Formación de lentes térmicas	23
3.3 Características principales de la bacteriorodopsina	24
3.4 Parte experimental	26
3.5 Modelo Teórico	32
3.6 Conclusiones	46
Referencias	48
CAPITULO IV. Aplicación de la técnica z-scan a un cristal Cr ⁴⁺ :YAG	50
4.1 Aspectos generales de los cristales Cr ⁴⁺ :YAG	51
4.2 Parte experimental	52
4.3 Análisis de los resultados experimentales	55
4.4 Modelo y discusión	60
4.5 Conclusiones	73
Referencias	74

APENDICE A	77
APENDICE B	79

Lista de Figuras y Tablas

- Figura 2.1 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica Z-scan.
- Figura 2.2 Gráfica z-scan para apertura abierta, $T_0(z)$.
- Figura 2.3 Gráficas z-scan para apertura cerrada ($T_1(z)$), para una lente inducida negativa (a) y para una lente inducida positiva (b).
- Figura 3.1 Transmisión no lineal de un absorbedor saturable contra intensidad de la luz en unidades de la intensidad de saturación del material I_s .
- Figura 3.2 Lente térmica inducida en una muestra de material no lineal.
- Figura 3.3 Modelo de dos niveles de energía de la bacteriorodopsina.
- Figura 3.4 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica z-scan a muestras de bR inmersa en películas de polímero.
- Figura 3.5 Transmitancia de una película de bR por excitación a las longitudes de onda de 633 nm (etiqueta roja) y 543 nm (etiqueta verde) de un laser de He-Ne. La intensidad del haz incidente es 1 y 0.3 mW/cm² respectivamente.
- Figura 3.6 Espectro de absorción para películas de bR en polímero.
- Figura 3.7 Resultados experimentales z-scan para una película de bR a longitudes de 543 (a) y 633 nm (b). La intensidad del haz de prueba incidente es 1 y 4 mW/cm² (curvas 1), 5 y 2 mW/cm² (curvas 2), y 120 y 250 mW/cm² (curvas 3), respectivamente.
- Figura 3.8 Sistema de tres niveles de energía para la bR.
- Figura 3.9 Perfiles teóricos de diferencia de fase para un haz de prueba con variación de la intensidad incidente. El caso (a) es el mismo que el (b) pero en este último existe una diferencia en el signo de la susceptibilidad χ para un valor de I .
- Figura 3.10 Gráficas z-sacan teóricas para muestras de bR inmersa en polímero,

obtenidas bajo el modelo de la figura 3.8. En el caso (a) hay un cambio en el signo de la lente, mientras que en (b) el signo se mantiene constante. Las curvas muestran los valores del parámetro de saturación S_{01} .

Figura 3.11 Comparación gráficas z-scan experimentales (a) con z-scan teóricas (b), para muestras de bR inmersa en película de polímero.

Figura 4.1 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica z-scan a una muestra de cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$.

Figura 4.2 Esquema que muestra la interacción entre el haz de prueba y el cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. E_p da la orientación de la polarización azimutal del haz respecto de los iones de Cr^{4+} .

Figura 4.3 Curva de saturación del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. Se observa que $T_{0m} = 31\%$ y $T_{0m} = 85\%$.

Figura 4.4 Resultados experimentales para barridos en z con apertura cerrada $T1(z)$ para diferentes potencias de excitación.

Figura 4.5 Dependencia de la magnitud $T1_{\max}$ de la potencia del haz incidente. Curva 1 experimento, curvas 2 a 4 – teoría. Tomando en cuenta solo el efecto PP (curva 2), solo efecto TL (curva 3), y en general efecto PP+TL (curva 4).

Figura 4.6 Gráficas z-scan teóricas $T1(P,z)$ con apertura cerrada para diferentes potencias de excitación. Las curvas 1 corresponden solo al efecto PP, las curvas 2 corresponden solo al efecto TL, y las curvas 3 al efecto general PP+TL.

Tabla 3.1 Valores de Δn para la bR inmersa en polímero.

Tabla 4.1 Parámetros del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ y del arreglo experimental usado.

Tabla 4.2 Dependencia del cambio del índice de refracción de la Potencia de entrada (o intensidad I) en el $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$.

CAPITULO I

INTRODUCCION

La técnica Z-scan (o técnica de barrido en z, como también se le llama) es una prueba óptica relativamente nueva, inventada en el año de 1989; ésta técnica se aplica a materiales no lineales para medir la parte no lineal del índice de refracción y el coeficiente de absorción de los mismos.

Inicialmente la prueba se desarrolló para ser usada con materiales que experimentan poca saturación, por lo que la teoría original no es aplicable a materiales que presentan un fuerte saturación; cuando se tienen materiales saturables el tratamiento que se da a los datos obtenidos de los barridos en z es particular para cada material, esto es, cada medio tiene sus propias modificaciones a la técnica.

Para la realización de este trabajo se escogieron dos materiales, Bacteriorodopsina (bR) del tipo natural inmersa en una película de polímero, y una muestra de un cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. La elección de estos medios se debe a sus múltiples e importantes usos: holografía en tiempo real, almacenamiento óptico de datos y reconocimiento de patrones (por mencionar algunos) para la bR, y en el caso del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ su uso como medio activo en la tecnología de láseres de estado sólido.

Uno de los objetivos en este trabajo fue medir el índice de refracción no lineal a las muestras de los materiales elegidos aplicando la técnica z-scan. Además, nos propusimos hacer modificaciones a esta técnica para poder aplicarla, ya que ambos materiales son medios saturables.

Usar la técnica z-scan tiene ventajas sobre otras técnicas, una de ellas es que utiliza un solo haz de prueba con perfil Gaussiano (se basa en el análisis de la distorsión de frente de onda y es altamente sensible ($\sim \lambda / 250$, $\sim \lambda / 300$)); otra ventaja es que el equipo utilizado en el arreglo experimental es poco sofisticado y de fácil manejo. Esta técnica es ideal para los medios que estudiamos debido a la rápida respuesta de los mismos.

Por otro lado, el trabajo de tesis está dividido en tres partes: la primera parte está desarrollada en el capítulo II, se refiere a una descripción detallada de la técnica z-scan en su versión original; ahí se muestra y explica el arreglo experimental básico utilizado para la aplicación de la prueba, cómo se obtienen los datos para el graficado de los resultados y cuáles son los fundamentos teóricos que soportan al método en sí.

Posteriormente, en el capítulo III, se entra de lleno al tema mediante la explicación de la técnica aplicada a muestras de bR. La bacteriorodopsina es una proteína poco conocida que fue descubierta hace poco más de treinta años, sin embargo existen grupos de investigadores que la estudian y utilizan ya que es un medio fotocromico reversible de interesantes propiedades ópticas no lineales.

Por otro lado, frecuentemente los valores de la parte no lineal del índice de refracción, evaluados de los datos experimentales, son calculados sin tomar en cuenta las desviaciones que sufre el haz de prueba de la forma Gaussiana, y la saturación en la absorción del medio. además, existen problemas de mucho significado que pueden surgir con la interpretación de los resultados de los barridos en z , cuando el medio bajo estudio posee absorción de estado excitado (ES) y absorción de estado base (GS): como demostraremos mas adelante este es el caso de la molécula de la bR y en los resultados obtenidos si tomamos en cuenta estos problemas.

La molécula de bR se caracteriza por tener un complicado fotociclo que debe ser tomado en cuenta para la correcta interpretación de los datos experimentales.

En la parte correspondiente al estudio de la bR nosotros investigamos tanto teóricamente como experimentalmente, y demostramos que existen, absorción de estado excitado y absorción de estado base. Analizamos la foto-respuesta de las películas de bR a dos longitudes de onda, 543 nm y 633 nm, que corresponde a las pendientes del espectro de absorción del material.

Se demuestra que las curvas z -scan dependen drásticamente no solo de la longitud de onda del haz, sino también de su intensidad; el modelo teórico está en excelente concordancia con los resultados experimentales. Es necesario señalar que el modelo teórico desarrollado solo toma en cuenta el hecho de la deformación del frente de onda debido a la saturación de la absorción (GS) y (ES) de una lente

fotorefractiva inducida en la muestra, sin tomar en cuenta la formación de una lente térmica.

Finalmente, en el capítulo IV, se explica como se aplicó la técnica z-scan a una muestra de un cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. Estos cristales (al igual que la bR) poseen interesantes características no lineales, una de ellas es la latente anisotropía de la absorción en los iones de Cr^{4+} que aparece en el estado de saturación del estado base, cuando el cristal es probado con potente radiación de resonancia. Otro fenómeno interesante, encontrado recientemente en el $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, es el "extra-bleaching" bajo bombeo CW de potencia moderada.

Los fenómenos que se mencionan anteriormente no se estudiaron porque no era el objetivo del trabajo; nosotros nos abocamos al estudio experimental de la parte no lineal del índice de refracción Δn en cristales $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ aplicando la técnica z-scan y usando radiación continua CW a la longitud de onda de $1.06 \mu\text{m}$.

El cambio no lineal del índice de refracción con bombeo CW es algo que no ha sido estudiado anteriormente, ya que solo se tienen hechas investigaciones con radiación de pulsos cortos (ns).

Nosotros encontramos que en condiciones de excitación CW existen dos contribuciones principales a la refracción no lineal: la primera es el cambio de índice de refracción causado por la perturbación de población (PP) de los iones de Cr^{4+} , la segunda es el efecto de lente térmica (TL) causado por el calentamiento inhomogeneo de la muestra.

El estudio del cambio no lineal del índice de refracción en $\text{Cr}^{3+}:\text{YAG}$ es un labor complicada. Estos cristales se caracterizan por una absorción GS significativa la cual, obviamente, conduce a desviaciones de la forma Gaussiana en el haz de prueba, esto último introduce incertidumbre en la interpretación de las gráficas z-scan. Además, la absorción GS así como una posible absorción ES resulta, a través del calentamiento de la muestra, en un efecto de lente térmica no lineal. Así uno tiene una mezcla de efectos que complican el análisis de Δn . Una de las mayores aportaciones de este trabajo fue la discriminación de los efectos que causan este cambio en n .

Para terminar, el apéndice A da una explicación de la teoría de haces Gaussianos ya que los dos tipos de lasers que se utilizaron para hacer los experimentos tienen perfiles Gaussianos.

El apéndice B muestra algunos desarrollos algebraicos concernientes al material del capítulo IV.

CAPITULO II

TECNICA Z-SCAN

La medición de la refracción no lineal en materiales es un problema de gran interés que ha sido abordado en diversas ocasiones. Como resultado de esta necesidad se han desarrollado variadas técnicas entre las cuales se tienen pruebas de interferometría no lineal [1], [2] mezcla de cuatro ondas degeneradas [3], mezcla de tres ondas semidegeneradas [4] y de medición de distorsión del haz [5], [6], por mencionar algunas. Las pruebas de interferometría y mezcla de ondas son técnicas potencialmente sensibles pero que requieren aparatos experimentales complejos; por otra parte, las técnicas basadas en mediciones de distorsión del haz son relativamente insensibles y requieren un análisis detallado de la propagación de la onda.

La técnica z-scan (o técnica de barrido en z, como también se le conoce) se basa en los principios de la distorsión espacial del haz, pero tiene la ventaja de que se puede realizar con un arreglo experimental sencillo; además de ofrecer alta sensibilidad, esta prueba óptica es un método poderoso que utiliza un solo haz de prueba para medir tanto el signo como la magnitud de la refractividad no lineal n_2 (así como el coeficiente de absorción no lineal α) del material en estudio [7]. A lo largo de este capítulo se mostrará que para muchos casos prácticos, la refracción

no lineal y su signo pueden ser obtenidos de una sencilla relación entre los cambios de transmitancia observados y la distorsión de fase inducida, sin necesidad de realizar cálculos detallados.

La técnica se basa en la transformación de la distorsión de la fase a distorsión de la amplitud durante la propagación del haz. Esta es una prueba muy versátil que ha sido aplicada utilizando radiación visible e infrarroja (tanto en materiales sólidos como líquidos), radiación pulsada de nanosegundos y picosegundos, y con potencias moderadas. Empleando esta prueba se han logrado sensibilidades mayores a $\lambda/300$ en la distorsión del frente de onda [8] en la medición de n_2 .

2.1 Arreglo experimental.

En su arreglo experimental la técnica z-scan utiliza el conjunto de componentes básicas que se muestran en la figura 2.1. Existen muchas versiones modificadas de este arreglo, cada una de esas versiones atiende a las necesidades particulares del experimento, pero en esencia las componentes ópticas básicas son comunes en todas ellas. En el arreglo experimental utilizado para la aplicación de la técnica z-scan, se tiene un haz de laser con perfil Gaussiano, que es enfocado por una lente positiva. Una muestra del material a probar está montada sobre un soporte que le permite movimiento en la vecindad del foco de la lente en la dirección de propagación del haz, dirección que es llamada z, (de ahí el nombre de técnica de

barrido en z). Posteriormente se coloca una apertura variable y finalmente un detector denotado en la figura como PD1. Se tiene también un divisor de haz y un segundo detector (PD2) cuya función es normalizar los valores de la transmitancia medidos por PD1, en el caso de que se use un haz de laser inestable.

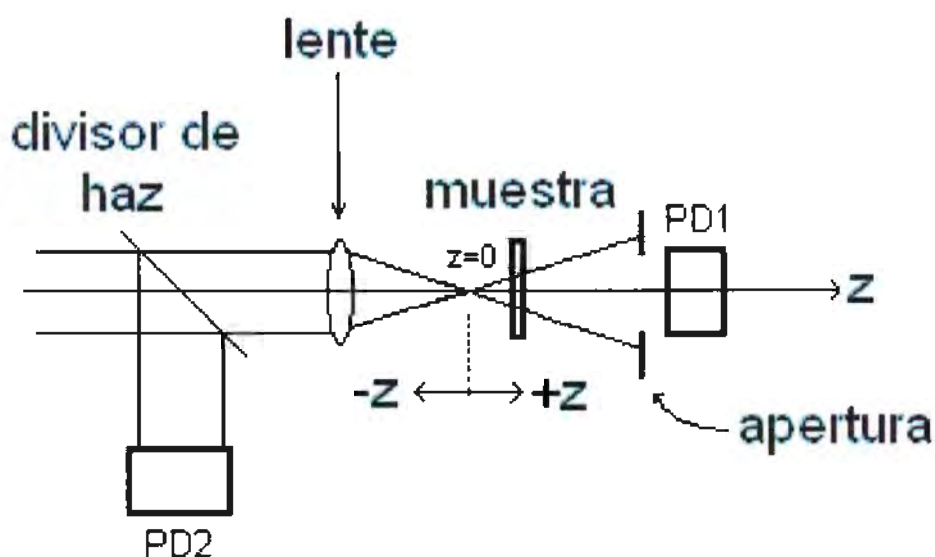


Figura 2.1 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica Z-scan.

Por otra parte, la muestra debe tener un espesor mucho menor que la profundidad de foco del haz (ver apéndice A), de esa manera los cambios en el diámetro del haz dentro de la muestra (debido a difracción o refracción no lineal) pueden despreciarse y así esta será considerada una muestra delgada [8].

Las gráficas obtenidas con este arreglo son gráficas de transmitancia de la muestra (medida a través de la apertura) como función de la posición z de la

misma; la posición z se mide respecto del plano focal de la lente, la cual se toma como referencia $z = 0$.

La figura 2.2 muestra el tipo de gráficas que se obtienen al tomar mediciones de la transmitancia del material bajo prueba (con apertura abierta), capturando toda la luz que pasa a través de la muestra. Cuando el material está en $z = 0$, la absorción del mismo se satura y la transmitancia máxima se normaliza a 1. Al alejar la muestra del punto focal la absorción comienza a decrementar en forma gradual hasta que llega a la región de absorción lineal, que tiene un valor de 53% en caso de la figura 2.2.

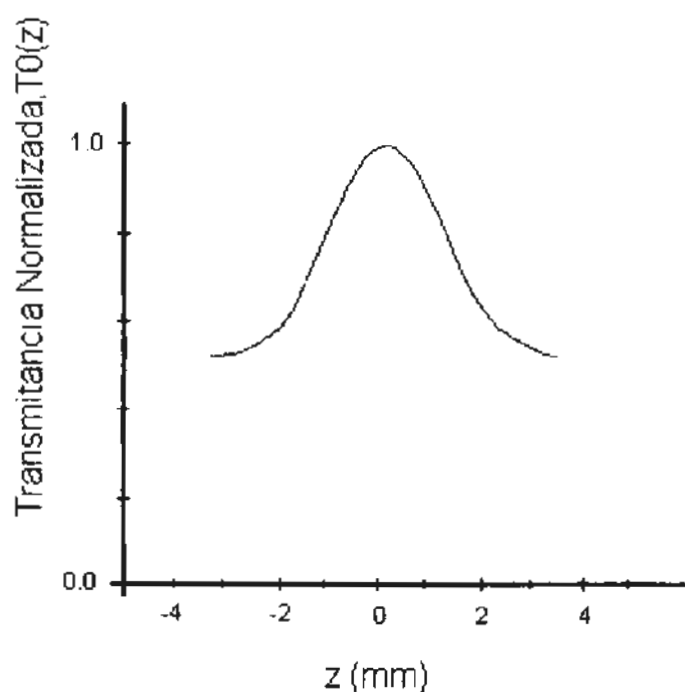


Figura 2.2 Gráfica z-scan para apertura abierta, $T_0(z)$.

El otro tipo de gráficas obtenidas se muestran en la figura 2.3. Para ellas la transmitancia es medida al cerrar y fijar la apertura (en nuestro caso un diafragma

de iris) a un diámetro aproximado de un milímetro, luego se coloca la muestra en $z = 0$ (transmitancia máxima) y se normaliza el valor medido a 1.

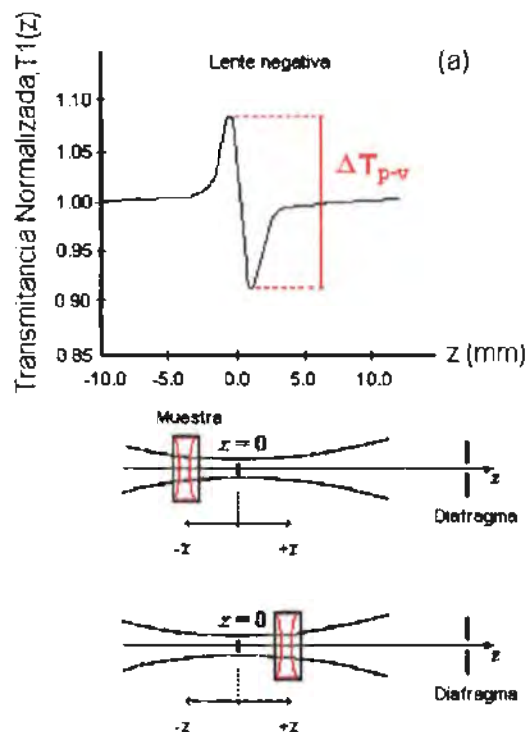
Cuando un haz Gaussiano es enfocado en este tipo de material, el índice de refracción no lineal varía en forma gradual en la dirección radial. Dependiendo del material, y de la longitud de onda de la señal, el efecto resultante será la formación de una lente positiva o negativa en la región de incidencia del haz. Al mover la muestra a lo largo del eje z , el haz convergente será reenfocado, y de esta manera la luz que llega al fotodetector dependerá de la posición de la misma. Esto se ilustra en las figuras 2.3. Ahí se observa el comportamiento fotorefractivo de materiales en los cuales se induce una lente negativa (fig. 2.3 (a)) y una lente positiva (fig. 2.3 (b)). Con ayuda de estas figuras se explica brevemente cómo se van formando las gráficas, resultado de los barridos en z , que en adelante llamaremos "gráficas z-scan".

Cuando la muestra se encuentra en posición anterior al foco (posición $-z$), muy lejos de él, los efectos no lineales son despreciables y el valor del cociente de la transmitancia medida por el fotodetector PD1 con apertura cerrada, sobre el valor de la transmitancia que mide con apertura abierta es del orden de uno, esto es $PD1_{\text{cerr}}/PD1_{\text{ab}} \approx 1$. Al acercar la muestra al foco de la lente, la lente negativa inducida tiende a colimar el haz y la irradiancia sobre la apertura se incrementa, por tanto $PD1_{\text{cerr}}/PD1_{\text{ab}}$ aumenta (figura 2.3(a)). Así, el barrido en z continúa y al acercarse la muestra a $z = 0$ el efecto de la lente generada tiende a desaparecer debido a una saturación de la absorción del material. Esto induce una transparencia

máxima de la muestra que no influye en el auto-enfoque del haz; llegando de esta manera a $z=0$ con valor de transmitancia unitario.

Al pasar la muestra a la parte positiva del eje z el mismo efecto de auto-enfoque negativo decrementa la irradiancia sobre la apertura haciendo que el cociente $PD1_{corr}/PD1_{ab}$ disminuya. Para posiciones z positivas muy alejadas del foco la transmitancia se hace lineal nuevamente ya que la irradiancia baja una vez más. La gráfica obtenida presenta una configuración pico –valle.

Una no linealidad positiva provoca un efecto opuesto, disminuye la transmitancia de la muestra para posiciones z negativas y se incrementa para z positiva.



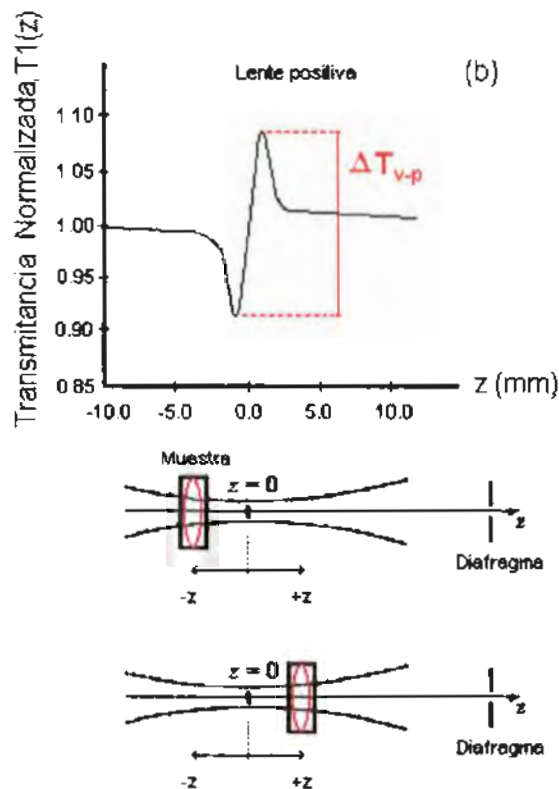


Figura 2.3 Gráficas z-scan para apertura cerrada ($T_1(z)$), con una lente inducida negativa (a) y con una lente inducida positiva (b).

La figura 2.3 (b) muestra la gráfica para el barrido en z en el caso de una lente inducida positiva. Las lentes positivas siguen la misma analogía que las lentes negativas, a diferencia que las configuraciones que se obtiene en las gráficas transmitancia v.s. posición de la muestra, serán configuraciones valle-pico, opuestas a las de las lentes negativas. El signo de la lente se determina por simple observación de estas gráficas.

configuración pico-valle \rightarrow lente negativa

configuración valle-pico \rightarrow lente positiva

El valor del índice de refracción está definido por la diferencia de ordenadas pico-valle, la cual se denota T_{p-v} , como lo veremos mas adelante.

2.2 Fundamentos Teóricos

Considerando la geometría dada en la figura 2.1 puede hacerse un análisis de los barridos en z . Para una no linealidad cúbica en índice de refracción n_2 (esu) éste se expresa a través de

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} E^2 = n_0 + \Delta n \quad (2.1)$$

donde n_0 es el índice de refracción lineal y E es el campo eléctrico.

Suponiendo un haz Gaussiano que viaja en la dirección $+z$ uno puede escribir la magnitud de E como

$$E(r, z, t) = E_0(t) \frac{w_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right] \quad (2.2)$$

aquí $w^2(z) = w_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)$ es el radio del haz en la posición z , $z_0 = \frac{kw_0^2}{2}$ es la longitud de difracción del haz, $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ es el vector de onda y λ es la longitud de onda del laser, todo en el aire. E_0 denota la radiación de campo eléctrico en el foco y contiene la envolvente temporal del pulso laser.

Como la muestra es delgada esto simplifica el problema considerablemente.

el cambio en la fase no lineal $\Delta\phi$ y la amplitud del campo eléctrico dentro de la muestra son gobernadas por:

$$\frac{d\Delta\phi}{dz} = (2\pi / \lambda)\Delta n \quad \text{y} \quad \frac{dE}{dz} = -\alpha / 2 E, \quad (2.3)$$

en esta expresión α es el coeficiente de absorción no lineal.

Las ecuaciones (2.3) se resuelven para el corrimiento de fase $\Delta\phi$ en la superficie de salida de la muestra, la cual simplemente sigue la variación radial de la irradianza incidente en una posición de la muestra z dada.

$$\Delta\phi(r, z, t) = \frac{\Delta\Phi_0}{1 + z^2 / z_0^2} \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right] \quad (2.4)$$

Aquí

$$\Delta\Phi_0 = k\Delta n_0 L_{eff} \quad (2.5)$$

es la diferencia de fase en el foco y L_{eff} no debe ser confundida con el espesor físico ya que está dada por

$$L_{eff} = \frac{1 - \exp(-\alpha L)}{\alpha}$$

donde L es el espesor de la muestra y la magnitud Δn_0 es el cambio instantáneo de índice, sobre eje, en el foco, $z = 0$.

El campo eléctrico E' en la superficie de salida de la muestra z_1 contiene ahora la distorsión de fase no lineal,

$$E'(r, z_1, t) = E(r, z_1, t) \exp(-\alpha L / 2) \exp(i\Delta\phi(r, z, t)) \quad (2.6)$$

Por el principio de Huygens uno puede obtener el patrón de campo lejano del haz en el plano de la apertura a través del orden cero de transformación de Hankel de E' . Usando el método numérico simple de decomposición Gaussiana de Weaire et al [9].

Habiendo calculado el perfil del campo eléctrico, E_a , en la apertura, obtenemos la transmitancia instantánea normalizada de la potencia z-scan como

$$T(z, t) = \frac{\int_0^{r_a} E_a(\Delta\Phi_0, r, z, t)^2 r dr}{S \int_0^\infty E_a(0, r, z, t)^2 r dr} \quad (2.7)$$

donde r_a es el radio de la apertura y S es la transmitancia de la apertura en el régimen lineal definida como $S = 1 - \exp(-2r_a/w_a^2)$, donde w_a denota el radio del haz en la apertura.

La forma temporal del pulso puede ser tomada en cuenta simplemente llevando a cabo integraciones en el tiempo separadas en ambos términos (arriba y abajo) de la ecuación (2.7). Esto da una curva z-scan teórica de la transmitancia de z-scan $T(z)$, que servirá para compararla con los resultados experimentales. Aquí primero se discuten las características generales de z-scan usando un campo de entrada constante tal que $T(z,t) = T(z)$.

Para una $|\Delta\Phi_0|$ dada, la magnitud y forma de $T(z)$ no depende de la longitud de onda o geometría hasta donde la condición de campo lejano se satisface. El tamaño S de la apertura, sin embargo, es un parámetro importante de tal forma que una apertura grande reduce las variaciones en $T(z)$, por ejemplo la sensibilidad. Esta reducción es más prominente en el pico, donde ocurre al angostamiento del haz, y resulta en una transmitancia de pico que no puede exceder $(1-S)$. El efecto se desvanece para una apertura grande o para no apertura, donde $S=1$, y $T(z) = 1$ para toda z y $\Delta\phi_0$ (asumiendo absorción lineal).

Para pequeños $\Delta\Phi$ el pico y valle ocurren a una misma distancia respecto al foco, y para una no linealidad cúbica su separación es del orden de $1.7 z_0$. Esta distancia puede ser usada para determinar el orden de la no linealidad.

Nosotros podemos definir una cantidad fácilmente medible ΔT_{p-v} como la diferencia de transmitancias entre el pico normalizado (máximo) y valle (mínimo), $T_p - T_v$. La variación de esta cantidad como función de $|\Delta\Phi_0|$ se calculó para varios tamaños de apertura encontrándose que ΔT_{p-v} varía casi linealmente respecto de $|\Delta\Phi_0|$. Con $\pm 3\%$ de exactitud se tienen las siguientes relaciones

$$\Delta T_{p-v} \approx p \Delta\Phi_0 \quad \text{para} \quad \Delta\Phi_0 \leq \pi \quad (2.8)$$

con
$$p = 0.406(1 - S)^{0.25}$$

Particularmente, para una transmisión sobre eje ($S \sim 0$) encontramos que

$$\Delta T_{p-v} \approx 0.406 \Delta\Phi_0 \quad \text{para} \quad \Delta\Phi_0 \leq \pi \quad (2.9)$$

La naturaleza lineal de las ecuaciones (2.8) y (2.9) las hace convenientes para ser tomadas en cuenta para los efectos no permanentes y temporales en ecuación (2.7) mediante el simple promedio de la distorsión de fase instantánea $\Delta\Phi_0(t)$ sobre la forma del pulso laser. Un promedio en la distorsión de la fase $\Delta\Phi_0$ puede ser obtenido como el producto del corrimiento de fase en el pico $\Delta\Phi_0(0)$ y un factor promedio que es una constante de la forma del pulso para una clase de no linealidad dada. Por ejemplo, para un pulso Gaussiano y una no linealidad

cúbica este factor es $\frac{1}{2}$. Para una no linealidad "cumulativa" teniendo un tiempo de decaimiento mas grande que el ancho del pulso (térmico) un factor promedio de la fluidez de 0.5 es usado sin tomar en cuenta la forma del pulso. Las relaciones (2.8) y (2.9) pueden ser usadas para calcular el índice no lineal n_2 con $\pm 3\%$.

Esta ecuación también revela la naturaleza con alta sensibilidad de la técnica z-scan. Por ejemplo, si el aparato experimental es capaz de resolver cambios en la transmitancia (ΔT_{p-v}) del orden de 1%, cambios en la fase correspondiente a distorsión de frente de onda de λ_{250} son detectables.

Hay que tener muy claro que las consideraciones anteriores son válidas solo para no linealidades puramente refractivas, donde no se presenta saturación en absorción del material. Los materiales usados en este trabajo no cumplen con esta característica por lo cual hubo que hacer modificaciones en el tratamiento de los datos para poder utilizar la técnica de barrido en z.

Referencias

- [1] M. J. Weber, D. Milam, and W.L. Smith, *Opt. Eng.* **17**, 463 (1978).
- [2] M.J. Moran, C. Y. She, and R.L. Carman, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-11**, 259 (1975).
- [3] S.R. Friberg and P.W. Smith, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 2089 (1987).
- [4] R. Adair, L.L. Chase, and S.A. Payne, *J. Opt. Soc. Am.* **B 4**, 875 (1987).
- [5] W.E. Williams, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, *Opt. Commun.* **50**, 256, (1984).
- [6] W.E. Williams, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, presented at the Fifteenth Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers, Boulder, Colo., 1983.
- [7] M. Sheik-bahae, A.A. Said, and E. W. Van Stryland, "High- sensitivity, single-beam n_2 measurements", *Optics Letters*, Vol 14, No. 17 (1989), pp 955-957.
- [8] Mansoor Sheik-bahae, Ali A. Said, Tai-huei Wei, David J. Hagan, and E.W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol 26, No. 4, (1990), pp 760-769.
- [9] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, "Effect of

low- power nonlinear refraction on laser beam propagation in InSb²,

Opt. Lett., Vol 4, pp. 331-333, 1974.

CAPITULO III

TECNICA Z-SCAN APLICADA A MUESTRAS DE BACTERIORODOPSINA INMERSA EN PELICULAS DE POLIMERO.

La bacteriorodopsina (bR) así como los cristales $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ (materiales que se utilizaron para el trabajo de esta tesis), son materiales que experimentan saturación y por lo tanto no es posible aplicar directamente las expresiones para el tratamiento de los datos obtenidos de los barridos en z cuando se trabaja con materiales no saturables (teoría del capítulo anterior).

Para este tipo de sustancias el perfil del haz de prueba deja de ser un perfil Gaussiano debido a la saturación, cuando esto ocurre el tratamiento que se da a los datos es particular para cada material: cada medio tiene sus propias modificaciones a la técnica z-scan. En el caso de la bR la radiación de prueba induce una lente fotorrefractiva en ella, mientras que para el $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ se tiene inducción de lente tanto fotorrefractiva como lente térmica y ambas deben ser tomadas en cuenta para el análisis de datos.

En este capítulo analizaremos muestras de películas de bR natural inmersas en polímero; estudiaremos tanto teórica como experimentalmente algunas características de la aplicación de la técnica z-scan e investigamos experimentalmente el comportamiento temporal del "bleaching" de la muestra.

3.1 Absorbedores saturables.

Un absorbedor saturable es una sustancia cuyo coeficiente de absorción decrece rápidamente a medida que se incrementa la intensidad de la radiación con la que está siendo irradiada, hasta el punto que se hace "transparente" a la longitud de onda de esa radiación; así el material se hace más transparente a medida que la radiación se hace mas intensa. El incremento en la transparencia es llamado "bleaching" de la sustancia [1]. La figura 3.1 muestra como ejemplo de absorbedor saturable, la curva de saturación de un dye . Los absorbedores saturables pueden se opacos inicialmente en un 100% (u otro porcentaje, como es el caso mostrado en la figura) a la radiación que incide sobre ellos, y aumentar su transmitancia hasta un 100% (u otro porcentaje).

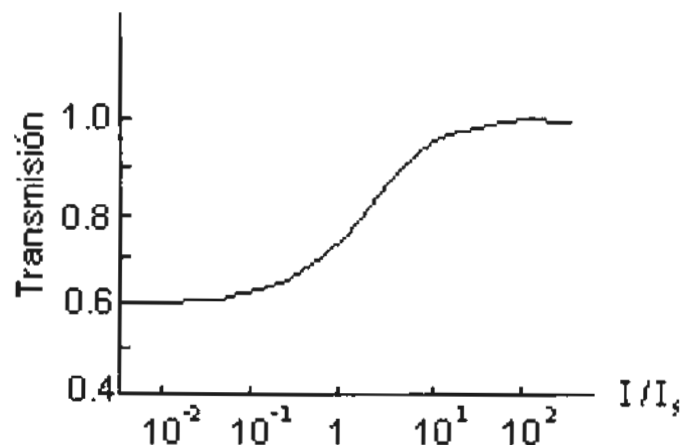


Figura 3.1 Transmisión no lineal de un absorbedor saturable contra intensidad de la luz en unidades de la intensidad de saturación del material I_s (se supone una transmisión inicial del 61% en esta caso).

3.2 Formación de lentes térmicas.

La formación de lentes térmicas en materiales no lineales es un fenómeno que se presenta debido al calentamiento interno no uniforme del material. Puede ocurrir que la superficie del material esté más fría que la parte central, lo que genera un gradiente de temperatura radial, este gradiente y el estrés térmico asociado, conducen a variaciones radiales del índice de refracción los cuales transforman al material en una *lente térmica positiva* con grandes aberraciones. De manera análoga, la radiación no uniforme sobre un material no lineal puede conducir a un coeficiente de ganancia más alto en los bordes, que en el centro causando un perfil no uniforme de temperatura a través del material. La radiación absorbida eleva la temperatura de la superficie por arriba de la temperatura del centro, y como resultado se crea una *lente térmica negativa* [1].

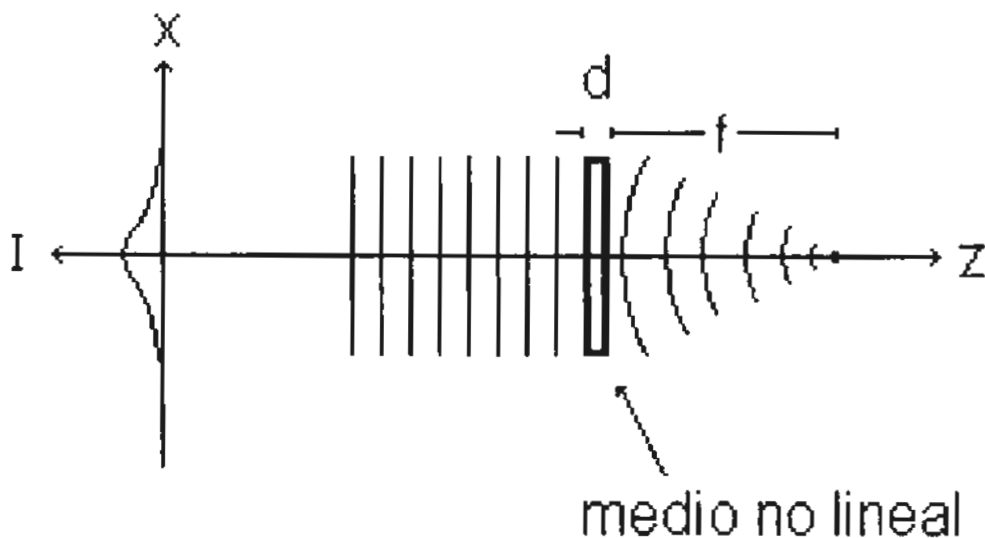


Figura 3.2 Lente térmica inducida en una muestra de material no lineal.

Por otra parte, asociado con los gradientes de temperatura están los estreses en el material que conducen a la birrefringencia.

3.3 Características principales de la Bacteriorodopsina.

La bacteriorodopsina (bR) es un material biológico, una proteína que se obtiene de una alga marina llamada *Halobacterium halobium*. Las moléculas de bR se encuentran formando una red exagonal bidimensional (inmersa en un lípido) dentro de la membrana de las células del *Halobacterium*, a la cual se le conoce como membrana púrpura (PM) debido a su color [2,3,4].

Las películas de PM se obtienen por secado sobre sustratos de vidrio o inmersas en polímeros (gelatinas o alcohol polyvinílico); también es posible suspender pedazos de PM en varias soluciones para la preparación posterior de películas.

Las películas de bR inmersa en una matriz de polímero fueron elaboradas por primera vez en el Instituto de Biofísica de la Academia de Ciencias de la URSS y fueron llamadas películas biocromáticas debido a que la bR es un material fotocromático, esto significa que al ser expuesto a la luz de cierta longitud de onda cambia de color, después (por relajación o por incidencia de luz azul) regresa a su estado original, característica por la cual la bR también pertenece al tipo de materiales reversibles.

La gran estabilidad fotoquímica de la bR la hace muy conveniente para diversas aplicaciones; los tiempos de respuesta en el fotociclo de la bR hacen que pueda ser usada en el almacenamiento óptico de datos de alta velocidad, como medio de grabado holográfico, en moduladores de luz, filtros espaciales y reconocimiento de patrones [2,3,4].

Como medio holográfico las películas de bR tienen una sensibilidad a la luz medida (no extrema), del orden de 30-80 mJ/cm² (lo cual es el rango típico de los materiales fotocromáticos) y eficiencias del 1-2% [5]. Su resolución es mayor a 5000 líneas/mm, y su rango espectral cubre casi todo el espectro visible; tienen además un número de ciclos de grabado/borrado superior a 10⁶ veces sin degradación de la película.

Existen varios tipos de bR, la que usamos en nuestro trabajo experimental es la llamada bacteriorodopsina natural (BR-WT, por sus siglas en inglés wild-type). Además, existen otras como la bR aspartate-96 la cual se obtiene por una mutación de la bR wild-type, y la bR-326, cuya ventaja sobre las anteriores consiste en tener mejores características como medio holográfico [2,5].

Las películas de bR natural pueden ser preparadas usando una suspensión de membrana púrpura sobre placas de vidrio con placas de PVC que definen la forma final de la película. Después de secarlas toda una noche con aire las máscaras de PVC se remueven [2]. Las películas de bR pueden ser usadas por un largo período de tiempo sin ninguna pérdida detectable de sus propiedades fotocromáticas.

La molécula de bR se caracteriza por tener un complicado ciclo fotoquímico [3.4.5]. Cuando la muestra se ilumina con luz cuya frecuencia puede estar en el rango del rojo al verde, la molécula pasa del estado base (llamado estado B, con máximo de absorción en 570 nm) a través de una serie de estados intermedios, hasta el estado metaestable M (con máximo de absorción en 412 nm y tiempo de vida de 0.5-1 seg). El ciclo se completa con relajación térmica o/y bajo la influencia de luz azul, regresando al estado inicial B. Para fines prácticos se acostumbra representar este ciclo con un sistema de dos niveles de energía (ver figura 3.3), pero más adelante veremos que este esquema no describe correctamente la dinámica de la foto-excitación.

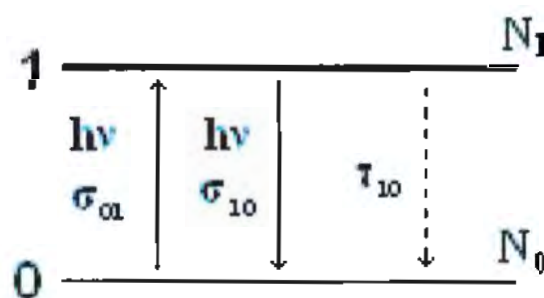


Figura 3.3 Modelo de dos niveles de energía de la bacteriorodopsina.

3.4 Parte experimental.

En este trabajo se utilizó una película de polímero con bR del tipo natural con un espesor de $40\ \mu\text{m}$. Se realizaron pruebas con dos longitudes de onda

diferentes: $\lambda = 543 \text{ nm}$ (verde) y $\lambda = 633 \text{ nm}$ (rojo) de un laser de He-Ne de 5 mW con perfil Gaussiano.

Las muestras no fueron preparadas en nuestro laboratorio, ya se contaba con ellas el iniciar el trabajo.

El arreglo experimental usado es el de la figura 3.4; como puede observarse se trata de un típico arreglo para la aplicación de la técnica z-scan, con algunos dispositivos ópticos adicionales cuyo fin único era atenuar la intensidad del haz de prueba.

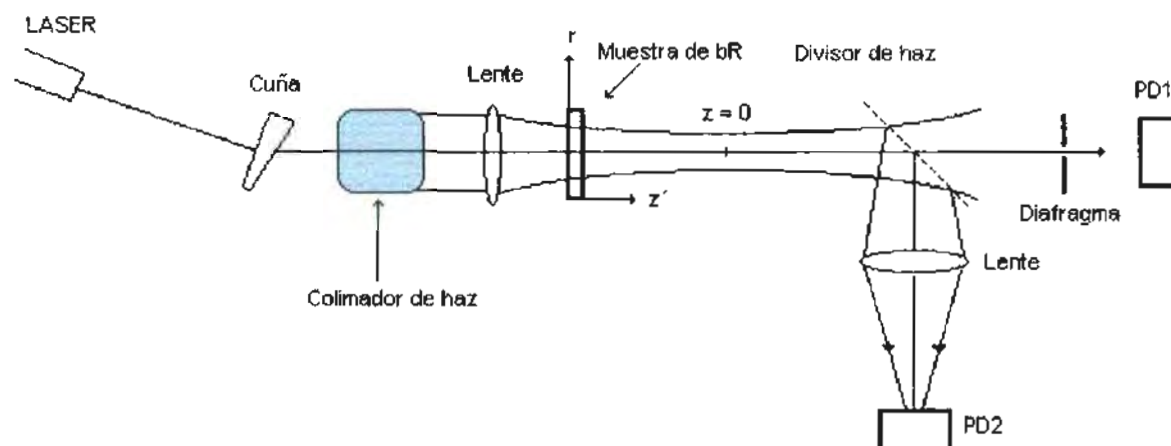


Figura 3.4 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica z-scan a muestras de bR inmersa en películas de polímero.

Por otro lado, como parte del trabajo experimental nosotros también investigamos el comportamiento temporal del “bleaching” de la muestra; para esto se midió en el laboratorio la transmitancia de la bR a las dos longitudes de onda mencionadas ($\lambda = 542 \text{ nm}$ y 633 nm), como función del tiempo y con el apoyo de

un programa para computadora en LABVIEW. Las curvas obtenidas (figura 3.5) muestran la transmitancia de la muestra en un rango de tiempo de 10^{-3} - 10^3 seg; estas gráficas tienen dos secciones que difieren en el tiempo por 2-3 ordenes, donde la saturación de la transmitancia es evidente (esto para ambas longitudes de onda). Primero se observa una región de absorción y saturación debido a que las moléculas de bR pasan del estado base a un estado excitado (para $t < 1$ seg), pero después de un tiempo se observa nuevamente absorción y una segunda saturación; esto significa que hubo absorción de estado excitado y una segunda saturación (para $t > 10$ seg).

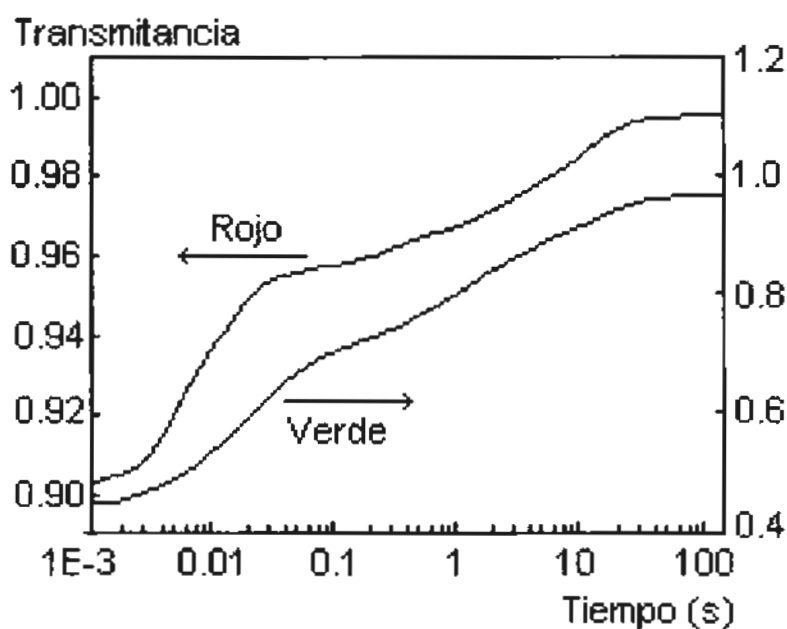


Figura 3.5 Transmitancia de una película de bR por excitación a las longitudes de onda de 633 nm (rojo) y 543 nm (verde) de un laser de He-Ne. La intensidad del haz incidente es 1 y 0.3 mW/cm² respectivamente.

Lo más probable es que para $t > 10$ seg tal comportamiento de la transmitancia testifica la presencia de saturación de estado excitado ESA, mientras

que para $t < 1$ seg el comportamiento corresponde a saturación de estado base GSA . Esta observación experimental permite concluir que existe un esquema de fotoexcitación mas complicado que el que se acepta tradicionalmente.

Al hacer una revisión bibliográfica uno encuentra que el espectro de absorción de la bR inmersa en polímero es el que muestra en la figura 3.6; las dos bandas de absorción que ahí se observan muestran como cambia el espectro de absorción cuando el material es iluminado. En estas curvas se tienen señaladas las longitudes de onda utilizadas en el experimento. Nótese que para $\lambda = 543$ nm la pendiente de la curva es positiva (la absorción del material crece en esta región), mientras que para $\lambda = 633$ nm la pendiente es negativa (la absorción en esta región decrece). De la simple observación de esta curva se esperaría que la luz verde indujera una lente fotorefractiva positiva en la muestra de bR, mientras que la luz roja induciría una lente fotorefractiva negativa; pero los resultados experimentales obtenidos muestran un comportamiento del material que no concuerda con estas ideas.

Este espectro de absorción normalmente se asocia con un modelo de dos niveles de energía para la molécula de bR, pero los resultados experimentales obtenidos muestran un comportamiento peculiar que nos hizo pensar que un modelo de tres niveles de energía explica de manera más adecuada el comportamiento de este material.

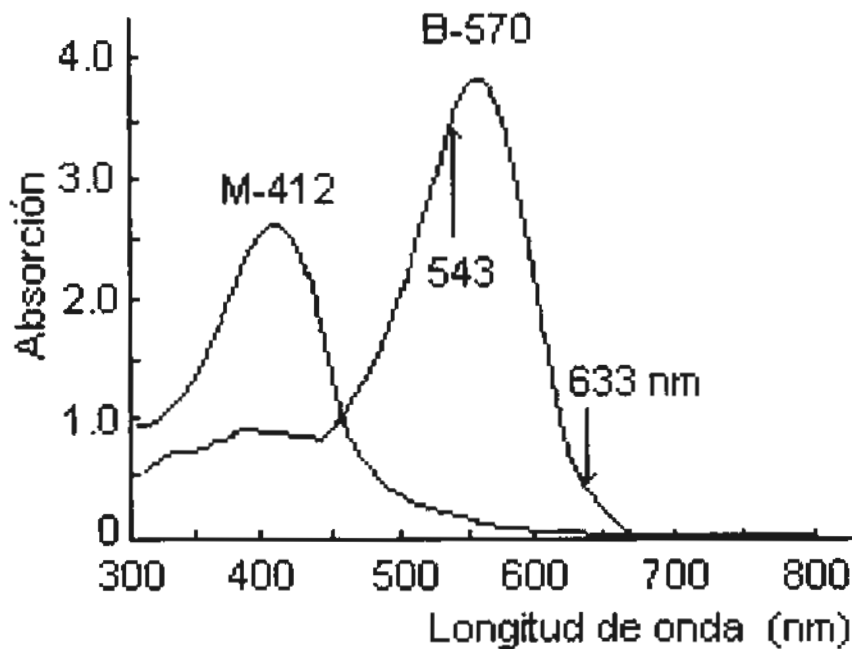


Figura 3.6 Espectro de absorción para películas de bR en polímero.

La figura 3.7 muestra los resultados experimentales de los barridos en z para muestras de bR en polímero. En cada una de estas gráficas se tienen tres curvas para diferentes potencias del haz, las curvas (a) son para una longitud de onda $\lambda = 543 \text{ nm}$, las curvas (b) son para $\lambda = 633 \text{ nm}$.

Nótese que para la potencia más baja (curva 1) con luz verde, el signo de la lente inducida es positivo y para las potencias más altas el signo cambia a negativo. Esto no ocurre para las curvas (b), con luz roja: en ellas la lente siempre se mantiene con el mismo signo (negativo).

La explicación de este fenómeno se encuentra en la siguiente sección.

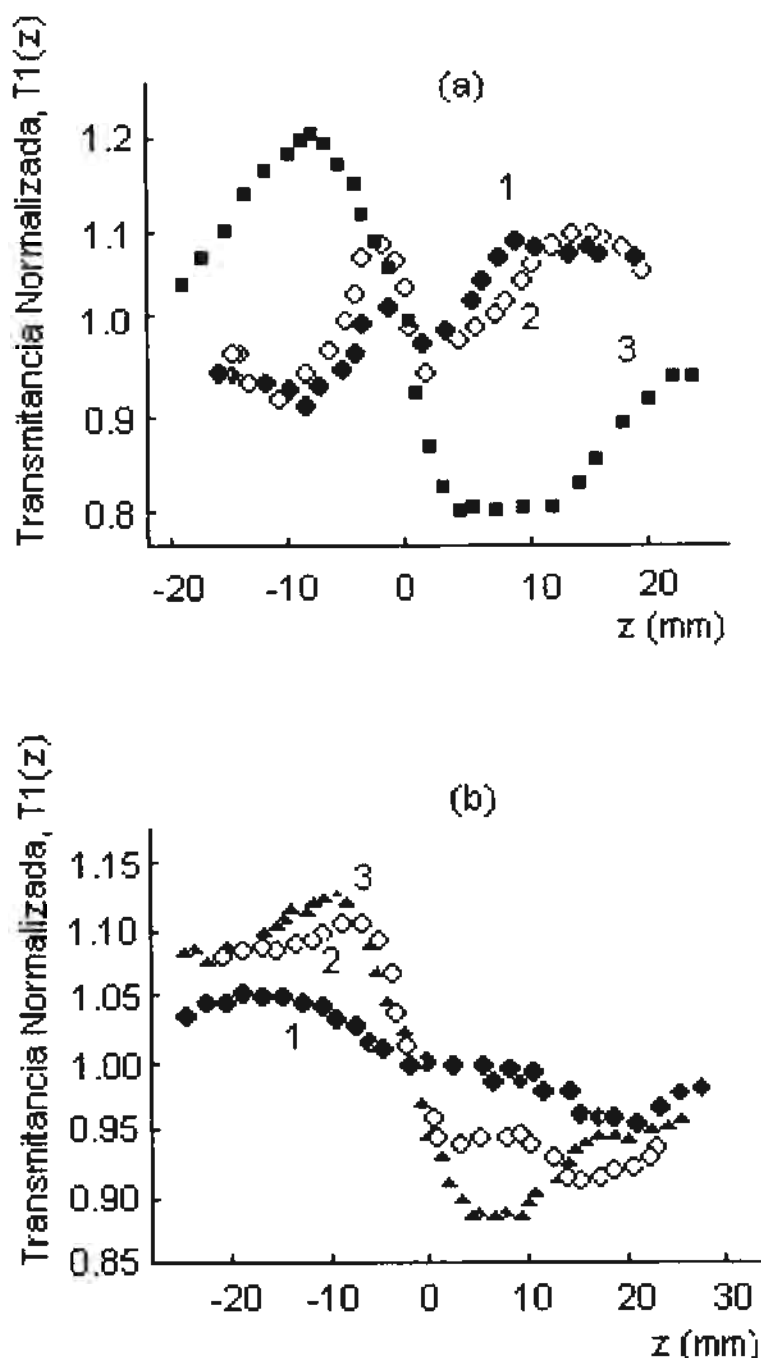


Figura 3.7 Resultados experimentales z-scan para una película de bR a longitudes de 543 (a) y 633 nm (b). La intensidad del haz de prueba incidente es 1 y 4 mW/cm^2 (curvas 1), 5 y 2 mW/cm^2 (curvas 2), y 120 y 250 mW/cm^2 (curvas 3), respectivamente.

3.5 Modelo teórico.

El análisis de las gráficas de la figura 3.7 nos hizo pensar que el modelo de dos niveles de energía para la bR (figura 3.3) no explica adecuadamente el comportamiento fotoquímico de la molécula, por lo cual propusimos un sistema de tres niveles de energía (figura 3.8) que sustituye al modelo de dos niveles ya existente.

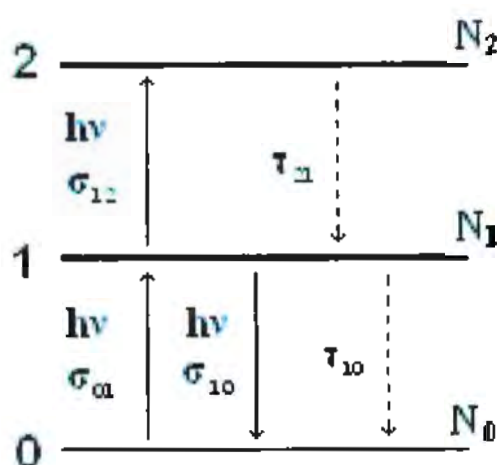


Figura 3.8 Sistema de tres niveles de energía para la bR.

Las ecuaciones (3.1)-(3.4) describen la variación temporal de las poblaciones (en cada nivel de energía) en el modelo de tres niveles de energía propuesto para la bR, en ellas los subíndices 0,1,2 se refieren a los estados base, primer estado excitado y segundo estado excitado respectivamente, N_0 , N_1 , N_2 se refieren a las poblaciones de los niveles y $\sigma_{01,10,12}$ son las secciones transversales

para las diferentes transiciones $0 \rightarrow 1$, $1 \rightarrow 0$, $1 \rightarrow 2$. En estas ecuaciones la intensidad de la radiación que incide sobre la muestra está representada por I , y $h\nu$ es la energía de los fotones de la radiación.

$$\frac{\partial N_0}{\partial t} = -\frac{N_0 \sigma_{01} I}{h\nu} + \frac{N_1 \sigma_{10} I}{h\nu} + \frac{N_1}{\tau_{10}}, \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = \frac{N_0 \sigma_{01} I}{h\nu} - \frac{N_1}{\tau_{10}} + \frac{N_2}{\tau_{21}} - \frac{N_1 \sigma_{12} I}{h\nu} - \frac{N_1 \sigma_{10} I}{h\nu}, \quad (3.2)$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = \frac{N_1 \sigma_{12} I}{h\nu} - \frac{N_2}{\tau_{21}}, \quad (3.3)$$

$$N = N_0 + N_1 + N_2, \quad (3.4)$$

Estas ecuaciones muestran el cambio de las poblaciones en el tiempo de los diferentes niveles de energía. En la ecuación 3.1, por ejemplo, vemos que el primer término $-\frac{N_0 \sigma_{01} I}{h\nu}$ representa la transición del estado base al primer estado excitado, es el cambio en la densidad de partículas debido a absorción de energía. El signo negativo significa que hay disminución de partículas en el estado base porque ellas

pasan al primer estado excitado. El segundo término $\frac{N_1 \sigma_{10} I}{h\nu}$ se refiere a partículas que pasan desde el nivel uno al estado base por procesos de emisión estimulada; el signo positivo de este término representa incremento en la población N_0 . Finalmente, el tercer término $\frac{N_1}{\tau_{10}}$ es el cambio de la población del estado base debido a relajación.

De la misma forma las ecuaciones 3.2 y 3.3 representan cambios de poblaciones en el primer y segundo estado excitado.

Este conjunto de ecuaciones ((3.1)-(3.3)) fue resuelto para la condición de estado estacionario $\frac{\partial N_i}{\partial t} = 0$: las soluciones se encontraron mediante las siguientes operaciones algebraicas:

De la ecuación (3.1) se tiene

$$N_0 \frac{\sigma_{10} I}{h\nu} = N_1 \left[\frac{\sigma_{10} I}{h\nu} + \frac{1}{\tau_{10}} \right] \quad (3.5)$$

ahora, de la ecuación (3.3) obtenemos

$$N_1 \frac{\sigma_{12} I}{h\nu} = \frac{N_2}{\tau_{21}} \quad (3.6)$$

Despejando N_2/τ_{21} de la ecuación (3.2)

$$\frac{N_2}{\tau_{21}} = N_1 \left[\frac{1}{\tau_{10}} + \frac{\sigma_{12}I}{h\nu} + \frac{\sigma_{10}I}{h\nu} \right] - N_0 \frac{\tau_{10}I}{h\nu} \quad (3.7)$$

a continuación se despeja N_2 de ecuación (3.6)

$$N_2 = \frac{\tau_{21}\sigma_{12}I}{h\nu} \equiv N_1 S_{12} \quad (3.8)$$

donde

$$S_{12} = \frac{\sigma_{12}\tau_{21}I}{h\nu} \quad \text{ya que} \quad S_{12} = \frac{I}{I_{12}} = \frac{I}{h\nu / \sigma_{12}\tau_{21}}$$

Así, de la ecuación (3.7)

$$\begin{aligned} N_0 \frac{\tau_{01}I}{h\nu} &= N_1 \left[\frac{1}{\tau_{10}} + \frac{\sigma_{12}I}{h\nu} + \frac{\sigma_{10}I}{h\nu} \right] - \frac{N_2}{\tau_{21}} \\ &= \left[\frac{1}{\tau_{10}} + \frac{\sigma_{12}I}{h\nu} + \frac{\sigma_{10}I}{h\nu} - \frac{S_{12}}{\tau_{21}} \right] \end{aligned}$$

reduciendo términos tenemos

$$N_0 \frac{\tau_{01} I}{h\nu} = \frac{N_1}{\tau_{10}} \left[1 + \frac{\sigma_{10} \tau_{10} I}{h\nu} \right] = \frac{N_1}{\tau_{10}} [1 + S_{10}]$$

Despejando N_0 y reduciendo términos

$$N_0 = N_1 \left[\frac{1}{S_{01}} + \frac{S_{10}}{S_{01}} \right] \quad (3.9)$$

De la ecuación (3.4) N_2 es igual a

$$N_2 = N - N_0 - N_1,$$

sustituyendo N_2 en la ecuación (3.6) y utilizando el resultado (3.9) tenemos

$$N_1 S_{21} = N - N_1 - N_1 \left[\frac{1}{S_{01}} + \frac{\sigma_{10}}{\sigma_{01}} \right]$$

Haciendo desarrollos algebraicos y despejando N_1 en la ecuación (3.9) tenemos

$$N_1 = \frac{S_{01}}{1 + S_{10} + S_{01} + S_{01} S_{21}} \quad (3.10)$$

Por otra parte, sustituyendo N_1 en la ecuación (3.9) tenemos

$$N_0 = N \frac{1 + S_{10}}{1 + S_{10} + S_{01} + S_{01}S_{21}} \quad (3.11)$$

Sustituyendo las expresiones para N_0 y N_1 en la ecuación (3.4) obtenemos la expresión para N_2 .

$$N_2 = \frac{S_{01}S_{12}}{1 + S_{10} + S_{01} + S_{01}S_{12}} \quad (3.12)$$

De esta manera se encuentran las expresiones para N_0 , N_1 , N_2 .

$$N_0 = \frac{1 + S_{10}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} N, \quad (3.13)$$

$$N_1 = \frac{S_{01}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} N, \quad (3.14)$$

$$N_2 = \frac{S_{01}S_{12}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} N, \quad (3.15)$$

donde $S_{10,01,12}$ son los parámetros de saturación que pueden ser calculados como el cociente de la intensidad sobre las respectivas intensidades de saturación ($I_{s01} = \frac{h\nu}{\sigma_{01}\tau_{10}}$, $I_{s10} = \frac{h\nu}{\sigma_{10}\tau_{10}}$ y $I_{s12} = \frac{h\nu}{\sigma_{12}\tau_{21}}$).

Ahora, dependiendo del nivel de energía, la bR posee una determinada susceptibilidad $\chi_{0,1,2}$. Usando la aproximación de Catunda [6] y tomando en cuenta las soluciones (3.13)-(3.15), uno puede obtener la variación total de la susceptibilidad (ver apéndice B) como

$$\Delta\chi = \frac{\Delta\chi_{10}S_{01} + \Delta\chi_{20}S_{01}S_{12}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})}, \quad (3.16)$$

donde $\Delta\chi_{10} = \chi_1 - \chi_0$ y $\Delta\chi_{20} = \chi_2 - \chi_0$

Teniendo en mente la conocida relación entre la susceptibilidad χ y el índice de refracción n

$$\chi = (3/4\pi)[(n^2 - 1)/(n^2 + 2)] \quad (3.17)$$

los cambios en el coeficiente de absorción $\Delta\alpha$ y el índice de refracción para el fotociclo aceptado están dados por las ecuaciones (3.18) y (3.19).

$$\Delta\alpha = \alpha_0 \frac{S_{10} - S_{01} - S_{12} \left(S_{01} - \frac{\tau_{10}}{\tau_{21}} \right)}{1 + S_{10} + S_{01} (1 + S_{12})} \quad (3.18)$$

$$\Delta n = \frac{2\pi(n^2 + 2)^2}{9n} \times \frac{\Delta\chi_{10} S_{01} + \Delta\chi_{20} S_{01} S_{12}}{1 + S_{10} + S_{01} (1 + S_{12})} \quad (3.19)$$

Nota: La derivación de la ecuaciones (3.18) y (3.19) puede verse en el apéndice B.

Los cambios en el signo y magnitud de las susceptibilidades χ_{10} , χ_{20} dependen de la longitud de onda de excitación. Este cambio en signo se refleja en la forma (negativa o positiva) y la distancia focal de la lente inducida por el haz del laser en el medio bajo estudio.

Tomando en cuenta las ecuaciones (3.18) y (3.19) uno puede encontrar las ecuaciones correspondientes rutinariamente usadas en la técnica z-scan para el cálculo del coeficiente de absorción (ecuación (3.20)) y la diferencia de fase del

campo eléctrico para el haz Gaussiano propagándose en la dirección +z (ecuación (3.21)).

$$\alpha(z, z', r) = \alpha_0 \exp(-2r^2 / w^2) \frac{S_{10} - S_{01} - S_{12} \left(S_{01} \exp(-2r^2 / w^2) - \frac{\tau_{10}}{\tau_{21}} \right)}{1 + \exp(-2r^2 / w^2) [S_{10} + S_{01} (\exp(-2r^2 / w^2) (1 + S_{12}))]} \quad (3.20)$$

$$d\Delta\phi(z, z', r) = dz \frac{2\pi(n^2 + 2)^2}{9n\lambda} \frac{\Delta\chi_{10} S_{01} \exp(-2r^2 / w^2) + \Delta\chi_{20} S_{01} S_{12} \exp(-4r^2 / w^2)}{1 + \exp(-2r^2 / w^2) [S_{10} + S_{01} (\exp(-2r^2 / w^2) (1 + S_{12}))]} \quad (3.21)$$

aquí z es la coordenada de posición de la superficie frontal de la muestra, z' es una coordenada dentro de la muestra medida respecto de su cara frontal (ver detalle en figura 3.4), r es la coordenada radial, $\alpha_0 = \sigma_{01} N$, $w = w_0 [1 + (z/z_0)^2]^{1/2}$ es el radio del haz w_0 y $z_0 = kw_0^2/2$ son el radio de la cintura y la longitud de difracción respectivamente. En las formulas anteriores nosotros aceptamos que $S_{01,10,12} \equiv S_{01,10,12}(z, z', r = 0)$. Nosotros también despreciamos la divergencia del haz dentro de la muestra y la consideramos ópticamente delgada [7].

La diferencia de fase $\Delta\phi(z, r)$ puede ser encontrada por integración de la ecuación (3.21) sobre el espesor de la lente L . La forma de la diferencia de fase resultante, a intensidades que exceden la saturación, es considerablemente diferente de la forma Gaussiana (ver figura 3.9). Además, en el caso de $\Delta\chi_{10}$ de

signos opuestos, la lente fotorefractiva inducida en la muestra tiene en su plano las áreas equivalente tanto a valores negativos como positivos de la parte no lineal del índice de refracción.

En la figura (3.9) puede verse que la forma del cambio de fase a intensidades que exceden la saturación, difiere de una Gaussiana. Además, en el caso de $\Delta\chi_{10}$ de signos opuestos la lente fotorefractiva inducida en la muestra tiene en su plano las áreas equivalentes a valores positivos o negativos de la parte no lineal del índice de refracción.

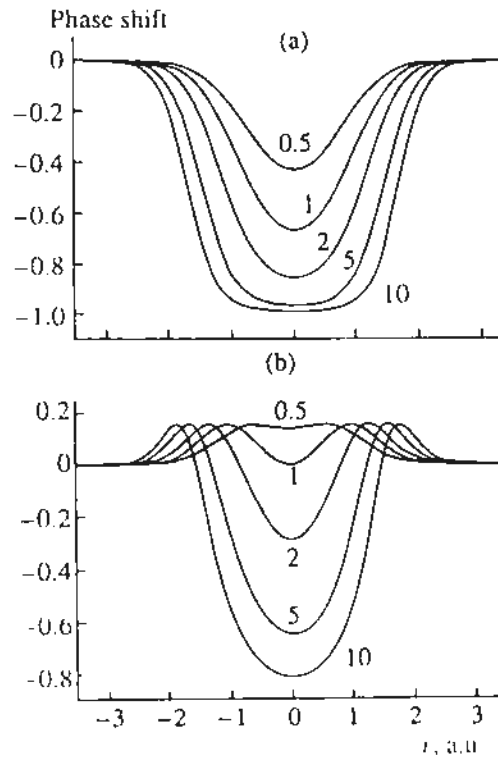


Figura 3.9 Perfiles teóricos de diferencia de fase para un haz de prueba con variación de la intensidad incidente. El caso (a) es el mismo que el (b) pero en este último existe una diferencia en el signo de la susceptibilidad χ para un valor de I . Las curvas están etiquetadas con el valor del parámetro de saturación S_{0I} .

La ley del cambio del haz Gaussiano durante la propagación a lo largo de la muestra está dada por

$$E_{out}(z, r) = E_0 \frac{w_0}{w} e^{-0.5 \times OD(z, r)} e^{-\left(\frac{r^2}{w^2} + \frac{ikr^2}{2R(z)} \right)} e^{-i\Delta\phi(z, r)} \quad (3.22)$$

donde E_0 es la amplitud del campo eléctrico sobre eje en la cintura. $R(z) = z[1 + (z_0/z)^2]$ es el radio de curvatura del frente de onda, y $OD(z, r) = \int \alpha(z, z', r) dz'$ es la densidad óptica de la muestra.

Es fácil derivar una expresión para la transmitancia normalizada, $T(z)$, de un pinhole colocado después de la muestra

$$T(z) = \frac{E_a(z)E_a^*(z)}{E_a(0)E_a^*(0)T_0(z)} \quad (3.23)$$

donde $T_0(z)$ es la transmitancia de la muestra integrada y el campo $E_a(z)$ está dado por la integral de Kirchoff sobre un pinhole de radio R :

$$E_a(z) = ik \int_0^R E_{out}(z, r) \frac{2\pi r dr}{(d-z)} \quad (3.24)$$

La figura 3.10 da las gráficas teóricas de la transmitancia normalizada $T(z)$ para el caso de coeficiente de absorción inicial $\alpha_0 = \alpha(I_0 = 0) = 15 \text{ mm}^{-1}$, $L = 0.05 \text{ mm}$, $S_{12}/S_{01} = 0.1$, $S_{10}/S_{12} = 0.01$ y $\tau_{10}/\tau_{01} = 0.01$, donde I_0 es la intensidad del haz de prueba sobre eje.

En la figura 3.11 es posible comparar los resultados experimentales (fig. 3.11(a)) con los resultados teóricos obtenidos numéricamente (fig. 3.11(b)).

Con esto se demuestra que las curvas z-scan dependen drásticamente no solo de la longitud de onda del haz, sino también de su intensidad; el modelo teórico está en excelente concordancia con los resultados experimentales. Es necesario señalar que el modelo teórico desarrollado solo toma en cuenta el hecho de la deformación del frente de onda se debe a la saturación de la absorción (GS) y (ES) de una lente fotorefractiva inducida en la muestra, sin tomar en cuenta la formación de una lente térmica, ya que la temperatura de la muestra no era tan significativa como para que se diera la formación de lente térmica en ella.

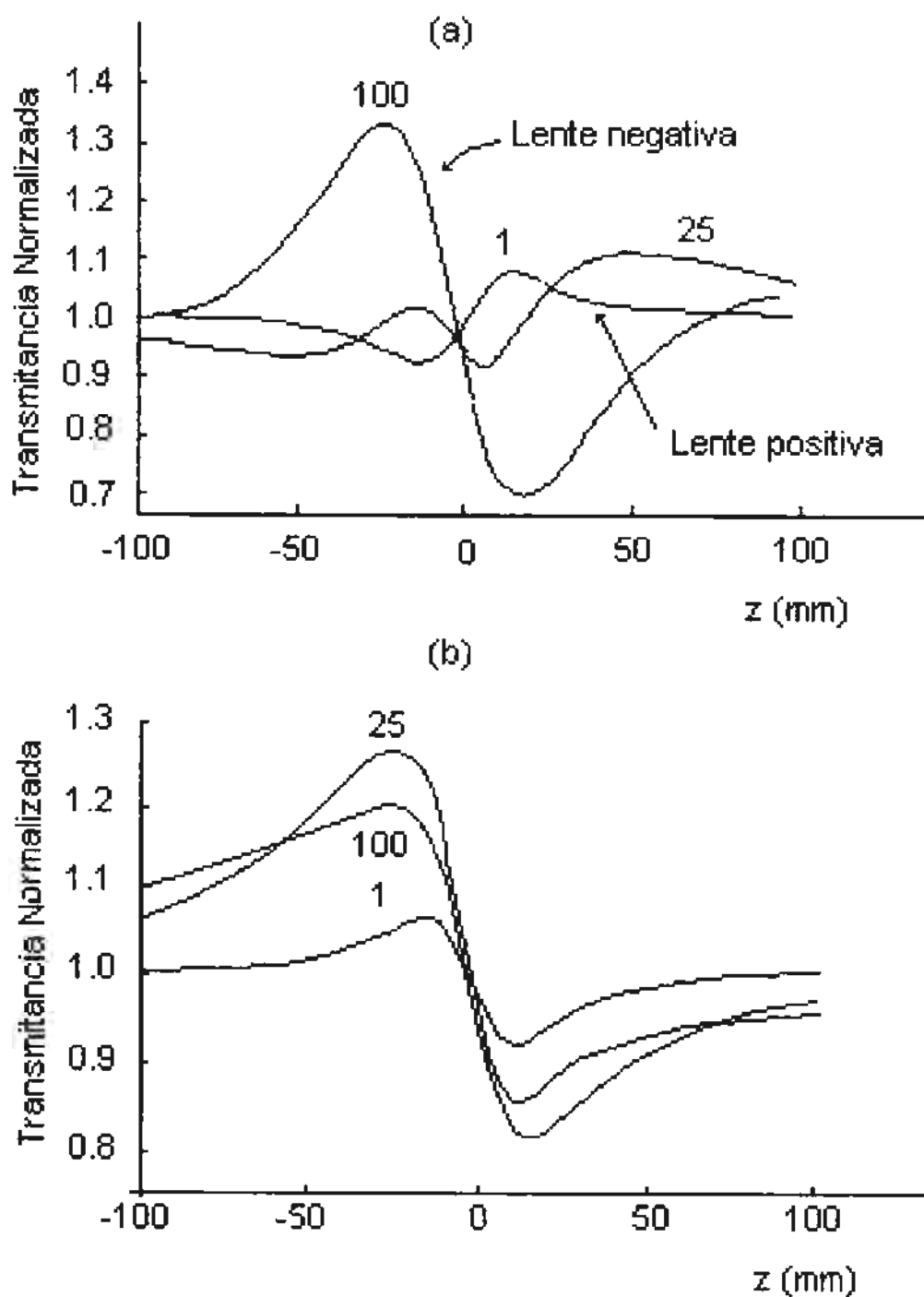


Figura 3.10 Gráficas z-sacan teóricas para muestras de bR inmersa en polímero, obtenidas bajo el modelo de la figura 3.8. En el caso (a) hay un cambio en el signo de la lente, mientras que en (b) el signo se mantiene constante. Las curvas muestran los valores del parámetro de saturación S_{01} .

En las gráficas anteriores hay presentes dos clases de curvas, las primeras corresponden al caso de $\Delta\chi_{i,0}$ del mismo signo (digamos, se considera la pendiente derecha de la curva de absorción para la bR de la figura 3.6, con $\lambda = 633\text{ nm}$), y las segundas corresponden al caso donde $\Delta\chi_{1,0}$, $\Delta\chi_{2,0}$ tienen signos opuestos (se considera la pendiente izquierda de la banda de absorción de la bR, con $\lambda = 543\text{ nm}$). Así las z-scan teóricas tienen características semejantes a las observadas experimentalmente. Sin tomar en cuenta detalles, podemos notar que todas estas peculiaridades son explicadas por las complicadas distorsiones de las lentes inducidas por el haz de prueba en la muestra bajo estudio (figura 3.9).

En la figura 3.11 se pueden apreciar las semejanzas entre curvas experimentales (a) y curvas teóricas (b).

Finalmente estimamos los parámetros de la de la refracción no lineal (ver tabla 3.1) en la muestra probada, basándonos en la comparación entre el experimento y la teoría. Concluimos que en nuestro caso $\Delta n = 0.52 \times 10^{-3}$, $n_2 = 2.5\text{ cm}^2/\text{W}$, para $\lambda = 543\text{ nm}$ y $I_0 = 0.2\text{ mW/cm}^2$; $\Delta n = 0.73 \times 10^{-3}$, $n_2 = 0.21\text{ cm}^2/\text{W}$ para $\lambda = 633\text{ nm}$ y $I_0 = 4\text{ mW/cm}^2$.

Tabla 3.1 Valores de Δn para la bR inmersa en polímero.

Longitud de onda	n_2	Δn
$\lambda=543\text{ nm}$	2.5	0.53×10^{-3} $I_0=0.1\text{ mW/cm}^2$
$\lambda=633\text{ nm}$	0.21	0.73×10^{-3} $I_0=4\text{ mW/cm}^2$

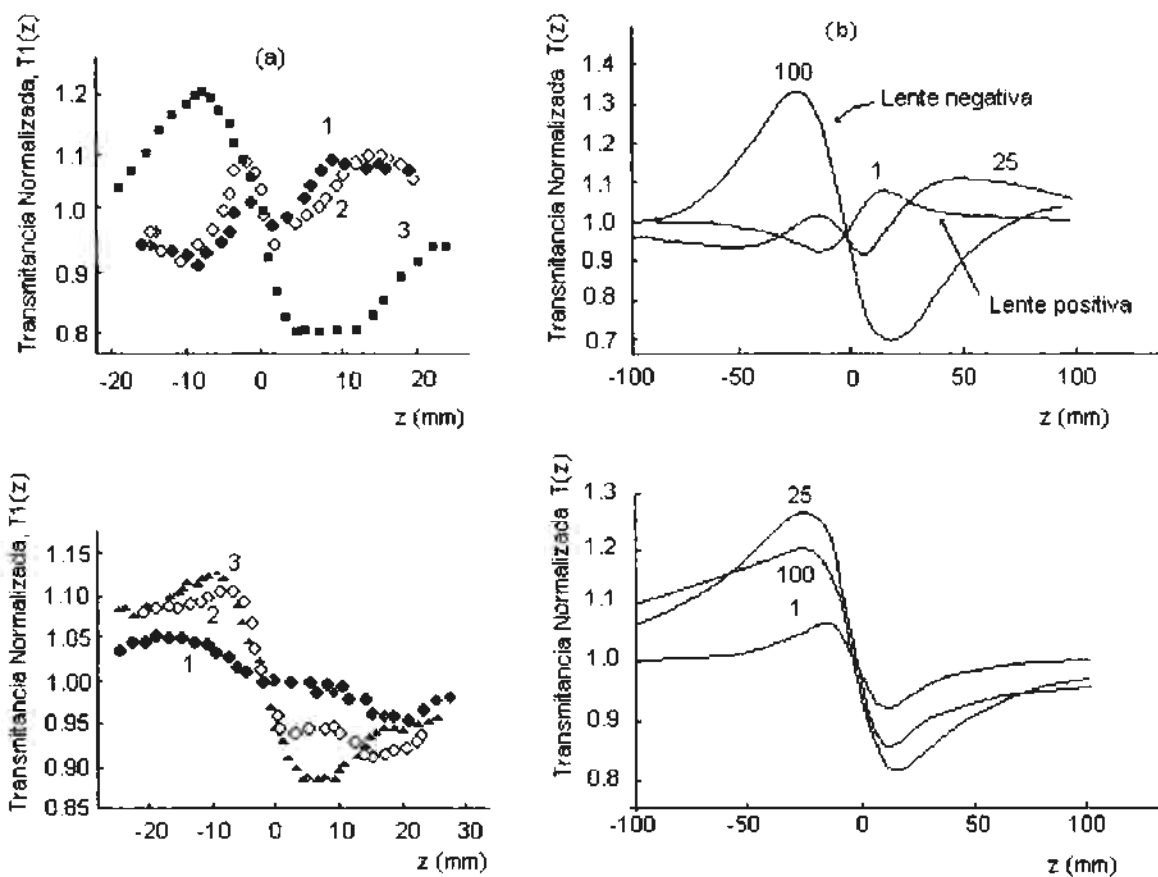


Figura 3.11 Comparación gráficas z-scan experimentales (a) con z-scan teóricas para muestras de bR inmersa en película de polímero.

3.6 Conclusiones.

Durante esta investigación aplicamos la técnica z-scan a muestras de bR natural inmersa en polímero, estos materiales son medios saturables con absorción

de estado excitado, son materiales más complejos que aquellos para los cuales se elaboró inicialmente la técnica.

Obtuvimos que para diferentes potencias del haz de prueba podemos tener no solo distorsión de curvas debido a distorsión en la lente inducida, también puede tenerse cambio de signo de la lente.

Estos resultados que hemos mencionado son contribuciones originales al estudio de este tipo de materiales. Con este trabajo demostramos que se puede aplicar la técnica z-scan a cualquier medio saturable con más de tres niveles de energía debido a que sabemos como preparar la prueba.

Referencias

- [1] Walter Koechner, Solid-State Laser Engineering, Springer Series in Optical Sciences.
- [2] Norbert Hampp, Christoph Bräuchle, and Dieter Oesterhelt, "Bacteriorhodopsin wildtype and variant aspartate-96→asparagine as reversible holographic media" *Biophysics J. Biophysical Society* Vol. 58, July 1990, pp 83-93.
- [3] T. Renner and N. Hampp, "Bacteriorhodopsin-films for dynamics time average interferometry", *Optics Communication*, Vol.96 (1993) pp 142-149.
- [4] John D. Downie and Doğan A. Timuçin, "Modeling the grating-formation process in thick bacteriorhodopsin films", *Applied Optics*, Vol 37, No.11, (1998), pp 2102-2111.
- [5] Norbert Hampp, Ralph Thoma, Dieter Oesterhelt and Christoph Bräuchle. "Biological photochrome bacteriorhodopsin and its genetic variant Asp96→Asn media for optical pattern recognition", *Applied Optics*, Vol 31, No.11, (1992), pp 1834-1841.
- [6] Catunda, T., Cansian, A.M., and Castro, J.C., 1991, *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**,820.
- [7] Sheik-Bahae, M. Said, A.A. Wei, T.-H, et al., 1990, *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 760.
- [8] Bahaa E.A. Saleh, Malvin Carl Teich, *Fundamentals of Photonics*, A Wiley-Intercience Publication, John Wiley & Sonsm Inc.

- [9] Yu. O Barmenkov, N.M. Kozhevnikov, and Yu. Liposkaya, "Measurement of parameters of photorefractive media for recording dynamic holograms", *Opt. Spectrosc.*, **64**, (1988) pp. 135-137.
- [10] Kir'yanov, A.V., Maslyanitsyn, I.A., Savranskii, V.V., et al., 1999, *Quantum Electronics* **29**, 85.
- [11] Kir'yanov, A.V., Barmenkov, Yu.O., Starodumov, A.N., et al., 2000, *Opt. Comm.* **177**, 417.
- [12] M. Sheik-bahae, A.A. Said, and E. W. Van Stryland, "High- sensitivity, single-beam n_2 measurements", *Optics Letters*, Vol 14, No. 17 (1989), pp 955-957.
- [13] Mansoor Sheik-bahae, Ali A. Said, Tai-huei Wei, David J. Hagan, and E.W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol 26, No. 4, (1990), pp 760-769.

ARTICULO DERIVADO DE ESTE TRABAJO.

- "Application of the Z-scan Technique to a Saturable Medium with Excited State Absorption", Maria del Rayo, Yu. Barmenkov, A.V.Kir'yanov, A. N. Starodumov, J. Vanhanen, and T. Jaaskelainen, *Laser Physics*, Vol II, No. 4, 2001, pp 502-506.

CAPITULO IV

APLICACIÓN DE LA TÉCNICA Z-SCAN A UN CRISTAL Cr^{4+} :YAG

Los cristales formados por Cr^{4+} en granate de itrio y aluminio (Cr^{4+} :YAG) son materiales muy usados como componentes rutinarios de Q-switch pasivos en laseres de neodimio e iterbio, así como medios activos en laseres de estado sólido [1-3].

Los cristales Cr^{4+} :YAG poseen características no lineales interesantes como la latente anisotropía de la absorción en los iones de Cr^{4+} [5-8] que aparece en el estado de saturación del estado base (GSA), cuando el cristal es probado con potente radiación de resonancia. A pesar de todas las investigaciones, e información, que se tienen sobre este cristal hay aspectos de la física del Cr^{4+} :YAG que no están estudiados detalladamente, uno de ellos es el cambio no lineal del índice de refracción Δn con bombeo continuo (CW). Se han hecho investigaciones respecto de este problema, pero en ellos solo se ha tratado el caso de excitación con pulsos cortos (ns) [5,8].

En este capítulo se estudia experimentalmente la parte no lineal del índice de refracción Δn en cristales Cr^{4+} :YAG aplicando la técnica z-scan y usando radiación continua a la longitud de onda de $1.06 \mu\text{m}$. El problema de la absorción

anisotrópica se evade usando un haz de prueba cuya orientación en su polarización coincidía con la orientación de uno de los iones del grupo Cr^{4+} en el YAG.

En esta investigación se encontró que en condiciones de excitación CW existen dos contribuciones principales a la refracción no lineal, la primera es el cambio en el índice de refracción causado por la perturbación de población de los iones de Cr^{4+} , efecto que en adelante llamaremos PP; la segunda contribución es el efecto de la lente térmica (que en adelante llamaremos efecto TL) causado por el calentamiento inhomogeneo de la muestra [11,12].

El análisis de las características de la refracción no lineal en un cristal Cr^{4+} :YAG y la discriminación de los efectos que la causan (PP o TL) son problemas de gran importancia que se abordarán y se analizarán en este trabajo a través de la aplicación de la técnica z-scan; los resultados obtenidos se expondrán en detalle mas adelante.

4.1 Aspectos generales de los cristales Cr^{4+} :YAG.

El granate de itrio y aluminio (yttrium aluminum garnet \equiv YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$)) ha encontrado una enorme gama de aplicaciones como material anfitrión (host material) en la tecnología de lasers. El YAG, es el miembro mas usado de la familia de los granates debido a sus excelentes propiedades mecánicas y térmicas; es un cristal duro con conductividad térmica alta.

Bajo condiciones normales de crecimiento de cristales, el Cr entra a la matriz cristalina del YAG como iones Cr^{3+} (en lugares octaédricos de dicha matriz). Debido a las condiciones de oxidación del crecimiento y/o al dopaje con carga compensadora (el YAG tiene que ser co-dopado con Ca^{2+} o Mg^{2+} como carga compensadora para obtener Cr tetravalente) se cree que finalmente los iones Cr^{4+} forman un arreglo tetraédrico coordinado en el YAG y con ello se obtienen cristales $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ [10].

4.2 Parte experimental.

La figura 4.1 muestra el arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica z-scan a una muestra de cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. Se trata de un típico arreglo z-scan con algunos elementos adicionales cuya utilidad comentaremos en su momento.

Para la realización de este experimento se utilizó un haz de laser de fibra óptica de iterbio con distribución espacial TEM_{00} pura, de emisión continua (CW), longitud de onda $\lambda=1.06 \mu\text{m}$ y potencia máxima de salida 10 W. El estudio fue llevado a cabo para una orientación especial del haz y de su polarización (ver figura 4.2).

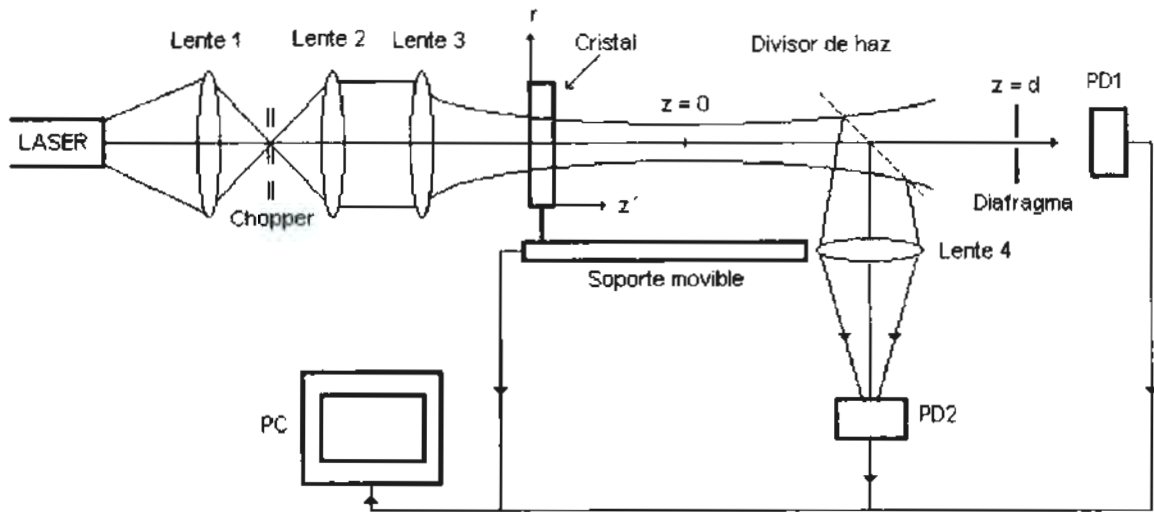


Figura 4.1 Arreglo experimental usado para la aplicación de la técnica z-scan a una muestra de cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$.

La orientación del haz de prueba respecto de la muestra era tal que la radiación se propagaba a lo largo del eje $[100]$ del cristal, a la vez que la polarización azimutal (E_p) coincidía con la orientación de uno de los iones del grupo Cr^{4+} en el YAG ($\theta = 0$ en el experimento). Tal geometría permitió evadir el problema de la absorción anisotrópica no lineal, ya que no es el objetivo de este trabajo el estudio de este fenómeno.

El haz del laser fue colimado por la lente 2 y posteriormente enfocado por la lente 3. La potencia del haz de entrada se vario mediante filtros neutros entre el laser y el arreglo z-scan (no aparecen en la figura). Un elemento importante en el arreglo es el "chopper", el cual permitió mantener la misma intensidad de bombeo

sobre la muestra pero con decremento significativo de la temperatura (1/60). Esto último era importante para evitar variaciones en los parámetros (σ , τ , etc.) de la muestra [10].

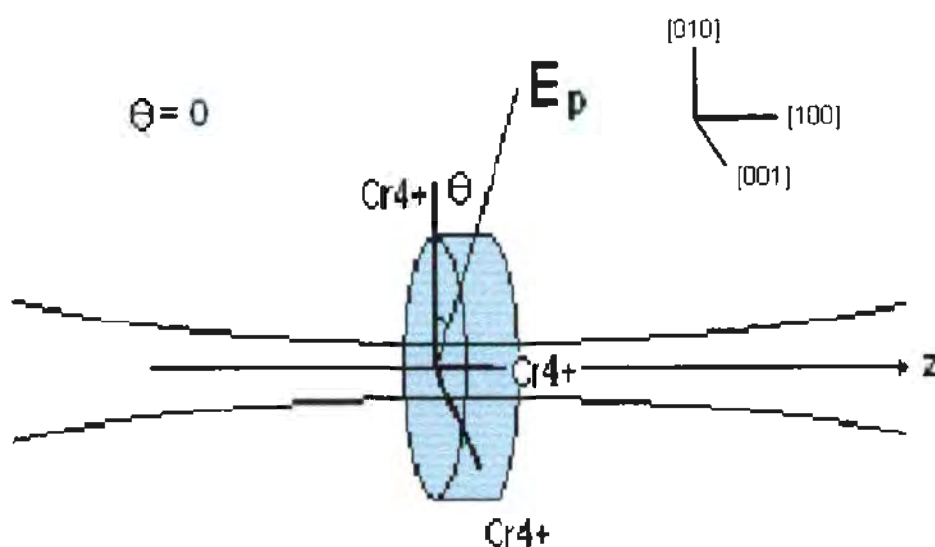


Figura 4.2 Esquema que muestra la interacción entre el haz de prueba y el cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. E_p da la orientación de la polarización azimuthal del haz respecto de los iones de Cr^{4+} .

La muestra a probar tenía un espesor $L = 0.3$ cm, diámetro igual a 1 cm, transmitancia no saturada (T_{0m}) de 31%, y transmitancia completamente saturada (T_{0im}) de 85%.

Este arreglo se automatizó mediante el uso de un soporte móvil (con la muestra del cristal colocada sobre él) que aportaba una señal de voltaje de un reóstato lineal conectado a él, este voltaje, así como las señales de los fotodetectores PD1 y PD2, fueron grabados simultáneamente y analizados por una

computadora PC equipada con un puerto de adquisición de datos y un programa hecho en LABVIEW.

4.3 Análisis de los resultados experimentales

El $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, como absorbedor saturable que es, tiene una curva de transmitancia como la que se muestra en la figura 4.3. Cabe aclarar que esta curva no es un resultado experimental, es simplemente la representación del comportamiento de la transmitancia del cristal en función de la potencia incidente. En nuestro experimento la potencia de prueba se varió de 0 a 10 Watts para lograr la saturación de la muestra.

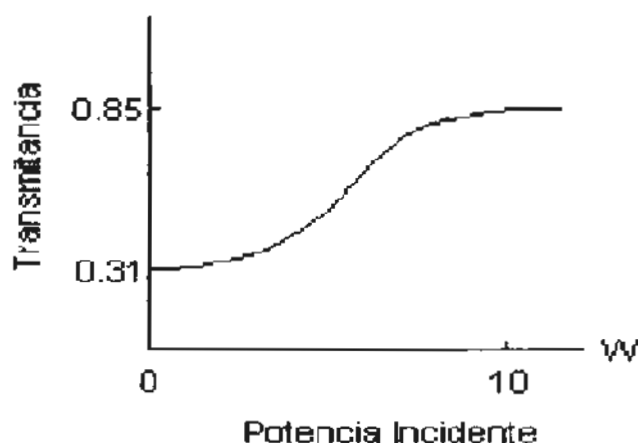


Figura 4.3 Curva de saturación del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$. Se observa que $T_{0_{in}} = 31\%$ y $T_{0_{lin}} = 85\%$.

Como primer paso, la muestra de $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ fue sometida a pruebas para encontrar

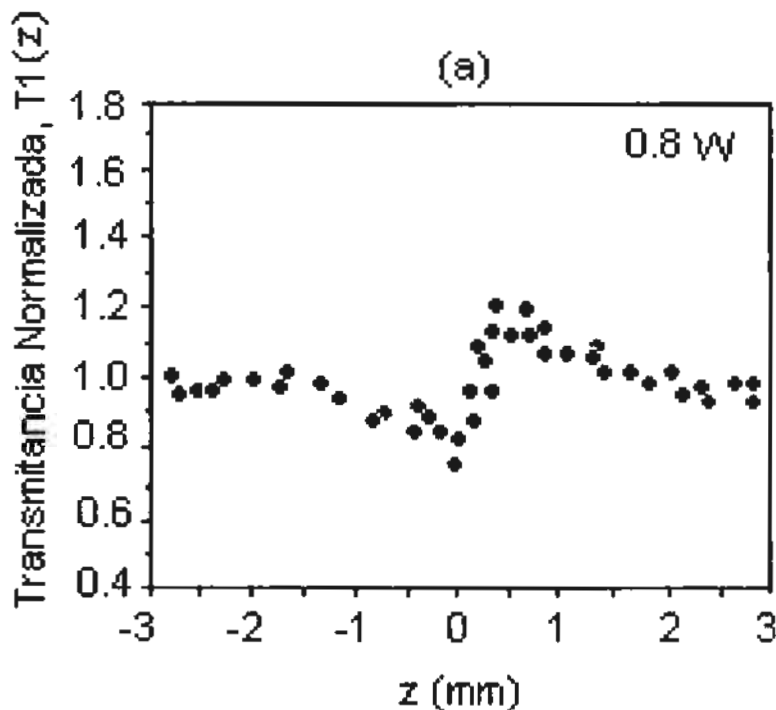
los valores fiables de su transmitancia en estados no saturados ($T_{0,m}$) y de saturación total ($T_{0,fin}$). El arreglo utilizado para estas mediciones es el descrito en las referencias [8,16], donde un cristal de prueba es irradiado por un laser pulsado (10 ns) de Nd ($\lambda=1.06 \mu\text{m}$) con forma prácticamente rectangular del haz sobre el cristal. De este experimento se determinó $T_{0,m} \approx 31\%$ y $T_{0,fin} \approx 85\%$.

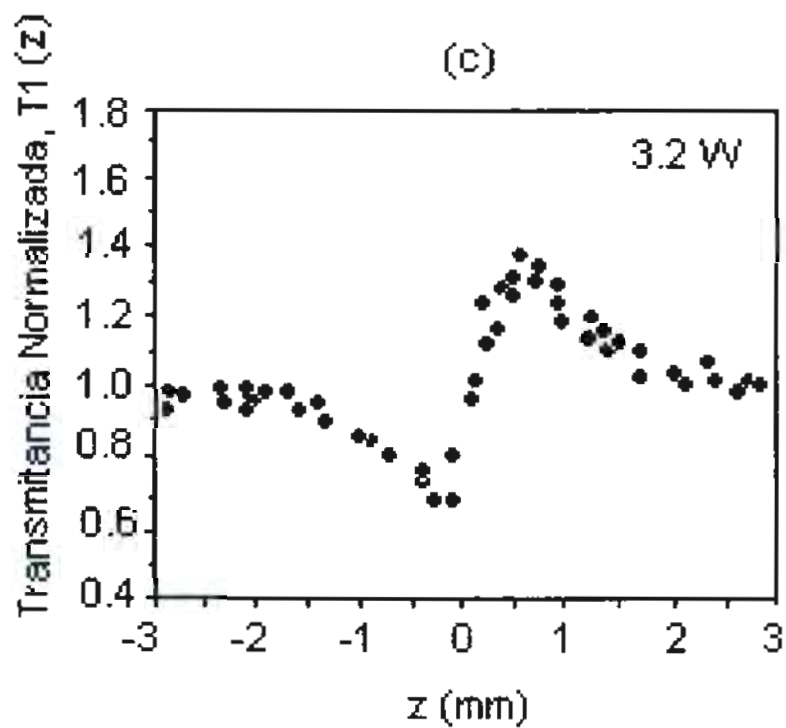
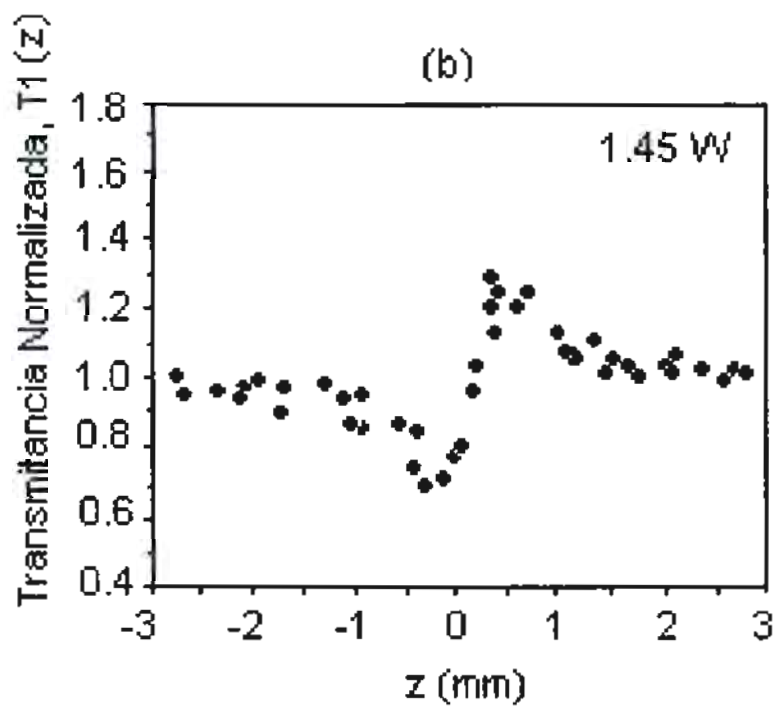
Después de haber determinado los valores de $T_{0,m}$ y $T_{0,fin}$ se montó el arreglo experimental de la figura 4.1 para aplicar la técnica z-scan a la muestra de $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$; de los datos obtenidos se hicieron gráficas de los barridos en z que muestran el cambio no lineal de la transmitancia (y por tanto del índice de refracción Δn) del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ para aperturas abierta (no se muestran) y para apertura cerrada [11,12] (figura 4.4).

La figura 4.4 muestra las gráficas z-scan experimentales para apertura cerrada $T_1(z)$, cuando un pinhole ($S = 0.1$) es colocado antes del fotodiodo PD1, a 0.8, 1.45, 3.2 y 6.4 Watts de potencia incidente. Estos trazos fueron obtenidos al dividir la transmitancia de la muestra sobre los resultados de los barridos en z para apertura abierta normalizada, esto es, la señal del fotodetector PD2 da después de la normalización sobre la potencia de entrada, los valores z-scan para apertura abierta $T_0(z)$ (ver fig 2.2) . La señal del fotodetector PD1, después de la normalización sobre $T_0(z)$ da los valores para la apertura cerrada $T_1(z)$, que son los mostrados en la figura 4.4.

Al analizar las gráficas 4.4 vemos que son del tipo "valle-pico", lo cual asegura que la correspondiente lente no lineal, inducida dentro de la muestra, es

positiva. Otra característica peculiar es la creciente asimetría en los barridos z-scan al incrementarse la potencia de entrada, es decir, nótese como la gráfica alcanza, por arriba de la transmitancia igual a uno, un valor mayor (en valor absoluto) que la grafica por debajo de la misma. Este hecho nos hizo sospechar de la existencia de un efecto adicional al efecto fotorefractivo (efecto PP) que se da en un material no lineal por incidencia de luz sobre de él, ya que cuando solo existe efecto fotorefractivo las graficas de los barridos en z no presentan la asimetría que estamos comentando. El efecto adicional al que nos referimos es el efecto térmico (efecto TL), el cual induce una lente térmica dentro del cristal debido a inhomogeneidad de temperatura en la muestra





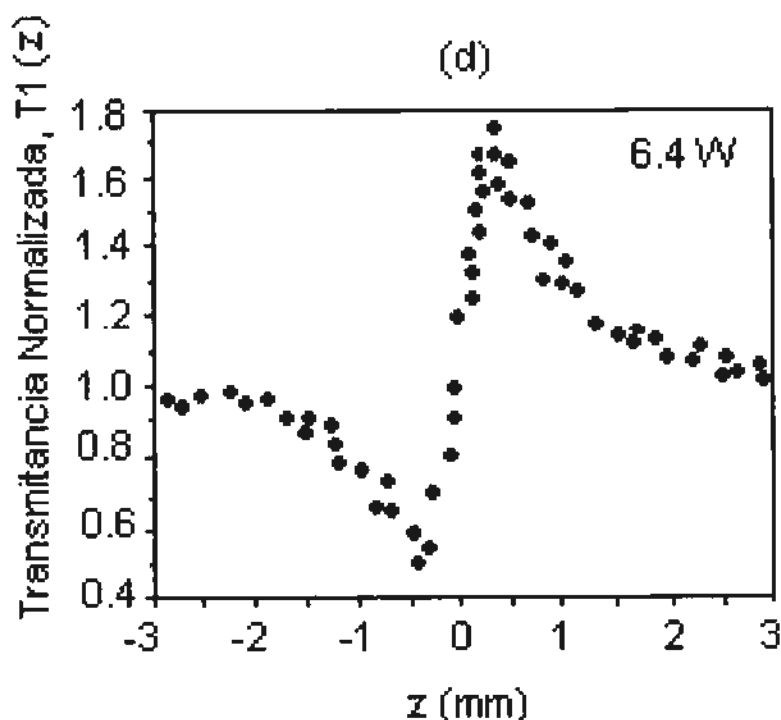


Figura 4.4 Resultados experimentales para barridos en z con apertura cerrada $T_1(z)$ para diferentes potencias de excitación.

Por otro lado, se hicieron gráficas de transmitancia normalizada máxima ($T_{1,max}$) contra potencia incidente (figura 4.5); en ellas $T_{1,max}$ está definida como la mitad de la magnitud de ΔT_{p-v} (ver ecuación 2.7(a) capítulo II) de los barridos en z para apertura cerrada (estos datos fueron utilizados para estimar Δn en el cristal). En esta figura podemos ver una curva de resultados experimentales (curva 1) y tres curvas de resultados teóricos (curvas 2, 3 y 4), el origen de estas últimas se explicará mas adelante.

La gráfica 4.5 contiene más puntos de los cuatro que aportan las gráficas de la figura 4.4 debido a que en el laboratorio se obtuvieron muchos más resultados de

los que se muestran aquí, de ellos fue de donde tomamos los datos para poder graficar todos los puntos de $T1_{\max}$ v.s. Potencia incidente.

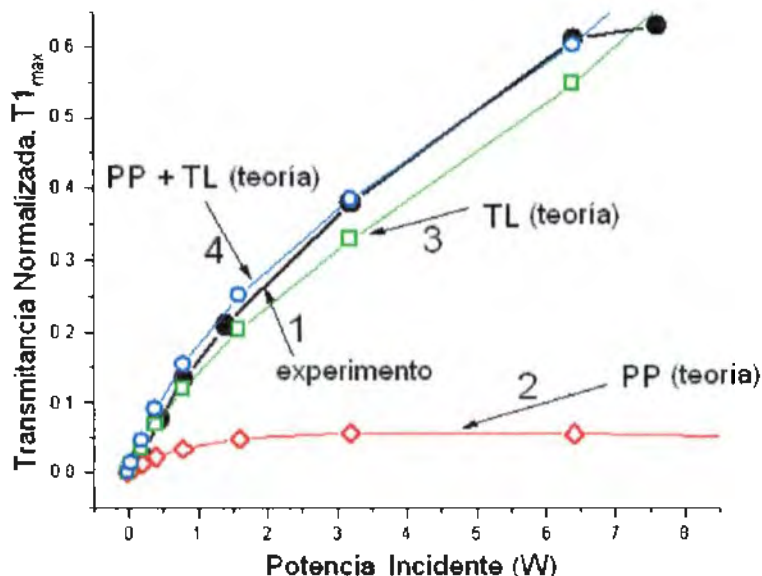


Figura 4.5 Dependencia de la magnitud $T1_{\max}$ de la potencia del haz incidente. Curva 1 experimento, curvas 2 a 4 – teoría. Tomando en cuenta solo el efecto PP (curva 2), solo efecto TL (curva 3), y en general efecto PP+TL (curva 4).

4.4 Modelo y discusión

Como se muestra en las referencias [14-17], una simple medición de una “oscilación” entre los extremos de $T1(z)$ en las gráficas de la figura 4.4 (T_{p-v}), no es suficiente para un cálculo apropiado de Δn en las condiciones de saturación GSA intensa y efecto térmico de la muestra debido a la complicada interacción

entre los efectos PP y TL. Para demostrar esto daremos un modelo del proceso que se lleva a cabo en los experimentos z-scan con cristales $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ y bombeo continuo.

Las ecuaciones (4.1) y (4.2) describen la propagación de la radiación de resonancia dentro del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ (en el caso de que la polarización azimutal del haz coincida con la orientación de uno de los grupos de los dipolos de Cr^{4+}); en ellas I y ϕ son la intensidad y la fase del haz respectivamente, N_0 es la concentración de iones de Cr^{4+} en el YAG, $I_s = \frac{h\nu}{\sigma\tau}$ es la intensidad de saturación característica ($h\nu$ es la energía de los cuantos de la radiación a $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$, σ es la sección transversal del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, y τ es el tiempo de vida de los iones del Cr^{4+} en el estado excitado). El resto de los parámetros (γ , coeficiente de pérdidas residuales no saturadas causadas por otros dopantes, y δ , parámetro de sintonización de resonancia atómica) son conocidos y sus valores están dados en la tabla 4.1.

$$\frac{\partial I}{\partial z'} = - \left(\frac{\sigma N_0 I}{1 + \frac{I}{I_s}} + \gamma \right) I \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial z'} = \frac{\delta \sigma N_0 I}{2 \left(1 + \frac{I}{I_s} \right)} \quad (4.2)$$

En estas ecuaciones z' es la coordenada interna y no debe ser confundida con la coordenada exterior z , que nos da la posición de la muestra respecto al plano focal de la lente 3.

Este sistema de ecuaciones está limitado al caso de bombeo continuo y la geometría particular aceptada para él se deriva de [8].

Es claro de las ecuaciones (4.1) y (4.2) que las transformaciones de intensidad y fase en la propagación del haz del laser a lo largo de la muestra se deben al efecto PP, ya que en ellas solo existe dependencia de la intensidad de saturación I_s y la concentración de los iones de cromo N_0 . Aquí cabe mencionar que la población de estado estacionario de los iones de Cr^{4+} en el estado base, está conectada con el cociente de la intensidad I y la intensidad de saturación I_s de la siguiente forma:

$$N = N_0(1 + I/I_s).$$

Como se mencionó anteriormente, los valores de los parámetros básicos están listados en la tabla 4.1. Nótese que el dato para σ disponible en la literatura varía mas que un orden de magnitud (de 3.5×10^{-19} a $6 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ [21-24]); nosotros usamos en la tabla 3.1 el valor que permite el mejor ajuste de dependencia experimental $T0_{\text{max}}(P)$ no mostrado aquí). El tiempo de vida τ de los iones del Cr^{4+}

en el estado excitado se toma como $4 \mu\text{s}$ (este valor corresponde a una temperatura del cristal $T = 30^\circ \text{C}$ [12-22]).

Tabla 4.1 parámetros del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ y del arreglo experimental usado.

1	Índice de refracción	$n_0 = 1.8$
2	Índice de gradiente térmico	$dn/dT = 9.8 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
3	Conductividad térmica del YAG	$\kappa = 0.13 \text{ W/cm} \times \text{K}$
4	Concentración de iones Cr^{4+}	$N_0 = 4.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$
5	Parámetro de sintonización de resonancia atómica	$\delta = 0.2$
6	Sección transversal GSA	$\sigma = 6.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$
7	Sección transversal ESA	$\sigma_1 = 0$
8	Pérdidas residuales	$\gamma = 0.661$
9	Longitud del cristal	$L = 0.3 \text{ cm}$
10	Diámetro del cristal	$\varnothing = 1 \text{ cm}$
11	Transmitancia inicial y final	$T_{0_{in}} = 0.31, T_{0_{fin}} = 0.85$
12	Tiempo de vida del Cr^{4+} a 30°	$\tau = 4.0 \times 10^{-6} \text{ s}$
13	Intensidad de saturación	$I_s = 67 \text{ kW/cm}^2$
14	Eficiencia cuántica de fluorescencia	$\xi = 0.9$
15	Pérdidas Stokes	$\beta = 0.35$
16	Orientación de polarización azimutal incidente	$\theta = 0^\circ$
17	Potencia de bombeo incidente	$P = 0.1 - 8.0 \text{ W}$
18	Energía de los cuantos de potencia	$h\nu = 1.86 \times 10^{-19} \text{ J}$
19	Longitud de onda de bombeo	$\lambda_{exc} = 1.06 \times 10^{-4} \text{ cm}$
20	Cintura del haz	$\omega_0 = 14.5 \times 10^{-4} \text{ cm}$

El parámetro δ se escoge como 0.2, el cual corresponde al encontrado en las referencias [8] y [16]. Nótese también que este parámetro está conectado muy

cercanamente con características de refracción no lineal en $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ causadas por el efecto PP. Finalmente, la concentración N_0 de iones de Cr^{4+} en YAG es calculado como $N_0 = \ln(T0_{\text{fin}}/T0_{\text{in}})/\sigma L$.

Las ecuaciones (4.3) y (4.4) son los valores de intensidad y fase inicial que corresponden a un haz Gaussiano. A continuación veremos la utilidad que tuvieron todas estas expresiones.

$$I_0(z,r) = \frac{2P}{\pi\omega^2(z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right) \quad (4.3)$$

$$\phi_0(z,r) = k \exp\left(\frac{r^2}{2R(z)}\right) \quad (4.4)$$

La figura 4.6 muestra gráficas z-scan teóricas para apertura cerrada ($T1(P,z)$), calculadas numéricamente usando la ecuación (4.5) y un formulismo basado en el cálculo de la integral de Kirchoff (ec. (4.6) y (4.7)) sobre un pinhole de radio $r1$ [11,12]. Los cálculos se hicieron para diferentes potencias del haz de prueba (0.8,3.2,6.4 W).

$$T1(P,z) = \frac{E_a(P,z)E_a^*(P,z)}{E_a(P,0)E_a^*(P,0)T0(P,z)} \quad (4.5)$$

En éstas ecuaciones P es la potencia de entrada ($P = 0 - 8$ W), r es el radio ordinario del haz a lo largo de la envolvente de intensidad Gaussiana, $\omega(z)$ y $R(z)$ son el tamaño de la mancha y el radio de curvatura del haz enfocado; z es la posición de la muestra con respecto al punto focal ($z = 0$), $R_0 \equiv R(z = 0) = \infty$ y $\omega_0 \equiv \omega(z = 0)$ es la cintura del haz. El número de onda $k = 2\pi/\lambda$ está calculado para $\lambda = 1.06\mu\text{m}$ (la longitud de onda de bombeo). Note que ω_0 fue determinada por datos experimentales como $14.5\mu\text{m}$.

Por otra parte

$$E_a(P, z) = ik \int_0^r E_{out}(P, z, r) \frac{2\pi.rdr}{(d-z)} \quad (4.6)$$

donde

$$E_{out}(P, z, r) = I_{out}(P, z, r) e^{-\left(\frac{r^2}{\omega^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)} + \frac{ikr^2}{2(d-z)} \right)} e^{-i\Delta\phi_{out}(P, z, r)} \quad (4.7)$$

nos da el campo del haz del laser a la salida de la muestra. Los valores $I_{out}(P, z, r) = T_0(P, z) \times I_0(P, z, r)$ y $\phi_{out} = \phi(P, z, r)$ son las soluciones de las ecuaciones (4.1) y (4.2), los parámetros $\omega(z)$ y $R(z)$ a la entrada del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ son gobernadas por la bien conocida álgebra del haz Gaussiano (ver apéndice A). $T_0(P, z)$ es la transmitancia del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ integrado sobre r , la cual solo depende de

la potencia de incidencia P y la posición de la muestra; d es la distancia entre el diafragma S y el punto focal.

Los resultados de los cálculos numéricos para el cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ con parámetros listados en la tabla 4.1, se muestran en la figura 4.6 con las curvas 1. Se ve que una lente no lineal positiva se forma en la muestra bajo bombeo CW, el cual es el resultado de saturación GSA, es decir, efecto PP. Se ve claramente que la amplitud de la oscilación tiene una dependencia característica versus la potencia de entrada P : a intensidades de entrada pequeñas, $I < I_s$, la amplitud crece, mientras que cuando I empieza a exceder a I_s la amplitud se satura; esto último es una simple indicación del proceso de saturación GSA.

Una vez que se tienen las z-scan teóricas $Tl(P,z)$ fuimos capaces de construir la dependencia de Tl_{max} versus P (teóricas), la cual se muestra en la figura 4.5, curva 2. Con esta gráfica uno puede deducir por comparación de la teoría y el experimento (compare curvas 1 y 2 en la figura 4.5) que no hay acuerdo cuantitativo entre ellas. A pesar de que ambas dependencias $Tl_{\text{max}}(P)$ provienen de una lente positiva inducida en el $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, ni las amplitudes de oscilación, ni la dinámica general versus P son compatibles. Nosotros encontramos durante la prueba con CW de alta potencia de la muestra $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, que tal confusión se conecta con un dominio de la lente térmica no lineal (efecto TL) sobre la lente debido a saturación (efecto PP).

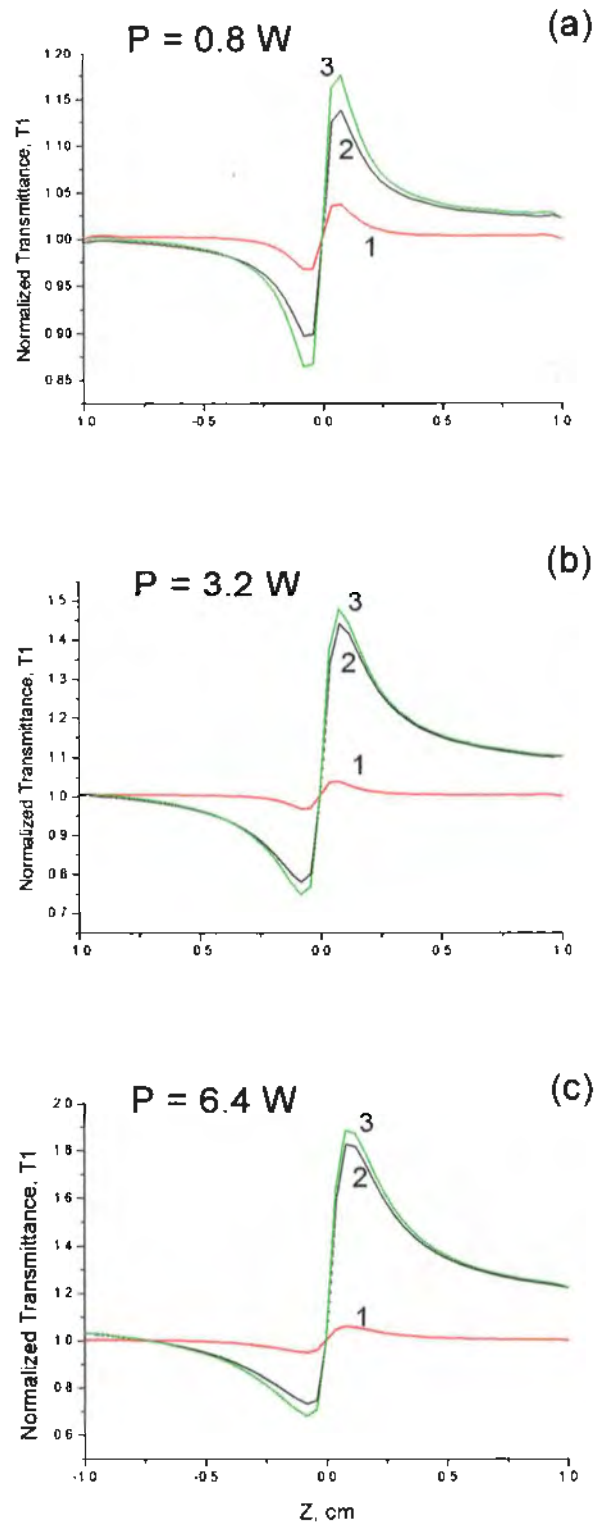


Figura 4.6 Gráficas z-scan teóricas $T_1(P,z)$ con apertura cerrada para diferentes potencias de excitación. Las curvas 1 corresponden solo al efecto PP.

las curvas 2 corresponden solo al efecto TL, y las curvas 3 al efecto general PP+TL.

Por otra parte, el cálculo del peso térmico de una TL en el cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ es un hecho complicado, el cual se resuelve generalmente encontrando preliminarmente una solución de la ecuación de transporte de calor, dando la distribución de la temperatura a través de un disco $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ y una evaluación más profunda de la lente térmica en el area donde las distribuciones demuestra una ley cuadrática (versus radio r) [23,24]. No es nuestra meta dar aquí un modelo del efecto TL en $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$; afortunadamente, hay una aproximación para dirigir el problema de la lente térmica por un método mas simple.

La distancia focal F_{th} de una lente térmica en una muestra absorbadora cristalina bajo iluminación CW se calcula mediante:

$$F_{th}(P, z) = \frac{4\kappa\pi\omega^2(z)}{\beta P_{abs}} \frac{ds}{dT} \quad (4.8)$$

donde κ es la conductividad térmica, P_{abs} es la potencia absorbida, β es la fracción de calor que da la parte de la potencia incidente transformada en calor (debido a procesos no radiativos), y la longitud de camino óptico es determinado como:

$$\frac{ds}{dT} = \left[\frac{dn}{dT} + (n_0 - 1)(1 + \nu)\alpha + n_0^3 \alpha C_{r,t} \right] \quad (4.9)$$

En la ecuación (4.9) n_0 es el índice de refracción de la muestra “fría”, dn/dT , ν , α , $C_{r,t}$ son, respectivamente, el gradiente de temperatura del índice de refracción, el cociente de Poisson, el coeficiente de expansión térmica, y los coeficientes fotoelásticos del material (vea tabla 3.1); en ésta ecuación se ve que ds/dT es una suma de tres términos, el cambio de índice de refracción dado por la dispersión térmica dn/dT , la expansión térmica (segundo término) y la contribución fotoelástica (tercer término). Todos los términos están presentes en el caso de bombeo CW sobre el cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, debido a que la red del YAG está sujeta a deformaciones inducidas térmicamente.

Uno puede demostrar que solo la dispersión térmica (dn/dT) y la expansión térmica $(n_0 - 1)(1 + \nu)\alpha$ son fuentes importantes de cambios inducidos térmicamente en el índice de refracción en el $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, siendo prácticamente iguales en amplitud.

El parámetro del peso de calor β es determinado por las pérdidas de Stokes en la muestra, digamos por el cociente de la longitud de onda del bombeo excitador y la longitud de onda de la fluorescencia, $\lambda_{\text{exc}} / \lambda_{\text{fluor}}$, y la eficiencia cuántica, ξ :

$$\xi = 1 - \varepsilon \frac{\lambda_{exc}}{\lambda_{fluor}} \quad (4.10)$$

En el caso del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$, $\xi \approx 0.9$ y $\lambda_{fluor} = 1.45-1.5 \mu\text{m}$ [4], dando $\beta \approx 0.35$.

En circunstancias de saturación de absorción de estado base, la ecuación (4.8) debe ser generalizada para tomar en cuenta la dependencia del coeficiente de absorción de la intensidad de entrada:

$$F_{th}(P, z) = \frac{4\kappa\pi\omega^2(z)}{\xi(1 - T0(P, z))P} \frac{ds}{dT} \quad (4.11)$$

donde $T0(P, z)$ es la transmitancia de la muestra, la cual es generada automáticamente por simulación numérica del efecto PP.

Usando la ecuación (4.11) podemos mostrar que, a pesar de la distancia focal tan corta de la lente térmica autoinducida en el cristal (digamos $P = 3.2 \text{ W}$ $F_{th} \approx 1 \text{ cm}$ cerca de la cintura del haz) esto no influye esencialmente en el tamaño de la mancha dentro de la muestra [11], pero cambia fuertemente la curvatura del frente de onda del haz.

Suponiendo que la muestra es una lente delgada nosotros calculamos el frente de onda antes de la muestra como:

$$R^*(P, z) = \frac{F_{th}(P, z)R_{out}(P, z)}{F_{th}(P, z) - R_{out}(P, z)} \quad (4.12)$$

donde $R_{out}(P, z)$ es la curvatura del frente de onda en el lugar del $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ (que es generado numéricamente con simulación del efecto PP). El cambio correspondiente debe ser tomado en cuenta para los cálculos de la integral de Kirchoff para la generación de los z-scans modificados térmicamente $T1(P, z)$.

Los resultados del modelo anterior están dados en la figura 4.6 (curvas 3), en ellas se está considerando la formación de lente fotorrefractiva más la contribución de la lente térmica, y los resultados de los barridos en z teóricos con apertura cerrada están dibujados para diferentes potencias del haz incidente (0.8, 3.2 y 6.4 W). Ahora, la figura 4.6 da también los z-scans teóricos $T1(P, z)$ obtenidos tomando en cuenta por separado el efecto PP (curvas 1) y el efecto TL (curvas 2); es de estas curvas de donde se obtuvieron los puntos para las graficas teóricas $T1_{max}$ en función de la potencia incidente que muestran las curvas 2 y 3 de la figura 4.5.

Comparando los z-scan teóricos correspondientes al efecto general TL+PP (figura 4.5, curva 4) y los correspondientes al experimento (figura 4.5, curva 1), uno puede concluir en un acuerdo cerrado entre el experimento y la teoría; nótese como las curvas prácticamente se superponen y con ello hemos explicado satisfactoriamente los resultados experimentales.

Finalmente, la tabla 4.2 muestra cómo el cambio general del índice de refracción Δn en el Cr^{4+} :YAG depende de la intensidad de entrada en el máximo de la distribución Gaussiana I_0 (o de la potencia enviada P) cerca de la cintura del haz. Virtualmente se observa que hay una dependencia de la ley de linealidad para el efecto general PP+TL, mientras que cada efecto por separado es esencialmente un efecto no lineal.

Tabla 4.2 Dependencia del cambio del índice de refracción de la Potencia de entrada (o intensidad I) en el Cr^{4+} :YAG.

P (W)	I/I_{sat}	$\Delta n \times 10^{-7}$
0.044	0.2	1.5
0.22	1	7
1.1	5	30
5.5	25	90

4.5 Conclusiones

De estos experimentos podemos concluir que:

i) para bombeo continuo la lente inducida dentro del cristal $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ es, generalmente, positiva.

ii) la formación de lente térmica predomina sobre la formación de lente fotorefractiva (debido al efecto PP), para bombeo de alta potencia. Sin embargo, usando la técnica z-scan uno puede distinguir los efectos de los fenómenos PP y TL por separado.

iii) El análisis de los efectos PP y TL nos permite deducir que la fotorefracción en $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ con bombeo continuo CW, es esencialmente causado por la lente térmica.

iv) Finalmente, también se encontró que la magnitud de Δn en $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ depende de la potencia del haz de prueba.

Por otro lado, con la aplicación de la técnica z-scan a muestras de bacteriorodopsina se obtuvo un modelo de tres niveles de energía para la molécula de bR, el cual explica de manera adecuada la gráfica de saturación que obtuvimos experimentalmente. También se logró la separación de dos efectos que, por encontrarse interactuando tan estrechamente, no se tenía idea de su existencia común.

Para ambos materiales utilizados en este trabajo, se logró encontrar un método para el tratamiento de datos utilizando esta técnica de barrido en z.

Referencias

- [1] Eichler, H.J., Haase, A. Kokta, M.R., and Menzal, R., 1994, Appl. Phys. B, **58**, 409.
- [2] Ilichev, N.N., Kir'yanov, A. V., and Pashinin, P.P., 1998, Quant. Electron., **28**, 147.
- [3] Shimony, Y., Burshtein, Z., Ben-Amar Baranga, et.al., 1996, IEEE J. Quant. Electron., **32**, 305
- [4] Spariosu, K., Chen, W., Strultz, R., et. Al., 1993, Opt. Lett., **18**, 814.
- [5] Camacho –Lopez, S., Green, R.P.M. Crofts, G.J., and Damzen, M.J., 1997, J. of Mod. Optics **44**, 209.
- [6] Eilers, H., Hoffman K.R. Dennis, M., et al 1992, Appl. Phys. Lett., **61**, 2958 (1992).
- [7] Damzen, M.J. Camacho-Lopez, S., and Green, R.P.M., 1996, Phys. Rev. Lett., **76**, 2894.
- [8] Ilichev, N.N., Kir'yanov, A. V., Pashinin, P.P. and Shpuga, S.M., 1994, JETP, **78**, 768.
- [9] Ilichev, N.N., Kir'yanov, A. V., Gulyamova, E.S., and Pashinin, P.P., 1998, Quant. Electron., **28**, 17.
- [10] Herger Eilers, Uwe Hömmerich, Stuart M.Jacobsen, and William M. Yen, "Spectroscopy and dynamics of Cr³⁺:Y₃Al₅O₁₂", Am. Phs. Soc., **49**, No. 22, (1994), pp. 15 505-15 513.

- [11] M. Sheik-bahae, A.A. Said, and E. W. Van Stryland, "High- sensitivity, single-beam n_2 measurements", *Optics Letters*, Vol 14, No. 17 (1989), pp 955-957.
- [12] Mansoor Sheik-bahae, Ali A. Said, Tai-huei Wei, David J. Hagan, and E.W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE Journal of Cuantum Electronics*, Vol 26, No. 4, (1990), pp 760-769.
- [14] Andrade, A.A., Catunda, T., Lebullenger, R, et al., 1998, *Electron. Lett.*, **34**, 117.
- [15] Andrade, A.A., Tenorio, E., Catunda, T., et al., 1999, *JOSA B*, **16**, 395.
- [16] Pilla, V., Impinnisi, P.R., and Catunda, T., 1997, *Appl. Phys. Lett.*, **70**, 817.
- [17] Oliveira, L.C., Catunda, T., and Zilio, S.C., 1996, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, 2649.
- [18] Kuck, S., Petermann, K., and Huber, G., 1991, *OSA Proc. Advanced Solid State Lasers*, **10**, 92.
- [19] Shestakov, A.V., Borodin, N.I., Zhitnyuk, V.A., et al., 1991, *CLEO Techn. Digest*, paper CPDP 11-1.
- [20] Burshtein, Z., Blau, P., Kalisky, Y., et al., 1998, *IEEE J. Quant. Electron.*, **34**, 292.
- [21] Shimony, Y., Burshtein, Z., and Kalisky, Y., 1995, *IEEE J. Quant.*

Electron., **31**, 1738.

[22] Okhrimchuk, A.G., and Shestakov, A.V., 1994, Opt. Mater., **3**, 1.

[23] Sennaroglu, A., 1997, Appl. Optics, **36**, 9528.

[24] Sennaroglu, A., Askar, A., and Atay, F.M., 1997, JOSA B, **14**, 356.

ARTICULO DERIVADO DE ESTE TRABAJO.

- “Application of the Z-scan technique for measuring nonlinear change of refractive index in Cr⁴⁺:YAG crystal al CW excitation”, M. del Rayo, A.V. Kir'yanov, Yu. Barmenkov, V. N. Filippov. A la fecha este artículo está aceptado y será publicado en Laser Physics, en el volumen II del año 2003.

APENDICE A

EL HAZ GAUSSIANO

En base a la figura A1 los parámetros del haz Gaussiano se calculan con las siguientes expresiones

$$w(z) = w_0 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right]^{1/2}$$

Radio de la sección transversal del haz en la posición z .

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_0}{z} \right)^2 \right]$$

Radio de curvatura del frente de onda en la posición z .

$$w_0 = \left(\frac{\lambda z_0}{z} \right)^{1/2}$$

Cintura del haz.

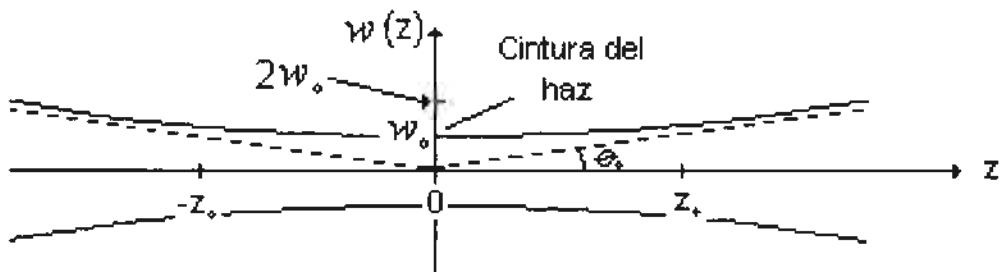


Figura A1. Corte longitudinal del haz Gaussiano. El radio del haz $w(z)$ tiene su mínimo valor w_0 en la cintura ($z = 0$), alcanza el valor $2w_0$ en $z = \pm z_0$ y para valores muy grandes de z se incrementa linealmente.

Nota: No confundir la coordenada z de la posición de la muestra en los capítulos

de la tesis (que es medida respecto del plano focal de la lente que enfoca el haz de prueba), con la coordenada z para el cálculo de los parámetros del haz Gaussiano. Aquí la coordenada z para el haz Gaussiano se mide a partir de la posición cintura del haz.

$$\zeta(z) = \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_0}\right)$$

Retardación en la fase del haz relativo a una onda plana en puntos del eje del haz.

$$\theta_0 = \frac{2}{\pi} \frac{\lambda}{2w_0}$$

Divergencia del haz

$$2z_0 = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda}$$

Profundidad de foco

Debido a que el haz tiene su anchura mínima en $z = 0$, como se muestra en la figura A1, este logra su mejor foco en el plano $z = 0$. En ambas direcciones el haz crece gradualmente “fuera de foco”. La distancia axial dentro de la cual el radio del haz cae con un factor de 2 de su valor mínimo se conoce como la *profundidad de foco* o *parámetro confocal* (vea figura A2).

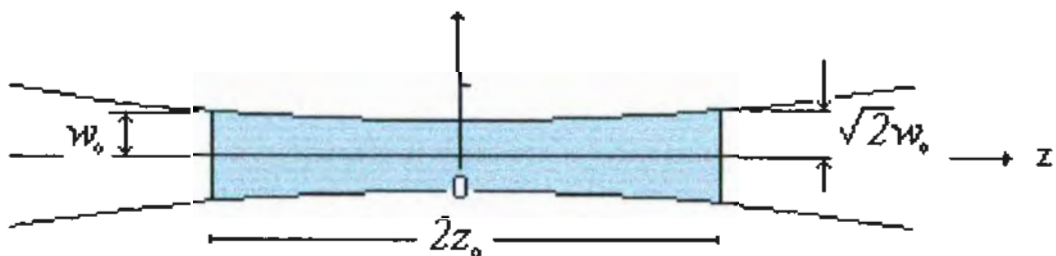


Figura A2. Profundidad de foco del haz Gaussiano.

APENDICE B

Derivación de la ecuación (3.8):

Los cambios en el coeficiente de absorción se calculan de la siguiente forma:

$$\alpha = N_0 \sigma_{01} + N_1 \sigma_{10} + N_1 \sigma_{12} = N_0 \sigma_{01} + N_1 (\sigma_{10} + \sigma_{12}) \quad (3.17)$$

sustituyendo los valores de N_0 , N_1 , N_2 (ecuaciones (3.13), (3.14), (3.15)), en la expresión anterior

$$\alpha = \frac{N}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} [(1 + S_{10})\sigma_{10} + S_{01}\sigma_{10} + S_{01}\sigma_{12}]$$

desarrollando

$$\alpha = [\sigma_{01} + 2S_{01}\sigma_{01} + S_{01}\sigma_{12}] \frac{N}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})}$$

Ahora, α_0 (el coeficiente de absorción lineal) es $\alpha|_{I=0} = \alpha|_{S_{10}=S_{01}=S_{12}=0} = N\sigma_{01}$, y

por lo tanto

$$\alpha = \frac{N\sigma_{01}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} \left[1 + 2 \frac{\tau_{10}I}{h\nu} \sigma_{10} + \frac{\tau_{10}I}{h\nu} \sigma_{12} \right]$$

$$\alpha = \frac{\alpha_0 \left[1 + 2S_{10} + S_{12} \frac{\tau_{10}}{\tau_{21}} \right]}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})}$$

Si introducimos $\Delta\alpha = \alpha - \alpha_0$ entonces

$$\Delta\alpha = \frac{\alpha_0 \left[1 + 2S_{10} + S_{12} \frac{\tau_{10}}{\tau_{21}} \right]}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} - \alpha_0$$

y finalmente, reduciendo términos, llegamos a la ecuación (3.18)

$$\Delta\alpha = \alpha_0 \frac{S_{10} - S_{01} - S_{12} \left(S_{01} - \frac{\tau_{10}}{\tau_{21}} \right)}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} \quad (3.18)$$

Derivación de la ecuación (3.16):

La susceptibilidad de la bR, usando el modelo de tres niveles de energía, está dada por la siguiente expresión [6] :

$$\chi = \frac{\chi_0 N_0 + \chi_1 N_1 + \chi_2 N_2}{N} = \chi_{in} + \Delta\chi$$

donde χ_{in} es la susceptibilidad inicial.

Substituyendo los valores de N_0 , N_1 , N_2 en la ecuación anterior

$$\chi = \frac{1}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} [\chi_0(1 + S_{10}) + \chi_1 S_{01} + \chi_2 S_{01} S_{12}]$$

Llamaremos "D" al denominador de la ecuación anterior para usarlo posteriormente.

$$\chi_{in} \equiv \chi_{I \rightarrow 0} \equiv \chi_{S_{01}, S_{10}, S_{12} \equiv 0} = \chi_0 = \chi_{in}$$

Entonces

$$\Delta\chi = \chi - \chi_{in} \equiv \chi - \chi_0 = \frac{1}{D} (\chi_0(1 + S_{10}) + \chi_1 S_{01} + \chi_2 S_{01} S_{12}) - \chi_0$$

$$\begin{aligned}\Delta\chi &= \frac{\chi_1 S_{01} + \chi_2 S_{01} S_{12} - \chi_0 S_{01} - \chi_0 S_{01} S_{12}}{D} \\ &= \frac{1}{D} S_{01} (\chi_1 - \chi_0) + S_{01} S_{12} (\chi_2 - \chi_0)\end{aligned}$$

$$\Delta\chi = \frac{S_{01} (\chi_1 - \chi_0) + S_{01} S_{12} (\chi_2 - \chi_0)}{1 + S_{10} + S_{01} (1 + S_{12})}$$

Y, finalmente

$$\Delta\chi = \frac{S_{01} \Delta\chi_{10} + S_{01} S_{12} \Delta\chi_{20}}{1 + S_{10} + S_{01} (1 + S_{12})} \quad (3.16)$$

Por otra parte

$$\chi_{in} + \Delta\chi = \frac{3}{4\pi} \frac{(n + \Delta n)^2 - 1}{(n + \Delta n)^2 + 2}$$

y por analogía con la derivación previa, tenemos

$$\Delta\chi = \frac{9}{2\pi} \frac{n}{(n^2 + 2)^2} \Delta n$$

Entonces, despejando Δn de la ecuación anterior

$$\Delta n = \frac{\frac{\Delta\chi}{n}}{\frac{9}{2\pi (n^2 + 2)^2}} = \frac{2\pi(n^2 + 2)^2}{9n} \Delta\chi$$

Así, substituyendo el valor de $\Delta\chi$ en la ecuación anterior obtenemos la ecuación

(3.19)

$$\Delta n = \frac{2\pi(n^2 + 2)^2}{9n} \times \frac{\Delta\chi_{10} S_{01} + \Delta\chi_{20} S_{01} S_{12}}{1 + S_{10} + S_{01}(1 + S_{12})} \quad (3.19)$$