



UNIVERSIDADE FEDERAL RURAL DE PERNAMBUCO  
UNIDADE ACADÊMICA DO CABO DE SANTO AGOSTINHO  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA FÍSICA

CÍCERA CARLA DE SOUZA PEREIRA

Propagação de feixes incoerentes em meios não lineares dissipativos

Cabo de Santo Agostinho - PE

2023

CÍCERA CARLA DE SOUZA PEREIRA

Propagação de feixes incoerentes em meios não lineares dissipativos

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Física, Unidade Acadêmica do Cabo de Santo Agostinho, da Universidade Federal Rural de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Engenharia Física.

Área de concentração: Optoeletrônica

Linha de pesquisa: Espectroscopia coerente e óptica não linear.

Orientador: Prof. Dr. Albert Stevens Reyna Ocas

Coorientador: Prof. Dr. Rafael Alves de Oliveira

Cabo de Santo Agostinho - PE

2023

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação  
Universidade Federal Rural de Pernambuco  
Sistema Integrado de Bibliotecas  
Gerada automaticamente, mediante os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

---

- P436p      Pereira, Cícera Carla de Souza  
              Propagação de feixes incoerentes em meios não lineares dissipativos / Cícera Carla de Souza Pereira. - 2023.  
              102 f. : il.
- Orientador: Albert Stevens Reyna Ocas.  
              Coorientador: Rafael Alves de Oliveira.  
              Inclui referências.
- Dissertação (Mestrado) - Universidade Federal Rural de Pernambuco, Programa de Pós-Graduação em Engenharia Física, Cabo de Santo Agostinho, 2023.
1. speckles. 2. função correlação de intensidade. 3. absorção não linear. 4. envoltórias de intensidade. I. Ocas, Albert Stevens Reyna, orient. II. Oliveira, Rafael Alves de, coorient. III. Título

CDD 621

---

CÍCERA CARLA DE SOUZA PEREIRA

Propagação de feixes incoerentes em meios não lineares dissipativos

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Física da Unidade Acadêmica do Cabo de Santo Agostinho da Universidade Federal Rural de Pernambuco para obtenção do título de Mestre em Engenharia Física.

APROVADA EM: 16/02/2023

Banca examinadora

---

Prof. Dr. Albert Stevens Reyna Ocas – UFRPE  
Orientador

---

Prof. Dr. Hugo Leonardo Davi de Souza Cavalcante - UFPB  
Membro Externo

---

Prof. Dr. Marcos César Santos Oriá - UFRPE  
Membro Interno

## **DEDICATÓRIA**

Dedico este trabalho a  
todas as mulheres da Física.

## AGRADECIMENTOS

Agradeço aos meus guias espirituais Exus, Pombogiras, Ciganas e Orixás, em especial Iansã e Omolu por uma história inspiradora de interesse genuíno pelo aprendizado e autocuidado. Eparrey, Oyá! Atóto, Obaluaê!

A mim mesma por ter escolhido fazer parte desse programa de pós-graduação, por ter sido feliz e paciente ao longo deste processo de estudo intenso, cansativo, porém extremamente gratificante.

À minha psicóloga Jamila Paulino, pelo acompanhamento incrível antes e durante o desenvolvimento da minha pesquisa de mestrado.

Aos meus familiares Anísia, Carlos, Fátima, Roseli, Thalilla e Rebeca, pela paciência, parceria e acolhimento.

Aos meus filhotes Fani, Rachel, Yang, Isi e Karev, pelo carinho, amor e companhia diária.

Ao meu orientador Prof. Dr. Albert Reyna e coorientador Prof. Dr. Rafael Oliveira, pela infinita paciência e respeito ao meu processo de ensino-aprendizagem. Ambos são muito dedicados à ciência e isso é muito inspirador, mais uma vez obrigada.

Ao prof. Dr. Weliton Martins, por ter se mostrado sempre disponível e paciente no processo de desenvolvimento do meu trabalho de pesquisa e aos demais professores que compõe o PPENGFIS, por terem contribuído com minha formação e a dos meus colegas.

Ao prof. Dr. Cid Bartolomeu, por ter cedido um espaço no seu laboratório na UFPE, para o desenvolvimento da minha pesquisa, e ao prof. Dr. Anderson Gomes por ter me emprestado alguns equipamentos e o seu tempo, por diversas vezes.

Aos amigos da minha vida Bruno Câmara e Elisandra Neves, inspiração mútua para tudo, companheiros de todas as horas. Aos amigos que fiz durante o mestrado, tanto na UFRPE quanto na UFPE. Em destaque a Mariana Crispim, Markus Porangaba, Monaira Costa, Tennyson Accetti, Alyson Carvalho, Jessica, Manoel e Guilherme, obrigada pelas trocas de conhecimento, ajudas, cafezinhos e diversão. Me ensinaram muito e vão me ensinar ainda mais. E aos amigos que fiz nas moradias coletivas, estes com muita paciência e carinho me acolheram de diversas formas, João Vitor, Matheus, Joao Pedro, Luci, Thalles.

Por fim, agradeço ao IFPB – Monteiro, pelo apoio financeiro.

## RESUMO

Padrões de *speckles* são distribuições de intensidade de luz, formados a partir da interação entre uma fonte de luz coerente e uma superfície (ou meio) irregular, que resulta em uma distribuição de vetores de onda com fases aleatórias. Desta forma, como a aleatoriedade tem um papel relevante na formação de padrões de *speckles*, sua caracterização, bem como a análise de diversos fenômenos ópticos excitados a partir deles, são estudados fazendo uso de ferramentas de análises estatísticas. Entre as ferramentas mais importantes, as funções de correlação de intensidade e a distribuição de probabilidade de intensidade fornecem informações indiretas sobre a coerência da fonte de excitação, o grau de espalhamento (ou aleatoriedade) do meio rugoso, além das propriedades ópticas do meio onde a radiação se propaga. Nesta dissertação são estudadas as mudanças que a estatística dos padrões de *speckles* sofrem quando se propagam em meios não lineares autodesfocalizadores, com a influência de diversos processos de absorção não linear. Para isto, foi utilizado o corante LDS722 diluído em etanol, como meio não linear, que, ao ser excitado com diferentes intensidades, apresenta os efeitos de absorção saturada de 1 fóton; absorção de 2 fótons; e absorção saturada de 2 fótons. Esses diferentes efeitos foram caracterizados através da técnica de Varredura Z. Para que a propagação não linear dos padrões de *speckles* seja submetido a influência de um (ou mais de um) efeito dissipativo (simultaneamente) foram gerados três padrões diferentes, com envoltórias de intensidade: (i) Gaussiano, (ii) super-Gaussiano e (iii) *top-hat*. Desta forma, observou-se que durante a propagação, se o padrão de *speckles* é afetado apenas por um único processo de absorção não linear, com envoltória de intensidade *top-hat*, suas propriedades estatísticas apresentam comportamentos diferentes aos padrões afetados por mais de um efeito de absorção não linear em simultâneo, com envoltórias de intensidade Gaussiano e super-Gaussiano. Os estudos realizados nesta dissertação apresentam, pela primeira vez na literatura, resultados sobre a influência dos diversos efeitos de absorção não linear sobre a propagação de padrões de *speckles*. Além disso, ao monitorar as mudanças nas propriedades estatísticas que os padrões de *speckles* sofrem ao longo da sua propagação, foi possível propor uma nova metodologia para analisar o efeito de autodeflexão induzido pela modulação do índice de refração não linear. Desta forma propomos o uso de padrões de *speckles* para a caracterização da resposta óptica não linear de diversos materiais.

Palavras-chave: *speckles*; função correlação de intensidade; absorção não linear; envoltórias de intensidade.

## ABSTRACT

Speckle patterns are distributions of light intensity, formed from the interaction between a coherent light source and an irregular surface (or medium), which results in a distribution of wave vectors with random phases. In this way, as randomness plays a relevant role in the formation of spot patterns, their characterization, as well as the analysis of various optical phenomena excited from them are followed by making use of statistical analysis tools. Among the most important tools such as intensity intensity functions and the intensity probability distribution provide indirect information about the manipulation of the transmission source, the degree of scattering (or randomness) of the rough medium, in addition to the optical properties of the medium where the radiation propagates. In this dissertation, the changes that the statistics of speckle patterns suffer when they propagate in self-defocusing non-linear media, with the influence of several non-linear absorption processes, are studied. For this, the dye LDS722 diluted in ethanol was used as a non-linear medium, which, when excited with different intensities, presents the effects of absorption of 1 photon; 2 photon absorption; and absorption of 2 photons. These different effects were characterized using the Z-Scan technique. In order for the non-linear expression of the stain patterns to be influenced by one (or more than one) dissipative effect (simultaneously), three different patterns were generated, with intensity envelopes: (i) Gaussian, (ii) super-Gaussian and (iii) top hat. In this way, it is observed that during the controlled analysis, if the speckles pattern is affected only by a single non-linear absorption process, with top-hat intensity background, its statistical properties follow different behaviors to the patterns influenced by more than one effect simultaneous non-linear absorption with Gaussian and super-Gaussian intensity backgrounds. The studies carried out in this dissertation present, for the first time in the literature, results on the influence of the various non-linear absorption effects on the signaling of speckle patterns. Furthermore, by monitoring the changes in the statistical properties that the speck patterns undergo throughout their defensiveness, it was possible to propose a new methodology to analyze the self-deflection effect induced by the modulation of the non-linear refractive index. Therefore, we propose the use of speckles patterns to characterize the non-linear optical response of different materials.

Keywords: speckles; intensity correlation function; non-linear absorption; intensity envelope.

## LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Fonte de luz coerente com frente de ondas paralelas atravessando uma fenda simples e: a) produzindo um padrão ótico esperado pela ótica geometria; b) produzindo um padrão de difração. ....	22
Figura 2 – Perfil de intensidade de um padrão de difração para uma fenda estreita. ....	23
Figura 3 – Representação de um padrão de speckles. ....	24
Figura 4 – Origem física do <i>speckle</i> para: (a) propagação no espaço livre, (b) um sistema de formação de imagem. ....	24
Figura 5 – Percurso aleatório no plano complexo. ....	26
Figura 6 – Função normalizada de densidade de probabilidade de um padrão de speckles de um campo polarizado, com difusão normal. ....	29
Figura 7 – Função autocorrelação $g^{(2)}\Delta r$ normalizada. Com tamanho de S aproximadamente de 45 pixels. ....	31
Figura 8 – Diagrama de níveis de energia para absorção de dois fótons de mesma frequência $\omega$ . ....	37
Figura 9 – Representação do princípio de ação do modelo de não linearidade não local, devido ao efeito de lente térmica induzida. ....	41
Figura 10 – Modulação da frente de onda de um feixe gaussiano devido ao efeito de (a) autofocalização e (b) autodesfocalização. ....	43
Figura 11 – Intensidade óptica normalizada ( $I/I_0$ ) em função da distância radial normalizada ( $r/w_0$ ) ao longo do eixo óptico do feixe. ....	45
Figura 12 – Propagação de um feixe Gaussiano, com divergência espacial que está assintoticamente contida em um cone com ângulo de divergência $\theta_0$ . ....	47
Figura 13 – Imagem coletada pela CCD de um feixe Gaussiano e seus perfis transversais de intensidade ao longo dos eixos x (horizontal) e y (vertical). ....	48
Figura 14 – Propagação da largura do feixe ao longo dos eixos x e y. ....	49
Figura 15 – Comparação entre os feixes Gaussiano e top-hat. Intensidade óptica normalizada ( $I/I_0$ ) em função da distância radial normalizada ( $x/w_0$ ) ao longo do eixo óptico do feixe. ....	50

Figura 16 – Esquema experimental do sistema óptico utilizado para os experimentos. Seguimento referente ao feixe de perfil top-hat. P: polarizador, E <sub>i</sub> : espelhos (i = 1, 3 e 4), L <sub>i</sub> : lentes (i = 1, 2), E <sub>2</sub> : espelho em montagem giratória.....	52
Figura 17 – Imagem coletada pela CCD dos feixes (esquerda) super Gaussiano e (direita) top-hat e seus perfis transversais de intensidade ao longo do eixo x (horizontal) e eixo y (vertical). .....	53
Figura 18 – Esquema experimental do sistema óptico utilizado para os experimentos. Seguimento referente ao feixe de perfil top-hat. P: polarizador, E: espelhos, L: lentes, E <sub>2</sub> : espelho em montagem giratória, D: difusor.....	55
Figura 19 – Padrões de speckles gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade (a) Gaussiano, (b) super Gaussiano e (c) top-hat, atravessando um difusor de luz. ....	56
Figura 20 – Funções de autocorrelação espacial de intensidade calculadas para os padrões de speckles gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade Gaussiano (curva vermelha), super Gaussiano (curva azul) e top-hat (curva preta).....	57
Figura 21 – Funções de densidade de probabilidade (de intensidade) para os padrões de speckles gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade Gaussiano (quadrados vermelhos), super Gaussiano (círculos azuis) e top-hat (triângulos pretos).....	58
Figura 22 – Curvas de absorção em preto e emissão em vermelho da amostra do corante LDS722 diluído em etanol. O tracejado vertical em verde identifica o comprimento de onda do laser ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ).....	60
Figura 23 – Arranjo experimental da técnica de Varredura Z. L; lentes e D: detectores. ....	61
Figura 24 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,031 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm <sup>2</sup> , (b) 50,5 kW/cm <sup>2</sup> , (c) 110,2 kW/cm <sup>2</sup> , (d) 186,8 kW/cm <sup>2</sup> , (e) 290,9 kW/cm <sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm <sup>2</sup> . ....	63
Figura 25 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,046 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm <sup>2</sup> , (b) 50,5 kW/cm <sup>2</sup> , (c) 110,2 kW/cm <sup>2</sup> , (d) 199 kW/cm <sup>2</sup> , (e) 290,9 kW/cm <sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm <sup>2</sup> . ....	63
Figura 26 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,062 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm <sup>2</sup> , (b) 50,5 kW/cm <sup>2</sup> , (c) 110,2 kW/cm <sup>2</sup> , (d) 199 kW/cm <sup>2</sup> , (e) 290,9 kW/cm <sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm <sup>2</sup> . ....	64
Figura 27 – Simulação numérica da propagação de padrões de speckles em meio (a) autofocalizador e (b) autodesfocalizador. (c) Funções de autocorrelação de intensidade e (d) funções densidade de probabilidade para um meio linear (pontos azuis, $n_2 = 0$ ),	

autofocalizador (pontos vermelhos, $n_2 > 0$ ) e autodesfocalizador (pontos verdes, $n_2 < 0$ ).....	68
Figura 28 – Arranjo experimental utilizado para os experimentos de propagação não linear de padrões de speckles. ....	69
Figura 29 – Funções de (a, c) autocorrelação, $g^{(2)}$ , e (b, d) densidade de probabilidade, $p(I)$ , dos padrões speckles com envoltória de intensidade Gaussiano após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM e (c, d) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente.....	72
Figura 30 – Análises estatísticas das funções de (a, c) autocorrelação, $g^{(2)}$ , e (b, d) densidade de probabilidade, $p(I)$ , dos padrões speckles com envoltória de intensidade super-Gaussiano após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM e (c, d) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente. ....	74
Figura 31 – Representação dos fenômenos de absorção que sofrem os feixes Gaussiano (curva preta), super-Gaussiano (curva azul) e top-hat (curva vermelha). As expressões representam as regiões com coeficiente de absorção linear, $\alpha_0$ , absorção saturada de 1 fóton $\alpha_0 I + I/IS_{1PA}$ e limiar de intensidade de saturação $IS_{1PA}$ . ....	76
Figura 32 – Análises estatísticas das funções de (a, c, e) autocorrelação, $g^{(2)}$ , e (b, d, f) densidade de probabilidade, $p(I)$ , dos padrões speckles com envoltória de intensidade top-hat após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM; (c, d) 0,046 mM e (e, f) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente. ....	78
Figura 33 – Padrões de speckles gerados por transmitir um feixe com perfil de intensidade top-hat por um difusor de luz posicionado (a) fora do telescópio (área de iluminação grande) e (b) dentro do telescópio (área de iluminação pequena).....	79
Figura 34 – Análises estatísticas das funções de (a, c, e) autocorrelação, $g^{(2)}$ , e (b, d, f) densidade de probabilidade, $p(I)$ , dos padrões <i>speckles</i> com envoltória de intensidade <i>top-hat</i> (com uma área de iluminação pequena do difusor) após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM; (c, d) 0,046 mM e (e, f) 0,031 mM. ....	81
Figura 35 – (a) Valores máximos das funções de autocorrelação, $g^{(2)}$ , em função da intensidade incidente, para um padrão de speckles com envoltória de intensidade Gaussiano propagando-se no corante LDS722 (0,031 mM). Funções de correlação	

correspondentes aos três regimes de intensidade destacados na figura (a), onde o efeito dominante corresponde à: (b) saturação de 1PA (região azul); (c) 2PA (região amarela) e (d) saturação da 2PA (região rosa). .....	84
Figura 36 – (a) Valores máximos das funções de autocorrelação, $g^{(2)}$ , em função da intensidade incidente, para um padrão de speckles com envoltória de intensidade super-Gaussiano propagando-se no corante LDS722 (0,031 mM).....	86
Figura 37 – Representação do gradiente de temperatura e índice de refração induzido num material autodesfocalizador.....	88
Figura 38 – (a) Funções de correlação cruzada, $g_{cross}^{(2)}$ , obtidas a partir dos experimentos de propagação de padrões de speckles, com envoltória de intensidade Gaussiano, no corante LDS722 diluído em etanol para uma concentração de 0,062mM. (b) Valores de $\Delta r$ para os quais foi encontrado os máximos de $g_{cross}^{(2)}$ em função da intensidade incidente. ....	89
Figura 39 – (a) Padrões de speckles obtidos numericamente e deslocados uma distância de 46 pixels no eixo horizontal. (b) Cálculo das funções de correlação cruzada, $g_{cross}^{(2)}$ , para os padrões da figura (a) com deslocamentos de 0, 15, 26 e 46 pixels. (c) Valores de $\Delta r$ em função da posição dos máximos de $g_{cross}^{(2)}$ . ....	90

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Parâmetros de ajuste das curvas de Varredura Z de fenda aberta das figuras 24, 25 e 26 usando a equação 65.....	64
--	----

## LISTA DE EQUAÇÕES

Equação 1 .....	23
Equação 2 .....	25
Equação 3 .....	25
Equação 4 .....	25
Equação 5 .....	25
Equação 6 .....	26
Equação 7 .....	26
Equação 8 .....	27
Equação 9 .....	27
Equação 10 .....	27
Equação 11 .....	27
Equação 12 .....	27
Equação 13 .....	27
Equação 14 .....	27
Equação 15 .....	28
Equação 16 .....	28
Equação 17 .....	28
Equação 18 .....	28
Equação 19 .....	28
Equação 20 .....	28
Equação 21 .....	28
Equação 22 .....	29
Equação 23 .....	29
Equação 24 .....	29
Equação 25 .....	30
Equação 26 .....	30
Equação 27 .....	30
Equação 28 .....	31
Equação 29 .....	32
Equação 30 .....	33
Equação 31 .....	33

Equação 32 .....	33
Equação 33 .....	33
Equação 34 .....	33
Equação 35 .....	33
Equação 36 .....	34
Equação 37 .....	34
Equação 38 .....	35
Equação 39 .....	35
Equação 40 .....	35
Equação 41 .....	35
Equação 42 .....	37
Equação 43 .....	37
Equação 44 .....	37
Equação 45 .....	38
Equação 46 .....	39
Equação 47 .....	39
Equação 48 .....	39
Equação 49 .....	39
Equação 50 .....	41
Equação 51 .....	41
Equação 52 .....	45
Equação 53 .....	46
Equação 54 .....	46
Equação 55 .....	46
Equação 56 .....	46
Equação 57 .....	47
Equação 58 .....	48
Equação 59 .....	50
Equação 60 .....	51
Equação 61 .....	51
Equação 62 .....	51
Equação 63 .....	51
Equação 64 .....	51
Equação 65 .....	65

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b> .....	17
<b>2</b>	<b>FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA</b> .....	20
2.1	INTRODUÇÃO.....	20
2.2	PADRÕES DE <i>SPECKLES</i> .....	21
<b>2.2.1</b>	<b>Difração da luz e formação dos padrões de <i>speckles</i></b> .....	21
<b>2.2.2</b>	<b>Estatística de primeira ordem</b> .....	25
<b>2.2.3</b>	<b>Estatística de segunda ordem</b> .....	30
2.3	FUNDAMENTOS DE ÓPTICA NÃO LINEAR.....	32
<b>2.3.1</b>	<b>Propagação de feixes em um meio não linear</b> .....	33
<b>2.3.2</b>	<b>Polarização e susceptibilidade não linear</b> .....	34
<b>2.3.3</b>	<b>Absorção não linear</b> .....	36
2.3.3.1	Absorção de dois fótons (2PA).....	36
2.3.3.2	Absorção saturada.....	38
<b>2.3.4</b>	<b>Refração não linear de origem térmica</b> .....	39
2.3.4.1	Efeito de autofocalização e autodesfocalização.....	42
<b>3</b>	<b>PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL</b> .....	44
3.1	INTRODUÇÃO.....	44
3.2	FEIXE GAUSSIANO.....	44
<b>3.2.1</b>	<b>Caracterização experimental</b> .....	47
3.3	FEIXE <i>TOP-HAT</i> .....	49
<b>3.3.1</b>	<b>Geração de um feixe <i>top-hat</i> e sua caracterização</b> .....	51
3.4	PADRÕES DE <i>SPECKLES</i> E SUAS CARACTERÍSTICAS.....	54
3.5	RESPOSTA ÓPTICAS DO CORANTE LDS 722.....	58
<b>3.5.1</b>	<b>Propriedades ópticas lineares</b> .....	59
<b>3.5.2</b>	<b>Propriedades ópticas não lineares</b> .....	61
<b>4</b>	<b>RESULTADOS EXPERIMENTAIS DA PROPAGAÇÃO NÃO LINEAR DE PADRÕES DE <i>SPECKLES</i></b> .....	67
4.1	INTRODUÇÃO.....	67
4.2	ARRANJO EXPERIMENTAL.....	69
4.3	PROPAGAÇÃO NÃO LINEAR DE PADRÕES DE <i>SPECKLES</i> E SUAS PROPRIEDADES ESTATÍSTICAS.....	70

<b>4.3.1</b>	<b>Propagação dos padrões de <i>speckles</i></b> .....	71
<b>4.3.2</b>	<b>Propagação dos padrões de <i>speckles</i></b> .....	82
4.4	ANÁLISE DA AUTODEFLEXÃO (SELF-DEFLECTION OR SELF-BENDING) EM PADRÕES DE SPECKLES .....	87
<b>5</b>	<b>CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS</b> .....	92
	<b>REFERÊNCIAS</b> .....	95

## 1 INTRODUÇÃO

A interação entre luz e matéria é objeto de estudo nas diversas áreas de atuação da óptica. Tais estudos podem ser divididos em dois regimes, em função da intensidade, que influenciam a resposta óptica dos materiais envolvidos nesta interação, o regime linear e o regime não linear. Em termos gerais, a resposta óptica linear decorre da interação entre feixes de luz, com intensidade baixa, ou seja, muito menor que a de saturação do sistema, incidindo em qualquer meio material. Os fenômenos ópticos provenientes dessa interação são, por exemplo, a refração, reflexão, espalhamento e absorção linear (YOUNG et al, 2016). Esses fenômenos podem ser entendidos a partir de uma relação de proporcionalidade linear entre o campo incidente,  $E$ , e a resposta óptica do material, expressada através da polarização,  $P$ , que será discutida no capítulo 2. Em contrapartida, a resposta óptica não linear em meios materiais requer que os feixes de luz que interagem com o meio sejam de alta intensidade, em comparação ao campo intra-atômico (BOYD, 2007). Nesta condição de campos intensos, a polarização apresenta uma relação de proporcionalidade com o campo incidente,  $E$ , que vai além do regime linear, isto é, com potência do campo incidente superior a um ( $E^N; N > 1$ ). Como resultado destas novas contribuições, fenômenos ópticos como a geração de segundo harmônico (SHG, do inglês *second-harmonic generation*) (FRANKEN et al., 1961) e terceiro harmônico (THG, do inglês *third-harmonic generation*) (MAKER; TERHUNE, 1965), autofocalização e autodesfocalização (AKHMANOV et al., 1968), entre outros, foram possíveis de ser estudados por diversos grupos de pesquisa.

Devido aos fenômenos ópticos lineares acontecerem em baixa intensidade, diversas fontes de luz podem ser utilizadas para seu estudo, sendo as lâmpadas o exemplo mais simples. Entretanto, foi apenas com o desenvolvimento do primeiro LASER (MAIMAN, 1960), que os fenômenos ópticos não lineares puderam ser estudados experimentalmente, uma vez que, luz de alta intensidade é o fator crucial para a indução de fenômenos de natureza não linear. Contudo, a alta intensidade não é a única característica valiosa do laser para a óptica não linear. A monocromaticidade e a alta coerência espacial e temporal, que não são presentes em fontes como as lâmpadas, trouxeram inúmeras possibilidades para a observação de novos fenômenos ópticos e para o desenvolvimento de técnicas que caracterizassem a resposta óptica de materiais em regimes não lineares (ARAÚJO et al, 2016). Em meio a tantas possibilidades envolvendo o uso de lasers, sua alta coerência deu origem ao estudo da formação de padrões de distribuição de intensidade aleatória, conhecidos como padrões de *speckles*, gerados, por exemplo, pelas

múltiplas interferências da luz coerente após interagir com uma superfície rugosa (GOODMAN, 2000). Apesar dos padrões de *speckles* terem sido inicialmente tratados como algo prejudicial (ruído ou espalhamento incoerente indesejado) (PETERS, 1982), atualmente eles despertam a curiosidade dos pesquisadores pelas inúmeras aplicações possibilitadas pela incoerência da radiação e por sua distribuição espacial aleatória de intensidade e vetores de onda (DUNN et al., 2001).

Com o avanço dos estudos na formação e propagação de padrões de luz incoerentes, como os *speckles*, foi possível identificar que as propriedades estatísticas de tais padrões carregam muita informação da luz ou do meio que os gerou (GOLDFISCHER, 1965). Portanto, análises estatísticas de autocorrelação espacial de intensidade,  $g^{(2)}$ , e de distribuição de probabilidade espacial de intensidade,  $p(I)$ , são utilizados para a caracterização dos padrões de *speckles*, seja eles coletados através de técnicas de propagação no espaço livre ou por meio de um sistema de formação de imagens (GOODMAN, 1976). A análise dos padrões de *speckles* permite obter informações como a coerência da fonte de luz incidente ou a rugosidade de superfície (WIESNER et al., 2012). Mais recentemente, estudos direcionados à propagação de um padrão de *speckles* (formado a partir de um feixe laser que atravessa um difusor) em meios não lineares, trouxeram informações de que há mudanças entre as propriedades estatísticas,  $g^{(2)}$  e  $p(I)$ , do padrão transmitido e o incidente que dependem da resposta óptica não linear do meio (BROMBERG et al., 2010). Tais mudanças foram notadas em meios líquidos que apresentam não linearidade de terceira ordem negativa (autodesfocalizadores), e meios vítreos com não linearidade positiva (autofocalizadores) (BROMBERG et al., 2010). Além disso, um estudo em vapores atômicos reporta que as propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* podem ter comportamentos diferentes aos reportados por Bromberg et al., se o meio apresenta uma absorção não linear significativa (ALVES et al., 2019).

Como um dos objetivos desta dissertação é incrementar os conhecimentos a respeito da propagação de feixes de luz incoerentes em meios não linear, no capítulo 2 é desenvolvida a fundamentação teórica sob feixes de luz incoerentes, começando pela descrição da formação dos padrões de *speckles* e suas propriedades estatísticas de primeira e segunda ordem. Ainda no capítulo 2 é apresentada uma discussão de noções básicas sobre óptica não linear, chegando à descrição de propagação de feixes de luz laser em meios não lineares. Para analisar a influência dos parâmetros de refração e absorção não linear do meio sob as estatísticas dos padrões de luz incoerente propagados, foram estudados 3 tipos diferentes de padrões de *speckles* sendo propagados em um meio autodesfocalizador que apresenta regimes de intensidade com

absorção saturada de 1 e 2 fótons (corante LDS722 diluído em etanol). Os diferentes padrões de *speckles* foram gerados a partir da transmissão, por um difusor de luz, de um feixe coerente com perfil de intensidade: Gaussiano, super-Gaussiano e *top-hat*. O Capítulo 3 descreve teoricamente as características gerais das três distribuições de intensidade dos feixes (envoltórias) usados para gerar os padrões de *speckles*, bem como o arranjo experimental usado para a geração dos diferentes padrões. A caracterização dos feixes obtidos em laboratório, antes e após atravessar o difusor de luz, assim como a caracterização linear e não linear do corante utilizado para as medidas também são apresentadas neste capítulo. Por fim, as análises das mudanças nas propriedades estatísticas dos padrões de *speckles*,  $g^{(2)}$  e  $p(I)$ , propagados no meio autofocalizador, em função da magnitude da não linearidade refrativa e absorptiva, bem como suas respectivas discussões, foram todos percorridos no Capítulo 4.

Por outro lado, além do estudo da propagação não linear de padrões de *speckles* realizada através da função de autocorrelação  $g^{(2)}$ , nesta dissertação apresenta-se uma metodologia, inédita na literatura, que analisa as funções de correlação cruzada,  $g_{cross}^{(2)}$ , entre padrões de *speckles* proveniente de uma propagação não linear e linear, para caracterizar o índice de refração não linear do meio. Essa metodologia é baseada no monitoramento da posição transversal dos *speckles*, os quais sofrem um deslocamento quando a propagação acontece em altas intensidades, devido ao efeito de autodeflexão (*self-deflection* ou *self-bending*). Simulações numéricas do cálculo da função de correlação cruzada em pares de padrões de *speckles* deslocados corroboram o potencial da técnica para medir o fenômeno de autodeflexão. Por último, as conclusões e perspectivas dos trabalhos desenvolvidos nesta dissertação são descritos no Capítulo 5.

## 2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

### 2.1 INTRODUÇÃO

Entre os fenômenos ópticos mais fundamentais que surgem devido a interação de luz com a matéria destacam-se a refração, absorção e espalhamento. Este último tem a característica peculiar de alterar a distribuição de intensidade de um feixe de luz que é transmitido ou refletido por um meio material, quando o grau de espalhamento é significativo. As primeiras evidências de mudanças na distribuição de intensidade de feixes de luz devido ao espalhamento foram reportadas por cientistas como Verdet (VERDET, 1865) e Lord Rayleigh (LORD RAYLEIGH, 1880), em estudos sobre a formação de anéis de difração de Fraunhofer, e, mais tarde, por Von Laue, em uma série de artigos que tratam da dispersão da luz se propagando através de um grande número de partículas (VON LAUE, 1914). Entretanto, é com o surgimento do laser (MAIMAN, 1960), em 1960, que os novos fenômenos resultantes do espalhamento de luz começaram a ganhar relevância, pois foi entendido que as alterações na distribuição de intensidades guardavam informações sobre propriedades provenientes da luz e dos meios materiais.

Um fenômeno particular da interação de luz laser com meios espalhadores é a geração de padrões granulares de intensidade denominados de *speckles* (GOODMAN, 2000). Tais padrões são o resultado da interferência de campos difratados, provenientes de um feixe de luz coerente (como o emitido por um laser), que interagiram com um material rugoso (GOODMAN, 2000), particularmente quando a rugosidade é da ordem de grandeza do comprimento de onda do feixe que o incide. Apesar da aparência desordenada na distribuição de intensidade dos padrões de *speckles*, atualmente é conhecido que análises estatísticas das suas propriedades podem revelar informações desejadas sobre a coerência do feixe incidente, bem como o grau de irregularidade microscópica do material iluminado (GABOR, 1972).

O presente capítulo da dissertação é dedicado a explorar a origem e propriedades estatísticas de primeira e segunda ordem de padrões de *speckles*, bem como analisar os seus comportamentos de propagação em meios não lineares. O interesse no estudo da interação e propagação de feixes de luz em meios não lineares é baseado em trabalhos prévios que mostram mudanças na estatística de padrões de *speckles* quando afetados pelos fenômenos de autofocalização e autodesfocalização (BROMBERG et al., 2010), bem como em determinar uma metodologia para medir o índice de refração não linear a partir das variações nas funções

de correlação de segundo ordem. Para definir os fundamentos teóricos que serão utilizados na explicação dos resultados desta dissertação, serão discutidos os conceitos básicos da geração e estatística de padrões de *speckles*, bem como será realizada uma breve introdução à óptica não linear.

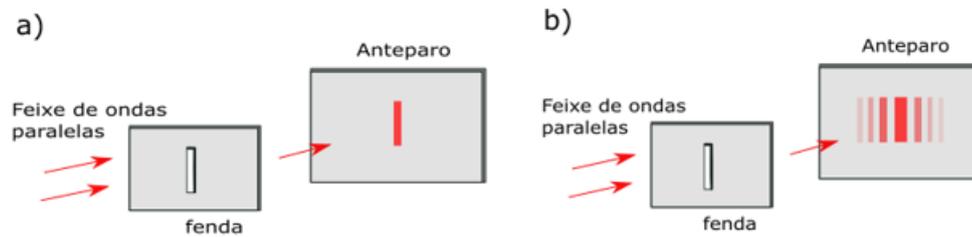
## 2.2 PADRÕES DE *SPECKLES*

Padrões de *speckles* correspondem a imagens do perfil transversal de intensidade de um feixe de luz, com aparência granular, proveniente de interferências que vão de construtivas a destrutivas das ondas de um feixe de luz coerente que é difratado de forma aleatória por uma superfície rugosa. Esse padrão de intensidade granular contém informações a respeito da rugosidade da superfície iluminada, bem como da coerência da fonte de luz incidente. Entretanto, devido à sua característica complexa e aleatória, é necessário apresentá-las em termos estatísticos, como descritos a seguir.

### 2.2.1 Difração da luz e formação dos padrões de *speckles*

Quando um feixe de luz coerente é parcialmente interceptado por um obstáculo é esperado pela óptica geométrica que seja projetada, em um anteparo posterior, uma sombra idêntica ao próprio obstáculo. Dessa maneira, é possível prever as posições da área iluminada e área de sombra formados, como mostrado na Figura 1a. Porém, o que é observado experimentalmente com objetos opacos, fendas ou orifícios de dimensão da ordem de grandeza do comprimento de onda da luz incidente são padrões de franjas brilhantes intercaladas com franjas escuras, como mostrado na Figura 1b. O padrão de franjas é gerado devido ao fenômeno de difração, resultado da natureza ondulatória da luz. A difração pode ser descrita pela superposição de ondas secundárias geradas a partir de uma (ou mais) fonte(s) pontual(is), de acordo com o princípio de Huygens-Fresnel (HECHT, 2017).

Figura 1 – Fonte de luz coerente com frente de ondas paralelas atravessando uma fenda simples e: a) produzindo um padrão óptico esperado pela ótica geometria; b) produzindo um padrão de difração.



Fonte: autora (2022)

A difração de Fresnel e de Fraunhofer são dois tipos de difração diferentes que dependem da distância entre os componentes do sistema óptico: fonte de luz coerente, obstáculo (objetos opacos, fendas ou orifícios) e anteparo. Quando o obstáculo e o anteparo estão muito próximos, é necessário que seja considerada a curvatura das frentes de onda do feixe incidente e transmitido; dessa forma, o padrão de difração apresenta maior grau de dificuldade para ser definido. Tal padrão é associado à difração de Fresnel ou de campo próximo (YOUNG et al, 2016). Por outro lado, quando esses elementos estão distantes suficientemente um do outro, podendo-se considerar desprezível a curvatura da frente de onda do feixe (frente de onda plana), é obtido um padrão de difração de Fraunhofer ou de campo distante (YOUNG et al, 2016).

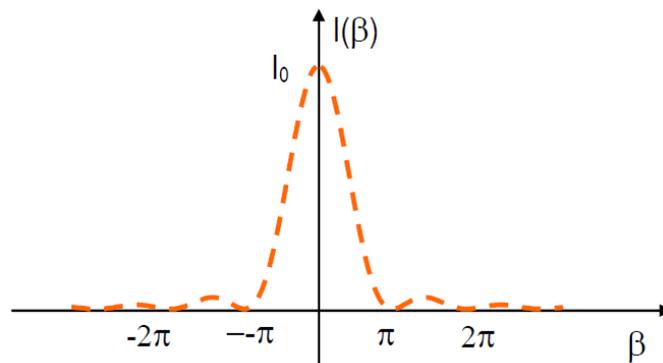
Do mesmo modo, o formato e a quantidade de obstáculos incididos pela luz coerente também são relevantes para a formação dos padrões de difração, podendo gerar franjas claras e escuras, como o representado na Figura 1b. Para exemplificar como ocorre o fenômeno de difração no caso mais simples, é necessário considerar uma frente de onda plana coerente incidindo sobre uma fenda única. Pelo princípio de Huygens-Fresnel pode-se considerar que cada ponto dessa fenda representa uma fonte de ondas esféricas, produzindo ondas secundárias. Ao longo da propagação das ondas secundárias, no campo distante (posição do anteparo), haverá pontos em que elas deverão se superpor, ocorrendo duas possibilidades: (i) pontos em que as ondas estarão em fase e (ii) pontos em que as ondas estarão fora de fase. No primeiro caso, no qual temos uma interferência construtiva, as ondas secundárias terão suas amplitudes somadas gerando pontos de amplitude maiores do que o da onda original, produzindo as franjas brilhantes no anteparo. No segundo caso, as ondas secundárias apresentam fases totalmente opostas, gerando pontos de amplitude nulos devido à interferência destrutiva, e no anteparo são observadas franjas escuras. Em resumo, as franjas brilhantes e escuras intercaladas são resultados de uma série de interferências construtivas e destrutivas que ocorrem devido à sobreposição das ondas secundárias em determinados pontos, resultando no fenômeno de

difração. Cabe mencionar que as interferências construtivas parcial e destrutiva parcial também são observadas no padrão de difração. Particularmente para uma fenda estreita, a distribuição de intensidade pode ser modelada pela expressão (ZILIO, 2017):

$$I(\beta) = I_0 \frac{\text{sen}^2(\beta)}{\beta^2}, \quad (1)$$

onde  $I_0$  representa a intensidade máxima (quando  $\beta = 0$ ),  $\beta = kb\text{sen}(\theta)/2$ ,  $k = 2\pi/\lambda$  é o número de onda,  $\lambda$  é o comprimento de onda,  $b$  é a espessura da fenda e  $\theta$  é o ângulo de difração. Como mostra a Figura 2, o máximo central ocorre para  $\beta = 0$  ( $\theta = 0$ ), enquanto que os mínimos localizam-se em  $\beta = \pm n\pi$ , onde  $n$  é um inteiro.

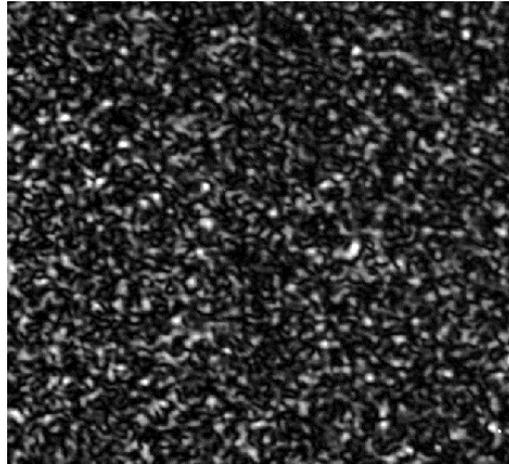
Figura 2 – Perfil de intensidade de um padrão de difração para uma fenda estreita.



Fonte: Zilio (2017)

Um caso mais complexo de difração, devido à grande quantidade de obstáculos que interceptam a luz, é a formação do padrão de *speckles*, representado na Figura 3. Neste caso, um feixe coerente que incide sobre uma superfície rugosa (refletiva ou transparente) apresenta a um observador distante um padrão de manchas claras e escuras com formato e posição aleatórios, ao invés de franjas. Para o caso refletivo, a formação dos *speckles* descrito anteriormente é conhecida como padrão objetivo, sendo bem descrita pela geometria de reflexão de espaço livre (Monteiro, 2012), representado na Figura 4a.

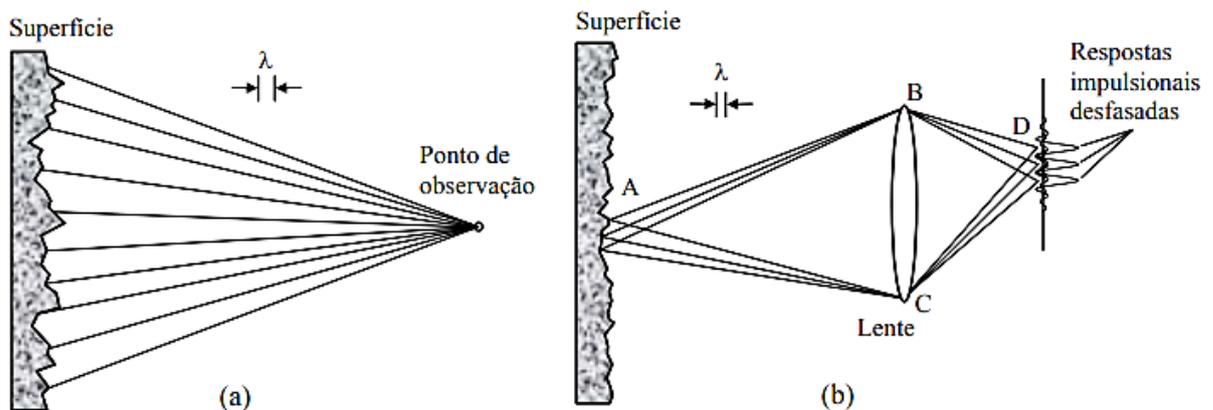
Figura 3 – Representação de um padrão de speckles.



Fonte: autora (2022)

Outra maneira de gerar padrões de *speckles* é através da geometria de formação de imagens, onde o observador distante observará o padrão de *speckles* formado depois de passar por uma lente convergente, como mostrado na Figura 4b (GOODMAN, 1976). Em ambas as situações, um padrão de difração de intensidade granular com características complexas, aleatórias e estacionárias é obtido. Na formação do padrão de *speckles*, a amplitude refletida pela superfície rugosa pode ser constante, porém a fase da onda refletida ou sua polarização (ou ambas) varia aleatoriamente de uma área elementar para outra. Isto acontece porque, ao incidir sobre uma superfície rugosa, a luz terá sua fase ou polarização randomizada pela superfície (OLIVER, 1963).

Figura 4 – Origem física do *speckle* para: (a) propagação no espaço livre, (b) um sistema de formação de imagem.



Fonte: Monteiro (2012)

Pela geração dos padrões de *speckles* ter as características de um fenômeno aleatório, torna-se importante descrever suas propriedades em termos estatísticos, independentemente de ser um padrão formado por propagação no espaço livre ou por um sistema de imagem.

### 2.2.2 Estatística de primeira ordem

Na definição da estatística de primeira ordem, as análises são destinadas à compreensão das propriedades de um único ponto no padrão de *speckles* no espaço. Por simplicidade, vamos estabelecer inicialmente que o feixe incidente em  $(x, y, z)$ , e no tempo  $t$ , é descrito por um campo perfeitamente polarizado e monocromático, possível de ser expressado como um sinal analítico de valor complexo, da forma:

$$u(x, y, z; t) = A(x, y, z) \exp(i2\pi\nu t), \quad (2)$$

onde  $\nu$  é a frequência óptica e  $A(x, y, z)$  é uma amplitude complexa do fasor do campo, descrita por:

$$A(x, y, z) = |A(x, y, z)| \exp[i\theta(x, y, z)], \quad (3)$$

onde  $\theta(x, y, z)$  representa a fase do campo. A irradiância observada em  $(x, y, z)$  é proporcional a:

$$I(x, y, z) = \lim_{T \rightarrow +\infty} \int_{-T/2}^{T/2} |u(x, y, z; t)|^2 dt = |A(x, y, z)|^2. \quad (4)$$

A distribuição de probabilidade da irradiância, ou seja, a probabilidade de um ponto brilhante ou escuro existir em uma região específica, é uma propriedade muito relevante para caracterização dos padrões de *speckles*, pois com ela podemos conhecer a intensidade média,  $\langle I \rangle$ , do padrão de *speckles* e também a probabilidade que a intensidade exceda esse valor médio encontrado no padrão. Para podermos realizar esta análise, é interessante considerar a semelhança do problema em questão com o exemplo clássico do passeio aleatório (LORD RAYLEIGH, 1919). Portanto, assume-se que a amplitude complexa do campo em  $(x, y, z)$  consiste na soma resultante das contribuições defasadas geradas a partir de diferentes regiões de dispersão elementar da superfície rugosa. Assim, a amplitude do fasor do campo pode ser representada por:

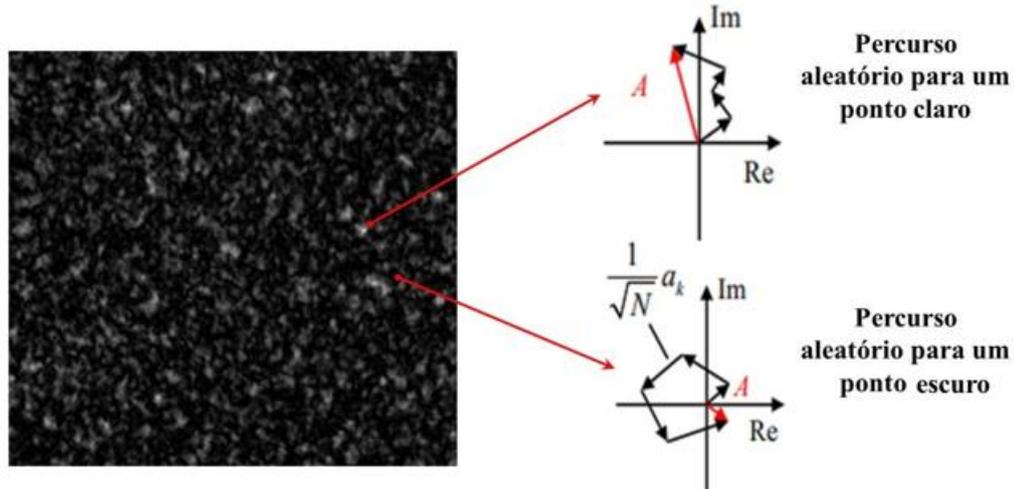
$$A(x, y, z) = \sum_{k=1}^N \frac{1}{\sqrt{N}} a_k(x, y, z) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N |a_k| e^{i\phi_k}, \quad (5)$$

em que  $|a_k|/\sqrt{N}$  e  $\phi_k$ , representam, respectivamente, a amplitude e a fase da contribuição da  $k$ -ésima região de espalhamento e  $N$  é o número total dessas contribuições.

A figura 5 ilustra a adição complexa das contribuições dos fasores elementares de cada região que resulta na amplitude  $A$ . Nos pontos destacados na figura é possível observar que um ponto mais brilhante apresenta uma amplitude resultante maior que um ponto menos brilhante.

Dessa forma é possível considerar que: (i) a amplitude,  $|a_k|/\sqrt{N}$ , assim como a fase,  $\phi_k$ , do  $k$ -ésimo fasor elementar são estatisticamente independentes entre si e dos outros fasores elementares, e (ii) as fases  $\phi_k$  de todas as contribuições elementares são igualmente prováveis de estar em qualquer lugar no intervalo  $(-\pi, \pi)$ .

Figura 5 – Percurso aleatório no plano complexo.



Fonte: Adaptado de Monteiro (2012)

A amplitude complexa do campo em  $(x, y, z)$  pode ter suas partes real e imaginária representadas, respectivamente, por  $A_r$  e  $A_i$ . Como as fases  $\phi_k$  de todas as contribuições elementares são igualmente prováveis de estarem em qualquer lugar no intervalo  $(-\pi, \pi)$ , isso assegura um valor igual a zero para as médias do conjunto de seno e cosseno, resultando em:

$$\langle A_r \rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N \langle |a_k| \rangle \langle \cos \phi_k \rangle = 0,$$

$$\langle A_i \rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N \langle |a_k| \rangle \langle \sin \phi_k \rangle = 0. \quad (6)$$

Com o interesse em obter  $\langle A_r^2 \rangle$  e  $\langle A_i^2 \rangle$ , é importante lembrar que a amplitude  $|a_k|/\sqrt{N}$  e a fase  $\phi_k$  do  $k$ -ésimo fasor elementar são estatisticamente independentes entre si e de todos os outros fasores elementares, de modo que  $\langle \cos \phi_k \cos \phi_m \rangle = \langle \sin \phi_k \sin \phi_m \rangle = 0$ , para  $k \neq m$ , e  $\langle \cos \phi_k \cos \phi_m \rangle = \langle \sin \phi_k \sin \phi_m \rangle = \frac{1}{2}$ , para  $k = m$ . Então:

$$\langle A_r^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{m=1}^N \langle |a_k| |a_m| \rangle \langle \cos \phi_k \cos \phi_m \rangle = \frac{1}{2N} \sum_{k=1}^N \langle |a_k|^2 \rangle, \quad (7)$$

$$\langle A_i^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{m=1}^N \langle |a_k| |a_m| \rangle \langle \cos \phi_k \cos \phi_m \rangle = \frac{1}{2N} \sum_{k=1}^N \langle |a_k|^2 \rangle. \quad (8)$$

Correlacionando a parte real e imaginária, lembrando que  $\langle \cos \phi_k \sin \phi_m \rangle = 0$ , temos:

$$\langle A_r A_i \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{m=1}^N \langle |a_k| |a_m| \rangle \langle \cos \phi_k \sin \phi_m \rangle = 0. \quad (9)$$

As suposições (i) e (ii) satisfazem o teorema do limite central (MIDDLETON, 1960), tornando  $A_r$  e  $A_i$  assintoticamente normais quando  $N \rightarrow \infty$ , ou seja, para  $N$  (número total das contribuições da  $k$ -ésima região de espalhamento) muito grande, as partes real e imaginária da amplitude  $A$  se aproximam de uma distribuição Gaussiana. Com essas considerações, a função densidade de probabilidade (PDF) conjunta das partes real e imaginária da amplitude de um campo em  $(x, y, z)$  pode ser escrito por:

$$p(A_r, A_i) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{A_r^2 + A_i^2}{2\sigma^2}\right), \quad (10)$$

e a variância,  $\sigma^2$ , é dada por:

$$\sigma^2 = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \frac{\langle |a_k|^2 \rangle}{2}, \quad (11)$$

A função de densidade de probabilidade (PDF) definida pela Eq. (10) é comumente conhecida como função de densidade gaussiana circular, devido aos contornos de densidade de probabilidade constante serem círculos no plano complexo (GOODMAN, 1975).

Apesar da importância de discutir as propriedades estatísticas da amplitude complexa do campo, de um ponto de vista prático, as propriedades estatísticas mais utilizadas correspondem a análise da distribuição de intensidade,  $I$ , dos padrões de *speckles*. Logo, para feixes polarizados, a função densidade de probabilidade (PDF) da intensidade e da fase dos padrões de *speckles* podem ser obtidas por usar:

$$I = A_r^2 + A_i^2, \quad (12)$$

$$\theta = \arctan\left(\frac{A_i}{A_r}\right). \quad (13)$$

ou em coordenadas ortogonais:

$$A_r = \sqrt{I} \cos \theta,$$

$$A_i = \sqrt{I} \sin \theta. \quad (14)$$

Para encontrar a função densidade de probabilidade conjunta de  $I$  e  $\theta$ , aplicamos as técnicas usuais para transformações de variáveis aleatórias. A PDF conjunta pode ser expressada pela transformação da eq. (10), usando o Jacobiano da transformação, da forma:

$$p(I, \theta_r) = p(A_r, A_i) J \left( \frac{I, \theta}{A_r, A_i} \right), \quad (15)$$

onde  $J$  é o Jacobiano da transformação, definido por:

$$J \left( \frac{I, \theta}{A_r, A_i} \right) = \begin{vmatrix} \frac{\partial A_r}{\partial I} & \frac{\partial A_r}{\partial \theta} \\ \frac{\partial A_i}{\partial I} & \frac{\partial A_i}{\partial \theta} \end{vmatrix} = 1/2. \quad (16)$$

Substituindo (10) em (15), obtemos:

$$p(I, \theta) = \begin{cases} \frac{1}{4\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{I}{2\sigma^2}\right), & I \geq 0 \\ 0, & -\pi \leq \theta < \pi \\ & \text{caso contrário.} \end{cases} \quad (17)$$

A PDF marginal da fase é deduzido de:

$$p(\theta) = \int_{-\pi}^{\pi} p(I, \theta) dI = \begin{cases} \frac{1}{2\pi}, & -\pi \leq \theta < \pi \\ 0, & \text{caso contrário.} \end{cases} \quad (18)$$

Da mesma forma, a PDF marginal da intensidade é dada por:

$$p(I) = \int_{-\pi}^{\pi} p(I, \theta) d\theta = \begin{cases} \frac{1}{2\sigma^2} \exp\left(-\frac{I}{2\sigma^2}\right) & I \geq 0 \\ 0 & \text{caso contrário.} \end{cases} \quad (19)$$

Observando as equações (18) e (19) é notório que a fase em um dado ponto de um padrão de speckle polarizado, corresponde à estatística uniforme, enquanto a intensidade corresponde à estatística exponencial negativa. É válido enfatizar que, portanto, a intensidade e a fase são estatisticamente independentes em qualquer ponto do padrão analisado.

Por outro lado, o  $n$ -ésimo momento de intensidade de speckles é definido como:

$$\langle I^n \rangle = \int_0^{\infty} I^n p(I) dI, \quad (20)$$

e por usar a equação (19), obtemos:

$$\langle I^n \rangle = n! (2\sigma^2)^n. \quad (21)$$

Para o primeiro momento ( $n = 1$ ) temos que  $\langle I \rangle = 2\sigma^2$ . Substituindo esse resultado na equação (21), temos:

$$\langle I^n \rangle = n! \langle I \rangle^n. \quad (22)$$

Fazendo o mesmo procedimento para o segundo momento ( $n = 2$ ), na equação (22) e subtraindo ambos os lados por  $\langle I \rangle^2$  pode-se encontrar a variância  $\sigma_I^2$  e o desvio padrão  $\sigma$ :

$$\begin{aligned} \langle I^2 \rangle &= 2\langle I \rangle^2, \\ \sigma_I^2 &= \langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2 = \langle I \rangle^2. \\ \sigma_I &= \langle I \rangle \end{aligned} \quad (23)$$

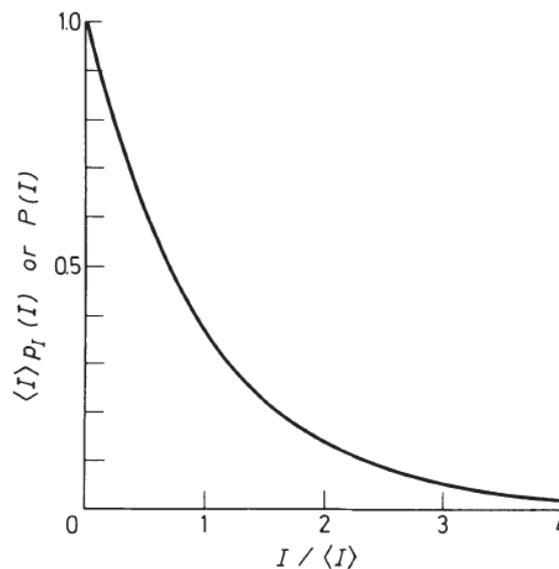
Da equação (23) é possível ver que o desvio padrão  $\sigma_I$  é igual à intensidade média  $\langle I \rangle$ , o que conduz a uma medida do contraste de um padrão de *speckles*. Por definição, o contraste é determinado pela razão  $C = \frac{\sigma_I}{\langle I \rangle}$  (GOODMAN, 1975). Portanto, o contraste de um padrão de *speckles* polarizado sempre será o valor máximo ( $C = 1$ ).

Substituindo a equação (21) com  $n = 1$  na equação (19), temos:

$$p(I) = \frac{1}{\langle I \rangle} \exp\left(-\frac{I}{\langle I \rangle}\right), \quad (24)$$

que encontra-se em função da intensidade média onde é satisfeita para  $I \geq 0$ , caso contrário,  $p(I) = 0$ . A PDF, descrita pela equação (24), é ilustrada na figura 6.

Figura 6 – Função normalizada de densidade de probabilidade de um padrão de *speckles* de um campo polarizado, com difusão normal.



Fonte: Goodman (1975)

### 2.2.3 Estatística de segunda ordem

Enquanto a estatística de primeira ordem, descrita na seção anterior, possibilita o estudo das propriedades de cada ponto presente em um padrão de *speckles*, a estatística de segunda ordem tem como objetivo medir o tamanho dos grãos de intensidade (*speckles*) e a distribuição dessa granularidade na estrutura espacial completa de um padrão. Esta medida é feita indiretamente através das correlações espaciais ou temporais de intensidade (OHTSUBO, 1981).

No contexto da estatística de segunda ordem, o padrão de *speckles* pode ser descrito através do uso da função de correlação de espaço-tempo normalizada em relação à variável aleatória irradiância (intensidade), a qual é escrita da seguinte forma:

$$g^{(2)} = \frac{\langle I(\mathbf{X}_1, t_1) I(\mathbf{X}_2, t_2) \rangle}{\langle I(\mathbf{X}_1, t_1) \rangle \langle I(\mathbf{X}_2, t_2) \rangle} \quad (25)$$

onde  $\langle \dots \rangle$  representa a média sobre o espaço  $(\mathbf{X}_1, \mathbf{X}_2)$ . Considerando que todo o campo espalhado exibe uma distribuição gaussiana complexa no espaço  $(\mathbf{X}_1, \mathbf{X}_2)$ , de acordo com o teorema de momentos de Reed (REED, 1962) a função de correlação de segunda ordem,  $g^{(2)}$ , pode ser reescrita em termos da correlação de intensidade de primeira ordem, da forma (GOODMAN, 2000):

$$g^{(2)} = 1 + |g^{(1)}|^2, \quad (26)$$

onde  $g^{(1)}$  é a função de correlação da amplitude normalizada:

$$g^{(1)} = \frac{\langle a(\mathbf{X}_1, t_1) a^*(\mathbf{X}_2, t_2) \rangle}{\sqrt{\langle |a(\mathbf{X}_1, t_1)|^2 \rangle \langle |a(\mathbf{X}_2, t_2)|^2 \rangle}} \quad (27)$$

com  $a(\mathbf{X}, t) = e^{-i\omega t} \int U_0(\mathbf{x}) a_0(\mathbf{x}, t) \mathbf{K}(\mathbf{X}, \mathbf{x}) d^2\mathbf{x}$  sendo a amplitude complexa no plano de detecção (OHTSUBO, 1981);  $U_0(\mathbf{x})$ ,  $a_0(\mathbf{x}, t)$  e  $\mathbf{K}(\mathbf{X}, \mathbf{x})$  são os termos relacionados, respectivamente, a amplitude complexa da luz incidente no plano do objeto, função estatística de transferência do objeto e, por último, a função de transferência do sistema óptico. Esses termos são relevantes para que seja possível descrever estatisticamente as variadas formas de sistema óptico que podem gerar um padrão de *speckles*.

Para analisar os resultados dos experimentos desenvolvido nesta dissertação, a autocorrelação espacial foi a forma escolhida para verificar o grau de semelhança entre pontos de um mesmo padrão de *speckles*, usando a intensidade da luz como a variável aleatória a ser estudada. O cálculo da função de autocorrelação requer algumas considerações: (i) a luz

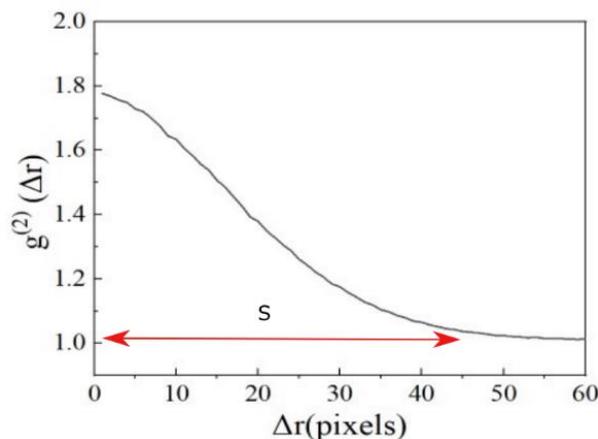
coerente deve iluminar um objeto rugoso cuja área iluminada deve ser maior que o tamanho da rugosidade desse objeto; (ii) a amplitude complexa seja representada pela variável aleatória gaussiana complexa circular, devido à contribuição de muitos pontos de espalhamento provenientes da rugosidade do objeto. Dessa maneira, a função de autocorrelação de intensidade no espaço normalizada, é dada por:

$$g^{(2)}(\Delta r) = \frac{\langle \int d^2r I(r)I(r+\Delta r) \rangle}{\int d^2r \langle I(r) \rangle \langle I(r+\Delta r) \rangle}, \quad (28)$$

onde a integração representa a imagem sendo transladada em todas as direções e a intensidade da fonte de luz geradora dos *speckles* não muda.

A função de autocorrelação de intensidade pode ser encontrada de várias maneiras. Nesta dissertação, a função  $g^{(2)}(\Delta r)$  foi calculada através do tratamento de uma imagem que contém um padrão de *speckles* capturada por uma câmera CCD. A imagem armazenada foi lida por um programa de computador, feito em *python*, que realiza comparações da mesma imagem transladando-a e a comparando com ela mesma. É importante destacar que o tamanho médio dos *speckles* ( $S$ ) pode ser obtido pela largura da função  $g^{(2)}(\Delta r)$ , representada pela figura 7. Como o padrão de manchas flutua no tempo, considere um detector localizado em uma determinada posição  $\mathbf{r}$  neste padrão de manchas flutuantes. Se a resposta do detector for mais rápida do que a taxa de flutuações e este detector também for menor do que o tamanho de uma única mancha, então a probabilidade de medir uma determinada intensidade  $I = |\mathbf{E}|^2$  é conhecida por  $p(I)$ . Flutuações da intensidade serão correlacionadas com a largura típica  $S$  de uma única mancha. A distância entre dois detectores para os quais as flutuações das intensidades medidas se tornam não correlacionadas é, portanto, uma medida do tamanho da mancha  $S$  (BROMBERG et al., 2010).

Figura 7 – Função autocorrelação  $g^{(2)}(\Delta r)$  normalizada. Com tamanho de  $S$  aproximadamente de 45 pixels.



Fonte: autora (2022)

Na função de autocorrelação acima representada, calculada a partir de um padrão de *speckles*, também é possível interpretar que à medida em que um ponto  $P_2$  é afastado de  $P_1$ , ocorre algum grau de perda de correlação. Isso significa que o padrão gerado tem uma coerência espacial limitada, onde pontos próximos apresentam maior correlação do que pontos mais distantes (GOODMAN, 2000).

Outra forma de estatística de segunda ordem, que também foi utilizada para análise nesta dissertação, é a função de correlação cruzada  $g_{cross}^{(2)}(\Delta r)$ . Esta última difere da autocorrelação,  $g^{(2)}(\Delta r)$ , apenas pelo fato dos padrões de *speckles* comparados, mediante a correlação, terem sido gerados por feixes de luz diferentes. Isso significa que, na correlação cruzada  $g_{cross}^{(2)}(\Delta r)$ , uma imagem de intensidade menor foi comparada com outra imagem de intensidade maior e seu grau de correlação foi estatisticamente medido e posteriormente associado à resposta não linear dos meios de propagação, podendo ser expressa da seguinte maneira:

$$g_{cross}^{(2)}(\Delta r) = \frac{\langle \int d^2r I_1(r) I_2(r+\Delta r) \rangle}{\int d^2r \langle I_1(r) \rangle \langle I_2(r+\Delta r) \rangle} \quad (29)$$

### 2.3 FUNDAMENTOS DE ÓPTICA NÃO LINEAR

Fenômenos ópticos diversos podem ser observados a partir da interação entre a luz e a matéria, os quais dependem das características do meio material (índice de refração, coeficiente de absorção, coeficiente de dispersão e espalhamento etc.) e da radiação eletromagnética (polarização, intensidade, comprimento de onda, tempo de duração dos pulsos etc.). Uma forma de categorizar fenômenos ópticos é a partir da sua dependência com a intensidade da radiação. Logo, se um feixe de luz de baixa intensidade, muito menor que a de saturação do sistema, incide sobre um meio material, fenômenos ópticos como refração e absorção da luz podem ser observados e descritos através de uma relação linear entre polarização,  $\mathbf{P}$ , e campo elétrico,  $\mathbf{E}$ . Tais fenômenos formam parte do campo de estudo da óptica linear. No entanto, se o feixe de luz apresenta uma alta intensidade (como os emitidos por lasers pulsados), comparável a intensidade de campo atômico, os fenômenos ópticos começam a apresentar um comportamento que depende da intensidade de luz incidente (BOYD, 2007). Tais fenômenos são estudados pela óptica não linear e descritos através da polarização, a qual pode ser expressada através de uma expansão em série de potência do campo elétrico. Portanto, para descrever as respostas ópticas não lineares, é necessário a compreensão da relação constitutiva

entre polarização induzida  $\mathbf{P}$  e campo elétrico  $\mathbf{E}$ , como descrito nesta seção. Cabe ressaltar que os fundamentos discutidos nesta seção correspondem às bases dos fenômenos ópticos não lineares induzidos por feixes de luz coerentes. A interpretação para a propagação não linear de padrões de *speckles* (feixes de luz incoerente) são discutidos no Capítulo 4 dos Resultados experimentais.

### 2.3.1 Propagação de feixes em um meio não linear

Um feixe de luz laser, por ser uma onda eletromagnética, pode ter sua propagação em um meio material descrita a partir de um conjunto de equações conhecidas como as equações de Maxwell (BOYD, 2007). De forma específica, a propagação pode ser descrita pela função de onda do campo elétrico da radiação, a qual considera na sua expressão informações a respeito das interações lineares e não lineares que ocorrem entre a radiação e matéria. Para deduzir esta equação de propagação, iniciaremos o estudo considerando que o vetor de onda do campo elétrico  $\mathbf{E}$  de um feixe de luz com perfil transversal gaussiano se propaga em um meio material dielétrico sem magnetização ( $\mathbf{M} = 0$ ), eletricamente neutro ( $\rho = 0$ ) e não condutor ( $\mathbf{J} = 0$ ). Neste sentido, as equações de Maxwell podem ser escritas da forma:

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0; \quad (30)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0; \quad (31)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}; \quad (32)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}; \quad (33)$$

onde,  $\mathbf{D}$  é o vetor deslocamento elétrico,  $\mathbf{B}$  é a indução magnética,  $\mathbf{E}$  é campo elétrico e  $\mathbf{H}$  é o campo magnético.

O vetor deslocamento elétrico,  $\mathbf{D}$ , apresenta a seguinte relação com o campo elétrico,  $\mathbf{E}$ :

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}, \quad (34)$$

onde,  $\varepsilon_0$  a permissividade do espaço livre (vácuo) e  $\mathbf{P}$  é a polarização elétrica induzida no meio. Em termos do campo elétrico, a função de onda pode ser descrita da seguinte maneira:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0, \quad (35)$$

Para obter nosso objetivo de incluir a polarização, na equação de propagação, como um parâmetro que relaciona a resposta de um material frente ao campo eletromagnético, podemos reescrever a equação (35) usando a expressão (34). Além disso, com o intuito de estudar a propagação não linear de feixes de luz, consideraremos as contribuições lineares e não lineares da polarização, da forma  $\mathbf{P} = \mathbf{P}^{(L)} + \mathbf{P}^{(NL)}$ . Com base nisto, as contribuições não lineares da polarização também influenciam o vetor deslocamento elétrico  $\mathbf{D}$ , sendo expressado por:  $\mathbf{D} = (\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{(L)}) + \mathbf{P}^{(NL)} = \mathbf{D}^L + \mathbf{P}^{(NL)}$ , em que  $\mathbf{D}^L$  é a parte linear do deslocamento elétrico. Fazendo as manipulações matemáticas necessárias e assumindo o caso mais simples de um meio isotrópico livre de perdas e dispersão, é obtida a equação de onda que descreve a propagação não linear de campos eletromagnéticos, da forma:

$$-\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{\epsilon}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(NL)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}, \quad (36)$$

onde,  $c = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$  é a velocidade da luz no vácuo e  $\mu_0$  é a permeabilidade magnética do vácuo.

O primeiro termo do lado esquerdo da equação (36) descreve a evolução do campo  $\mathbf{E}$  no domínio espacial, ao longo do eixo de propagação, enquanto o segundo termo do lado esquerdo representa a evolução temporal. Já o termo do lado direito da equação (36) mostra a influência das propriedades não lineares sobre a propagação do campo  $\mathbf{E}$ , porém é nulo para o caso de meios lineares. Portanto, a solução da equação (36), seja analítica ou numérica, permite simular a propagação espaço-temporal de campos ópticos em meios isotrópicos lineares e não lineares.

### 2.3.2 Polarização e susceptibilidade não linear

Quando um feixe de luz incide sobre um meio dielétrico, o fenômeno de polarização induzida  $\mathbf{P}$  começa a ocorrer, isto é, acontece uma separação microscópica das cargas no meio dielétrico como resposta à incidência do campo elétrico,  $\mathbf{E}$ . Essas separações de cargas resultam na formação de vários momentos de dipolo induzido,  $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{r}, t)$ , que oscilam de acordo com a frequência do campo elétrico aplicado. A média desses dipolos elétricos induzidos por unidade de volume,  $\langle \boldsymbol{\mu}(\mathbf{r}, t) \rangle$ , representa a polarização elétrica induzida,  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ , dada por:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = N \langle \boldsymbol{\mu}(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (37)$$

onde  $N$  é o número de dipolos microscópicos por unidade de volume.

Uma vez que as oscilações dos momentos de dipolo respondem à intensidade do campo elétrico, pode-se escrever então que, se a luz incidente for de baixa intensidade, a polarização induzida,  $\mathbf{P}$ , varia linearmente com o campo elétrico aplicado,  $\mathbf{E}$ , segundo a expressão:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \quad (38)$$

onde  $\chi^{(1)}$  é o tensor susceptibilidade linear do meio, o qual guarda informações do índice de refração, ( $n \propto \text{Re}[\chi^{(1)}]$ ), e coeficiente de absorção lineares do meio, ( $\alpha \propto \text{Im}[\chi^{(1)}]$ ).

Quando a intensidade da luz incidente é muito alta, da ordem do campo intra-atômico, a resposta óptica do meio material se apresenta de maneira não linear e o vetor polarização total induzida,  $\mathbf{P}$ , pode ser escrita em termos de uma expansão de série de potências do campo elétrico da luz (BOYD, 2007), dada por:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 [\chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots], \quad (39)$$

onde o primeiro termo representa a contribuição da polarização linear, descrito através da equação (39), e os termos  $\chi^{(2)}$  e  $\chi^{(3)}$  são, respectivamente, as susceptibilidades de segunda e terceira ordens que compõem as não lineares de menor ordem par e ímpar do meio material.

Reescrevendo a equação (39) em termos de frequência, obtém-se:

$$\frac{\mathbf{P}(\omega_0)}{\varepsilon_0} = \chi^{(1)}(\omega_0; \omega_0) \cdot \mathbf{E}(\omega_0) + \chi^{(2)}(\omega_0; \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2) + \chi^{(3)}(\omega_0; \omega_1, \omega_2, \omega_3) : \mathbf{E}(\omega_1)\mathbf{E}(\omega_2)\mathbf{E}(\omega_3) + \dots \quad (40)$$

Em que,  $\omega_0$  é frequência de saída e  $\omega_1, \omega_2$  e  $\omega_3 \dots$  são frequências dos feixes de entrada. Os símbolos  $(\cdot)$ ,  $(:)$ ,  $(:)$  representam o produto tensorial das susceptibilidades com os campos elétricos. Entretanto, por simplicidade, nesta dissertação trabalharemos com a representação escalar da polarização frente aos campos eletromagnéticos, isto é:

$$P = \varepsilon_0 [\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots] \quad (41)$$

A susceptibilidade de um material é uma grandeza física complexa que apresenta uma dependência direta com a simetria estrutural atômica do meio material irradiado, além de depender da frequência do campo elétrico incidente. A susceptibilidade de segunda ordem,  $\chi^{(2)}$ , está presente nos materiais não centro-simétricos e é responsável por induzir os fenômenos de geração de segundo harmônico (SHG), geração de soma e diferença de frequência e retificação óptica. Já a susceptibilidade de terceira ordem,  $\chi^{(3)}$ , está presente nos materiais com ou sem simetria de inversão, e é responsável por induzir os fenômenos de geração de terceiro

harmônico (THG), absorção de dois fótons, automodulação de fase, efeito Kerr óptico, entre outros.

Frente à diversidade de fenômenos ópticos não lineares que podem ser explorados, para fins desta dissertação serão discutidos apenas alguns dos efeitos não lineares de terceira ordem (refrativos e absorptivos) que estão presentes ao longo da propagação não linear dos padrões de *speckles*.

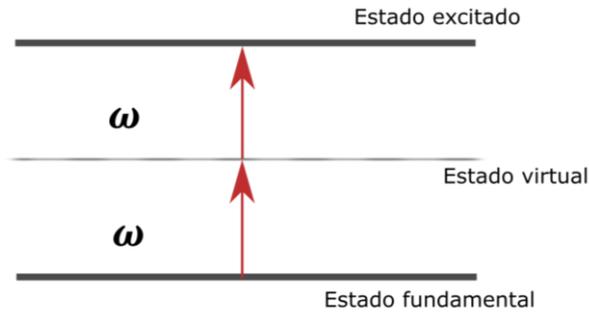
### 2.3.3 Absorção não linear

A absorção não linear é um dos fenômenos ópticos que ocorre em materiais devido ao estímulo de um feixe de luz laser de alta intensidade. Nesse caso, o feixe laser que atravessa o meio material sofre uma diminuição na sua intensidade que depende da sua própria intensidade. Os mecanismos para perda de intensidade não linear podem estar associados aos processos de absorção de dois fótons (2PA, pela sua sigla em inglês), absorção de estados excitados (absorção saturável ou absorção saturável reversa), ou ainda absorção multifotônica. Por se tratar de um processo não paramétrico, esses fenômenos têm relação com a parte imaginária da susceptibilidade não linear (BOYD, 2007), de forma que a polarização induzida no meio material modifica, não linearmente a intensidade de feixes de luz transmitidos.

#### 2.3.3.1 Absorção de dois fótons (2PA)

O processo físico que ocorre na 2PA está ilustrado na Figura 8, no qual dois fótons de frequência  $\omega$ , ao incidir em um meio não linear, são absorvidos simultaneamente de forma a transferir um elétron de um nível de menor energia (tipicamente, o estado fundamental) para um nível de energia mais elevado (estado excitado). Para que o fenômeno de 2PA ocorra é necessário que o feixe incidente apresente intensidade alta o suficiente, de forma que a probabilidade de absorção de dois fótons simultâneos seja expressiva (SUTHERLAND, 2003).

Figura 8 – Diagrama de níveis de energia para absorção de dois fótons de mesma frequência  $\omega$ .



Fonte: autora (2022)

O fenômeno de 2PA é induzido, em materiais centrossimétricos, através da componente da parte imaginária da susceptibilidade de terceira ordem,  $Im[\chi^{(3)}]$ , que é proporcional ao coeficiente de absorção não linear,  $\alpha_2$ . Uma estratégia para obter a expressão do coeficiente de absorção não linear em função da susceptibilidade não linear, é expressando a função dielétrica do meio,  $\epsilon$ , como uma expansão em série de potências do campo elétrico, da forma:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_0 \{1 + \chi^{(1)}(\omega) + 3\chi^{(3)}(\omega)|E(\omega)|^2\}. \quad (42)$$

Também é possível expressar a função dielétrica de um material em termos do coeficiente de absorção  $\alpha$ , da frequência do campo  $\omega$  e da velocidade da luz  $c$ , através da seguinte equação (OCAS, 2017):

$$n(\omega) = \left(n + i \frac{\alpha c}{2\omega}\right)^2. \quad (43)$$

Agora, igualando as partes imaginárias das equações (42) e (43), considerando a refração linear ( $n = n_0$ ) e a intensidade do feixe óptico proporcional à amplitude do campo, obtém-se:

$$\alpha = \frac{\omega}{n_0 c} Im(\chi^{(1)}) + \frac{3\omega}{2n_0^2 c^2 \epsilon_0} Im(\chi^{(3)}) I, \quad (44)$$

onde  $\alpha$  é o coeficiente de absorção total, composto pelo primeiro termo referente ao coeficiente de absorção linear,  $\alpha_0$ , e o segundo termo é referente ao coeficiente de absorção não linear  $\alpha_2$ , atrelado à parte imaginária da susceptibilidade de terceira ordem  $\chi^{(3)}$ , multiplicado pela intensidade do feixe,  $I$  (OCAS, 2017).

Cabe mencionar que a 2PA, mediado por um estado virtual, é um fenômeno diferente da absorção de dois fótons sequenciais, sendo o primeiro do estado fundamental para um estado

excitado, seguido pela absorção de um fóton do estado excitado para um estado de maior energia. Neste último, o estado intermediário (que foi atingido pela absorção de um fóton de frequência  $\omega$ ) é um estado excitado real. Logo, a absorção de estado excitado (que pode dar origem a absorção saturada reversa) acontece quando um segundo fóton, também de frequência  $\omega$ , chega em um intervalo de tempo curto o suficiente para que assim ocorra uma nova absorção de um fóton para um estado de maior energia. O tempo curto refere-se a um tempo menor que o tempo de relaxação do primeiro estado excitado.

### 2.3.3.2 Absorção saturada

Alguns materiais, conhecidos como absorvedores saturáveis, apresentam um comportamento que consiste em uma diminuição da absorção da luz à medida que a intensidade do feixe cresce. Isto é, absorvedores saturáveis passam a transmitir uma maior fração da intensidade incidente a partir do valor da intensidade de saturação. Por ser um fenômeno óptico que depende da intensidade da luz incidente, a absorção saturada também é considerada um processo não linear.

O processo de absorção saturada pode ser entendido em um material, quando o número de elétrons excitados pelo campo eletromagnético que são transferidos do nível fundamental de energia para um nível mais elevado de energia, pela absorção de um fóton, é grande em relação ao número total de elétrons susceptíveis se serem excitados. Dessa forma o nível de energia mais elevado apresenta uma saturação de população, não absorvendo novos fótons incidentes. Logo, o aumento da intensidade da luz incidente não resulta em um aumento proporcional de número de fótons absorvidos pelo material, resultando assim em uma maior transmitância de luz,  $T = E_t/E_i$ .

Nos absorvedores saturáveis, parâmetros como a faixa de comprimento de onda  $\lambda$  de absorção, tempo de recuperação  $\tau$ , intensidade de fluência de saturação e intensidade de pulso, onde ocorre a saturação,  $I_{SA}$ , são bastante relevantes para a designação de sua aplicação. A relação entre o coeficiente de absorção, no regime saturado, e a intensidade de saturação podem ser descritos através da seguinte equação (BOYD, 2007):

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_S}, \quad (45)$$

onde  $\alpha$  é o coeficiente de absorção saturada,  $\alpha_0$  é o coeficiente de absorção linear e  $I_S$  é a intensidade de saturação.

### 2.3.4 Refração não linear de origem térmica

A refração não linear consiste em um fenômeno óptico no qual o índice de refração muda devido à alta intensidade de um feixe incidente sobre um determinado meio não linear. Na menor ordem não linear, o índice de refração não linear é um fenômeno associado à parte real da susceptibilidade de terceira ordem  $\chi^{(3)}$ . Para obtermos essa relação, podemos descrever o fenômeno de refração através da equação de polarização induzida,  $P$ , em função dos termos referentes ao campo elétrico,  $E$ . Assim, de uma forma análoga a dedução das equações para o coeficiente de absorção não linear, também é possível encontrar o índice de refração não linear a partir das equações (42) e (43). Por simplicidade, desta vez, consideraremos que a absorção não linear é desprezível e analisaremos apenas a parte real da susceptibilidade de terceira ordem,  $\chi^{(3)}$ , tendo:

$$n^2 = 1 + \text{Re}(\chi^{(1)}) + \frac{3}{4} \text{Re}(\chi^{(3)}) |\mathbf{E}(\omega)|^2. \quad (46)$$

Considerando que, para uma onda plana e monocromática, a intensidade local do seu campo está relacionada à amplitude do campo elétrico através da equação:  $I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_0 c |\mathbf{E}(\omega)|^2$  (AGRAWAL, 2001), e que o índice de refração linear pode ser expressado como:  $n_0^2 = 1 + \text{Re}(\chi^{(1)})$ , pode-se reescrever a equação (45) da seguinte forma:

$$n^2 = n_0^2 \left[ 1 + \frac{3}{4n_0^2} \text{Re}(\chi^{(3)}) \left( \frac{2I}{n_0 \varepsilon_0 c} \right) \right]. \quad (47)$$

Fazendo a radiciação dos termos e em seguida realizando uma expansão binomial fracionada, considerando que o segundo termo dentro do colchete da equação (47) é muito menor que 1, o índice de refração total  $n$ , torna-se:

$$n \approx n_0 + \frac{3}{4n_0^2 \varepsilon_0 c} \text{Re}(\chi^{(3)}) I, \quad (48)$$

onde o índice de refração não linear:  $n_2 = \frac{3}{4n_0^2 \varepsilon_0 c} \text{Re}(\chi^{(3)})$ . Dessa maneira, o índice de refração total de um material do tipo Kerr, estimulado por um feixe de alta intensidade, pode ser representado, considerando a contribuição da não linearidade de terceira ordem, por:

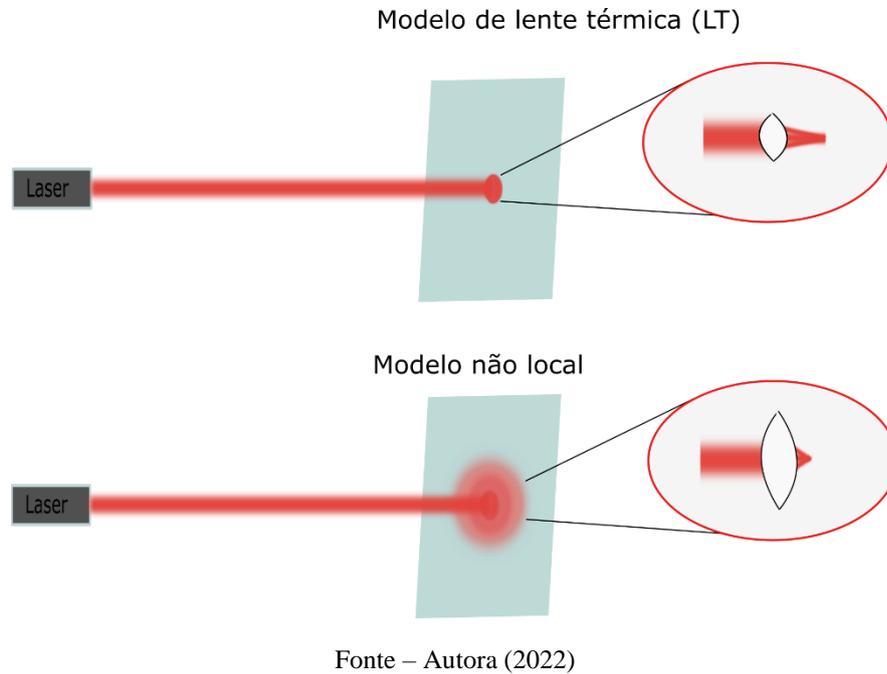
$$n \approx n_0 + n_2 I. \quad (49)$$

Diversos processos físicos podem ser responsáveis pelo efeito de variação do índice de refração descrito na equação (49), cada um apresentando origens e tempos de resposta

diferentes. Por exemplo, o índice de refração não linear causado por efeitos eletrônicos (transição de elétrons entre níveis de energia interbanda ou intrabanda) apresenta tempos de resposta ultracurtos, da ordem de  $10^{-16}$  s (BOYD, 2007). Isto é, uma resposta instantânea ao ser excitada por pulsos intensos de laser. Outros tipos de não linearidades, como as de origem nuclear, eletrostrição e a térmica apresentam tempo de resposta mais lento, passando desde picossegundos até milissegundos (BOYD, 1999).

Concentraremos nossa atenção no efeito de refração não linear de origem térmico, já que corresponde ao tipo de fenômeno óptico não linear que foi explorado nos experimentos discutidos nesta dissertação. O processo que ocorre para o efeito térmico é proveniente do aquecimento (devido a absorção) da região do material iluminada pelo feixe laser incidente. Esse aquecimento é comum em sistemas que utilizam fontes de luz laser contínuos (CW) de alta potência, ou em sistemas laser pulsados que apresenta uma alta taxa de repetição, ou tempos longos de duração de pulsos (comumente em nanossegundos). Nesses casos, a excitação contínua ou repetitiva do material não permite o restabelecimento das suas condições iniciais (temperatura, densidade, organização, etc) e efeitos cumulativos são observados. Para que isso aconteça, podemos considerar que o tempo entre pulsos consecutivos (inverso da taxa de repetição do laser) é menor que o tempo característico,  $t_c = w^2/4D$ , onde  $w$  é o raio do feixe e  $D$  é a difusividade térmica do material (em  $\text{cm}^2/\text{s}$ ) (GNOLI et al, 2005). Nesta condição, se atinge um estado estacionário para a taxa de geração de calor, na região incidida pelo feixe, que se torna igual à taxa de difusão de calor nas regiões próximas do meio. Assim, um gradiente temporário de índice de refração,  $\Delta n_T$ , é produzido no material, resultando em um efeito semelhante ao de uma lente. Esse efeito é chamado de “lente térmica” (GORDON, 1965). Devido a possibilidade do gradiente de temperatura ser expandido além da região atingida diretamente pelo feixe de luz, como representado na figura 8, existem adaptações para o modelo de lente térmica (LT) que exploram uma região de modulação de índice de refração que vai além da região local de excitação. Esse modelo adaptado é conhecido como modelo de não linearidade não local (SUTHERLAND et al, 2003).

Figura 9 – Representação do princípio de ação do modelo de não linearidade não local, devido ao efeito de lente térmica induzida.



Baseado nas não linearidades de origem térmica, a variação do índice de refração total,  $\Delta n_T$ , que é o análogo a contribuição do índice de refração não linear multiplicado pela intensidade ( $n_2 I$ ) discutido anteriormente (equação 49) pode ser escrito, na forma mais simples, como:

$$\Delta n_T = \frac{dn}{dT} \Delta T, \quad (50)$$

onde  $\Delta T$  é a variação de temperatura e  $dn/dT$  é o coeficiente termo-óptico do índice de refração, cujo sinal define se a LT induzida é convergente ou divergente (positiva ou negativa). O coeficiente termo-óptico apresenta dois fatores importantes para que ocorra a variação de índice de refração induzida termicamente, e é dado por:

$$\frac{dn}{dT} = \left( \frac{\partial n}{\partial T} \right)_V + \left( \frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \frac{\partial \rho}{\partial T}, \quad (51)$$

onde o primeiro termo corresponde ao efeito térmico em volume constante, como a mudança de entropia, enquanto o segundo termo corresponde ao efeito da expansão térmica, como a mudança na densidade do meio (AUSTIN, 1977).

Para muitos dos materiais em estado líquidos ou coloidal, a mudança na densidade do material devido a migração do soluto ou solvente, em resposta ao aquecimento óptico causado

pelo feixe de luz intenso, é a causa da variação do índice de refração (PILLA et al 2009). Já para materiais sólidos, a dilatação térmica é o mecanismo que traz alteração na densidade do material iluminado pelo feixe, bem como a tensão formada pelo aquecimento da região que pode alterar a polarizabilidade dos átomos no interior do sólido, resultando em uma resposta mecânica ao estímulo de aquecimento óptico (BAESSO, 1994).

#### 2.3.4.1 Efeito de autofocalização e autodesfocalização

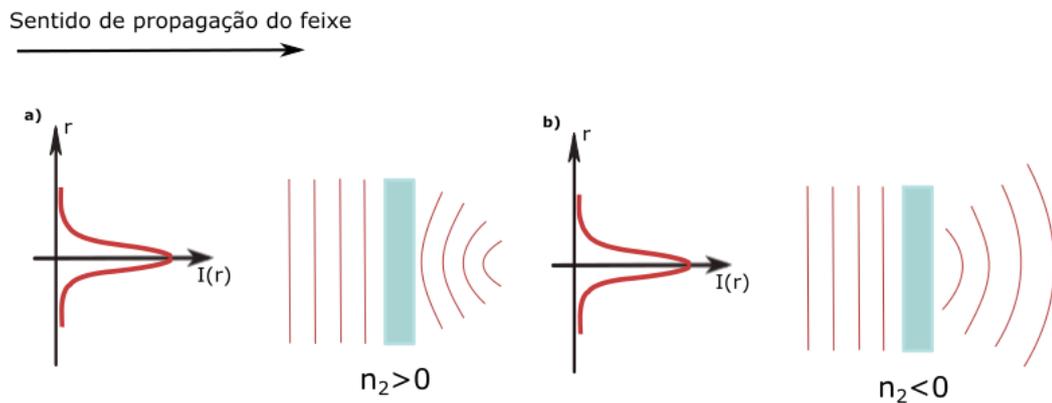
Para finalizar esta breve discussão de conceitos sobre fenômenos que influenciam a propagação de feixes em meios não lineares, apresentamos os efeitos de autofocalização e/ou autodesfocalização. Esses fenômenos não lineares recebem esses nomes devido ao fato de induzirem um comportamento análogo ao de focalização ou desfocalização quando um feixe passa por uma lente convergente ou divergente, respectivamente. Entretanto, como os fenômenos são induzidos pela ação do próprio campo sobre o meio não linear, sem a necessidade da presença de uma lente ou objeto externo, eles ganham o prefixo “auto”, direcionado aos efeitos de autoação (BOYD, 2007).

Os efeitos de autofocalização ou autodesfocalização são o resultado da interação entre um feixe de luz intenso e com distribuição de intensidade não uniforme com um meio material que apresenta índice de refração não linear (seja de origem térmico, eletrônico, etc). Para exemplificar os fenômenos, consideraremos um feixe laser de perfil transversal de intensidade do tipo Gaussiano, como representado na Figura 10. No feixe Gaussiano a intensidade é maior no seu eixo central, diminuindo radialmente. Consideramos inicialmente que o feixe Gaussiano propaga-se com frente de onda plana, por um meio linear (como o ar), isto é, com índice de refração não linear nulo. Ao incidir sobre um meio não linear, com  $n_2$  (ou  $\Delta n_T$ ) significativo, a frente de onda do feixe gaussiano sofre uma alteração induzida pela modulação do índice de refração não linear no meio. Tal modulação segue o perfil Gaussiano de intensidade do feixe. Isto é, nas bordas do feixe, devido à baixa intensidade o índice de refração total é igual ao índice de refração linear,  $n_0$ . Por outro lado, o índice de refração total aumenta ou diminui (dependendo do sinal do índice de refração não linear) na direção do centro do feixe, atingindo seu valor máximo ou mínimo no centro.

Para um meio com índice de refração não linear positivo,  $n_2 > 0$  (ou  $\Delta n_T > 0$ ), a frente de onda de um feixe gaussiano, após atravessar o meio não linear, sofre um atraso crescente na sua propagação nas regiões de maiores intensidades. Essa deformação ao longo da propagação da frente de onda é análoga a um efeito induzido em um feixe transmitido em uma lente

convergente [Figura 10(a)]. O efeito de autofocalização ocorre devido ao índice de refração total ( $n = n_0 + n_2 I$ ) ou ( $n = n_0 + \Delta n_T$ ) ser maior no centro do feixe do que nas bordas, por conta do perfil de intensidade do feixe. Contrariamente, para um meio com índice de refração não linear negativo,  $n_2 < 0$  (ou  $\Delta n_T < 0$ ), o resultado é um feixe cuja frente de onda sofre um atraso nas regiões de menor intensidade do feixe (as bordas). Portanto, a frente de onda sofre uma deformação similar a um feixe que interceptou uma lente divergente [Figura 10(b)], devido ao índice de refração total ( $n = n_0 + n_2 I < n_0$ ) ser menor no centro do feixe do que nas bordas, caracterizando o efeito de autodesfocalização.

Figura 10 – Modulação da frente de onda de um feixe gaussiano devido ao efeito de (a) autofocalização e (b) autodesfocalização.



Fonte – Autora (2022)

Ambos os efeitos, de autofocalização ou autodesfocalização, podem influenciar a propagação de um feixe intenso em um meio não linear, sendo assim responsáveis por modificar características do feixe, tais como a intensidade e o diâmetro do feixe. Nesta dissertação será explorada, com maiores detalhes, a influência do efeito de autodesfocalização, induzido a partir de efeitos térmicos, na propagação de padrões de *speckles*.

### 3 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

#### 3.1 INTRODUÇÃO

Padrões de *speckles*, como os estudados nesta dissertação, podem ser gerados por transmissão de feixes de luz coerentes através de difusores de luz, que apresentam um grau bem definido de rugosidade. Para o nosso interesse, em particular, foram escolhidos dois tipos de feixes coerentes para gerar os padrões de *speckles*: (i) um feixe com perfil transversal de intensidade Gaussiano e (ii) um feixe com perfil transversal de intensidade retangular, conhecido (em inglês) com *top-hat*. Cada um desses feixes foi submetido ao mesmo sistema óptico, constituído de lentes e um difusor de luz, para a geração de padrões de *speckles* e, posteriormente, foram estudadas as diferenças nas suas propagações em meios não lineares do tipo autodesfocalizadores.

Inicialmente, neste capítulo são discutidos os parâmetros e características importantes que definem um feixe de luz como o Gaussiano e/ou *top-hat*, a partir da literatura. Sequencialmente, são discutidos a metodologia e resultados da caracterização dos feixes usados nos experimentos desta dissertação, no espaço livre (regime de propagação linear), assim como com a adição dos difusores de luz na montagem experimental. Neste capítulo também são abordadas as propriedades dos padrões de *speckles* que foram estudados para a propagação em meios não lineares. Por fim, uma descrição das propriedades ópticas lineares e não lineares do corante LDS722 diluído em etanol foi realizada, fazendo-se uso das técnicas de Espectroscopia de absorção e luminescência e Varredura Z de fenda aberta.

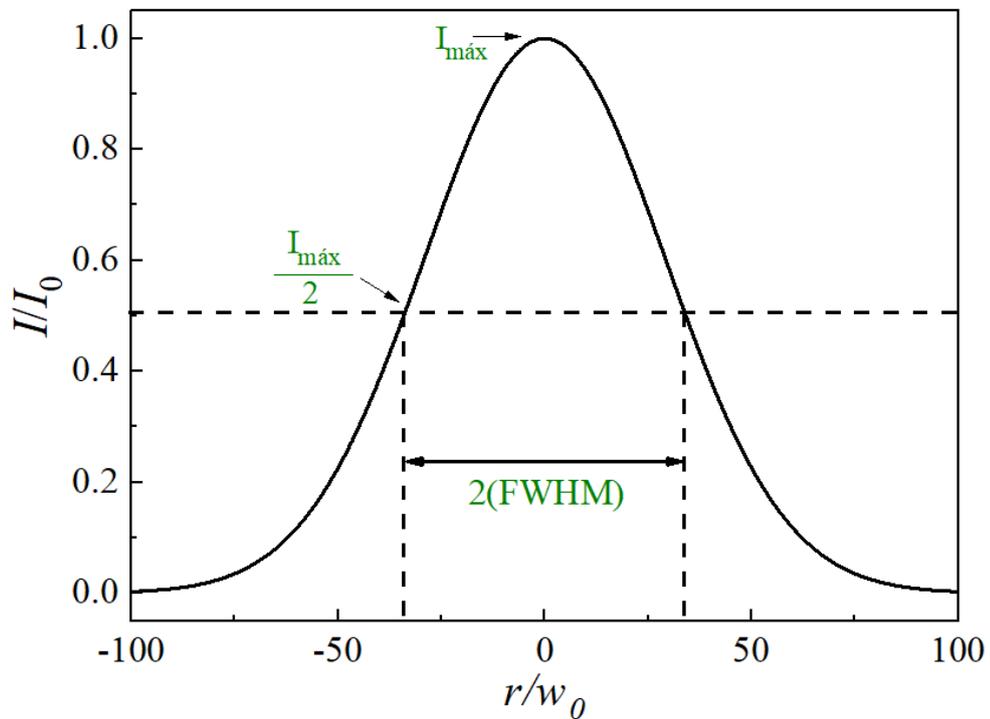
#### 3.2 FEIXE GAUSSIANO

Um feixe laser com modo transversal fundamental  $TEM_{00}$  também é chamado de feixe Gaussiano. Esse modo do feixe é bastante usado por apresentar uma pequena divergência angular e uma fase de campo elétrico sem descontinuidades, este último fator garante a coerência espacial do feixe (HECHT, 2017).

O perfil transversal de intensidade de um feixe Gaussiano é bem descrito por uma função distribuição do tipo normal (ou gaussiana). Na Figura 11 é possível observar que o pico dessa função, localizado na região central ( $r = 0$ ), indica onde o feixe apresenta maior intensidade,

$I_{m\acute{a}x}$ . À medida que se afasta da região central, em direção às extremidades do feixe, a intensidade vai sendo atenuada, isto é  $I(r \rightarrow \infty) = 0$ . Outros fatores em destaque na figura 11 também apresentam relevância para a caracterização de um feixe Gaussiano, como o ponto de medida da largura do feixe à meia altura (FWHM, do inglês *full width at half maximum*), correspondente à posição transversal na qual a intensidade máxima do feixe é dividida pela metade,  $I_{m\acute{a}x}/2$ .

Figura 11 – Intensidade óptica normalizada ( $I/I_0$ ) em função da distância radial normalizada ( $r/w_0$ ) ao longo do eixe óptico do feixe.



Fonte: Autora (2022)

Um feixe Gaussiano que se propaga ao longo do eixo  $z$ , no espaço livre (com índice de refração linear:  $n_0 = 1$ ), tem o campo elétrico  $E$  expresso pela equação 52. Essa expressão matemática é solução particular da equação de Helmholtz, que trata da parte espacial da função de onda, na aproximação paraxial, válida quando a divergência do feixe é pequena (ESTRADA, 2008).

$$E(z, r, t) = A_0(t) \frac{w_0}{w(z)} \cdot \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) e^{-i\phi(z,t)}, \quad (52)$$

onde  $A_0(t)$  é a amplitude do campo elétrico como função do tempo, em  $(z, r) = (0,0)$ , onde  $r$  é a coordenada transversal;  $z$  a coordenada axial;  $w_0$  a cintura do feixe (raio mínimo do feixe Gaussiano);  $w(z)$  o raio do feixe para qualquer posição ao longo do eixo  $z$ ;  $k$  o módulo do vetor

de onda e  $R(z)$  o raio de curvatura da frente de onda  $e^{-i\phi(z,t)}$ . O termo representa as variações da fase, radialmente uniformes. Da expressão 52, os parâmetros: raio de curvatura da frente de onda,  $R(z)$ , dado pela parte imaginária, e a largura do feixe  $w(z)$ , dada pela parte real da equação, devem ser destacados e melhor discutidos, pois apresentam informações que definem as características essenciais de um feixe Gaussiano.

O raio do feixe Gaussiano define o ponto em que a intensidade do feixe corresponde a um fator de  $1/e^2$  do ponto de maior intensidade do feixe, sendo descrita da seguinte forma:

$$w(z) = w_0 \sqrt{\left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)}, \quad (53)$$

onde  $w_0$  é a cintura do feixe (região em que a intensidade do feixe é máxima por ser o valor mínimo do raio),  $z_0 = n_0 \pi w_0^2 / (\lambda M^2)$  é o comprimento de Rayleigh, que indica o ponto em que a cintura do feixe  $w_0$  aumenta em um fator de  $\sqrt{2}$ . É importante destacar que para feixes Gaussianos o fator de qualidade do feixe é dado por:  $M^2 = 1$ , e que existe uma relação entre o raio do feixe e a largura do feixe a meia altura, dada por:  $w(z) = \text{FWHM}(z) / \sqrt{2 \ln(2)}$ . Tais parâmetros que caracterizam um feixe Gaussiano são identificados na Figura 12.

O raio de curvatura da frente de onda de um feixe Gaussiano,  $R(z)$ , varia ao longo da sua propagação e é expresso pela equação:

$$R(z) = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2}\right), \quad (54)$$

Baseado nesta expressão, o valor mínimo de  $R(z)$  ocorre em  $z = \pm z_0$ , pontos onde a curvatura da frente de onda é máxima. Já em  $z = 0$  e em  $z \rightarrow \infty$  o raio de curvatura  $R(z)$  tende ao infinito, pois as frentes de ondas aproximam-se localmente de uma onda plana, (ver Figura 12).

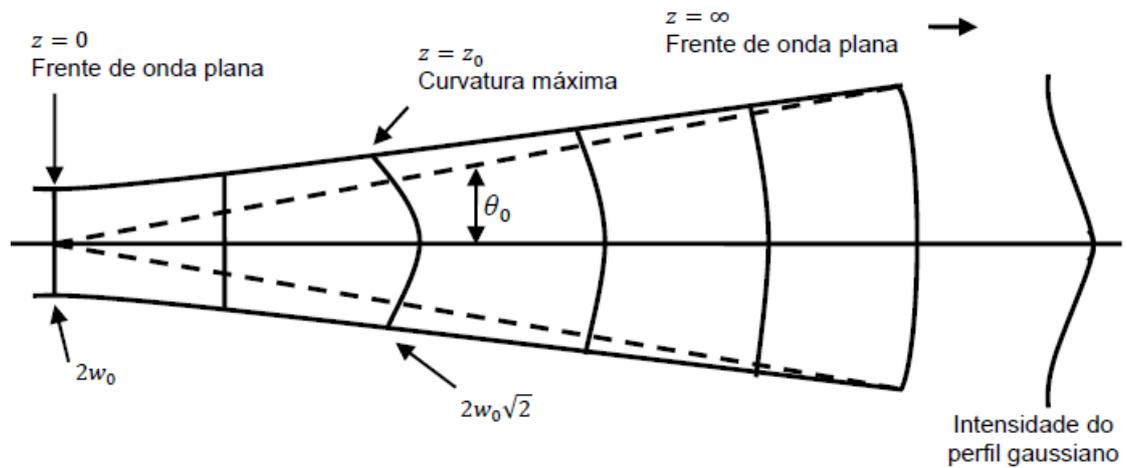
A partir das definições de cintura do feixe  $w_0$  e raio de curvatura  $R(z)$ , é possível calcular a intensidade do feixe gaussiano:

$$I(r, z) = I_0 \left(\frac{w_0^2}{w^2(z)}\right) \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right), \quad (55)$$

e o ângulo de divergência:

$$\theta_0 = \tan^{-1} \left[ \frac{\lambda}{n\pi w_0} \right], \quad (56)$$

Figura 12 – Propagação de um feixe Gaussiano, com divergência espacial que está assintoticamente contida em um cone com ângulo de divergência  $\theta_0$ .



Fonte: Estrada (2008)

### 3.2.1 Caracterização experimental

Para o desenvolvimento desta dissertação, a fonte de luz utilizada nos experimentos foi um laser Verdi (Coherent, Inc.), em regime contínuo (CW), com perfil  $TEM_{00}$ ,  $M^2 < 1.1$  e comprimento de onda  $\lambda = 532$  nm. O feixe de perfil Gaussiano foi caracterizado em espaço livre (regime linear) após passar por um sistema de controle de potência, constituído por uma lâmina de meia onda e um polarizador, seguido por uma lente biconvexa de distância focal  $f = 10$  cm. O método empregado consistiu no posicionamento de uma câmera CCD (do inglês *charge-coupled device*), realizando capturas de imagens do perfil transversal do feixe em várias posições ao longo do eixo de propagação (eixo  $z$ ). Isto é, foram capturadas cerca de 50 imagens do perfil transversal de intensidade do feixe antes, depois e no plano de focalização da lente biconvexa.

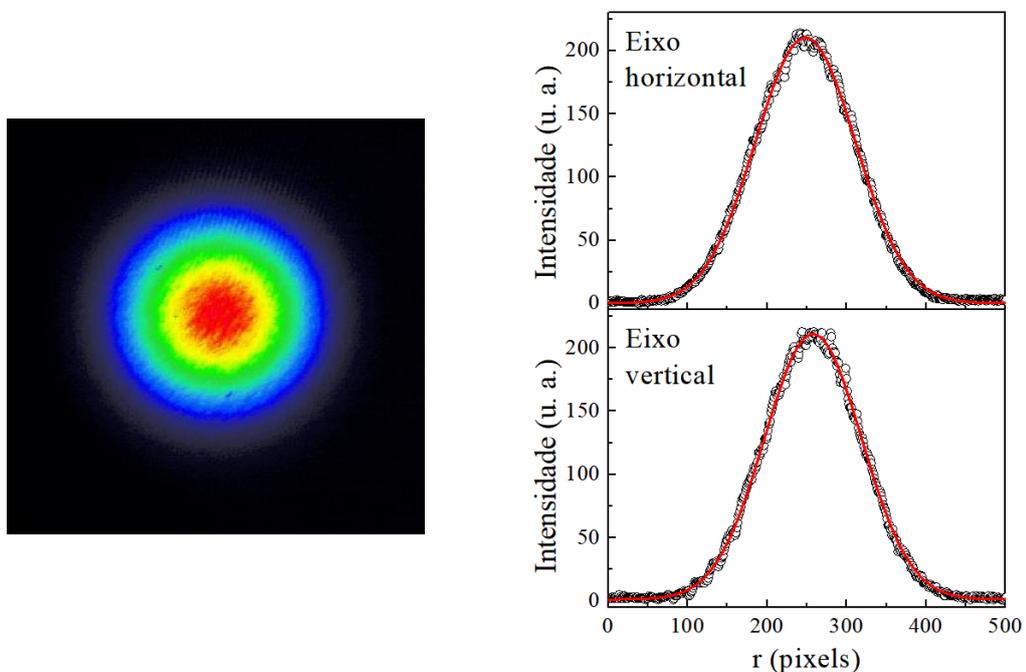
As imagens registradas ao longo do eixo de propagação do feixe foram processadas e analisadas por um programa escrito em Matlab. O algoritmo do programa realiza as seguintes etapas: primeiro, para cada imagem foi calculada a posição do centroide  $(x_0, y_0)$ , através das expressões:

$$x_0 = \frac{\iint dx dy I(x,y)x}{\iint dx dy I(x,y)}, \quad (57)$$

$$y_0 = \frac{\iint dx dy I(x,y)y}{\iint dx dy I(x,y)}, \quad (58)$$

onde  $I(x, y)$  representa o perfil transversal de intensidade. Em seguida, para simplificar nossa análise, foram extraídos dois perfis (unidimensionais) transversais de intensidade referentes aos eixos  $x$  (horizontal) e  $y$  (vertical), como mostrado na Figura 13. Os perfis de intensidade foram ajustados usando a equação (55), para se obter a largura do feixe,  $w(z)$ . Os círculos e quadrados da Figura 14 representam os valores de  $w(z)$  medidos para cada posição da CCD, ao longo do eixo de propagação do feixe, referentes aos eixos  $x$  e  $y$ , respectivamente.

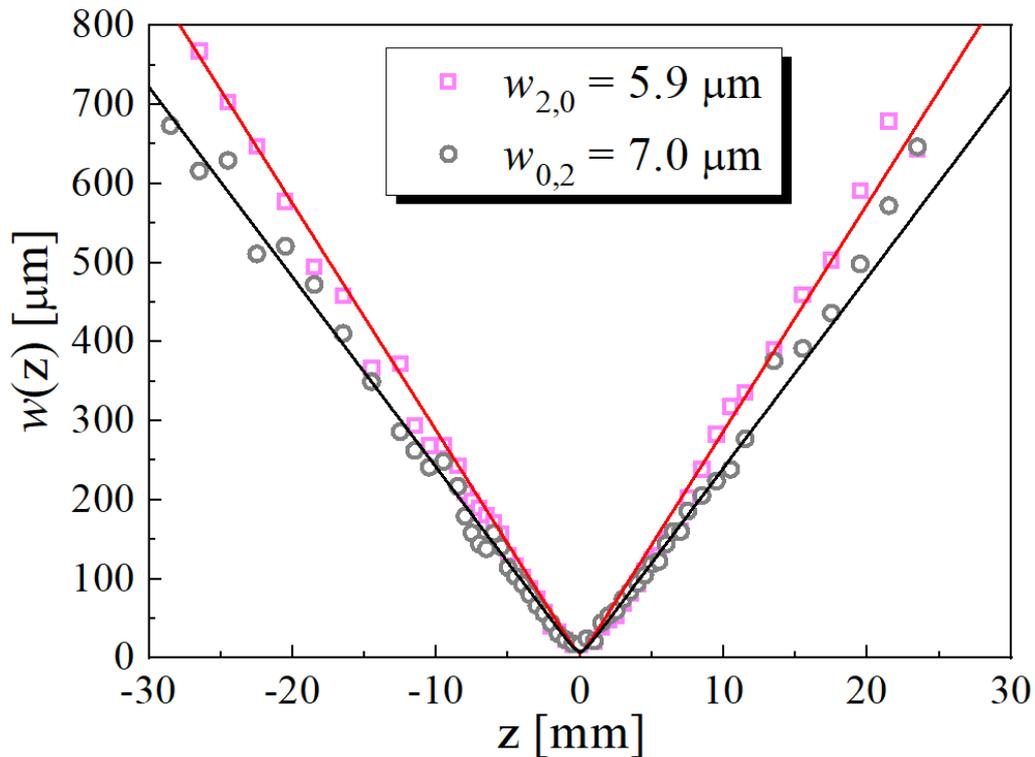
Figura 13 – Imagem coletada pela CCD de um feixe Gaussiano e seus perfis transversais de intensidade ao longo dos eixos  $x$  (horizontal) e  $y$  (vertical).



Fonte: Autora (2022)

Finalmente, através da equação (53) foi possível ajustar os valores de  $w(z)$  medidos experimentalmente, e com isso foram calculados a cintura do feixe e o comprimento de Rayleigh, nos respectivos eixos  $x$  e  $y$ . Como mostrado na Figura 14,  $w_{0,x} = 5,9 \mu\text{m}$ ;  $w_{0,y} = 7,0 \mu\text{m}$ . O fator de qualidade,  $M^2$ , obtido no ajuste foi igual a 1, indicando que se trata de um feixe Gaussiano. Dessa forma, pôde-se definir os parâmetros de Rayleigh, dados por:  $z_{0,x} = 0,20 \text{ mm}$ ;  $z_{0,y} = 0,28 \text{ mm}$ . Devido à diferença entre os parâmetros obtidos para os eixos  $x$  e  $y$ , os resultados indicam que o feixe apresenta uma leve elipticidade.

Figura 14 – Propagação da largura do feixe ao longo dos eixos  $x$  e  $y$ .



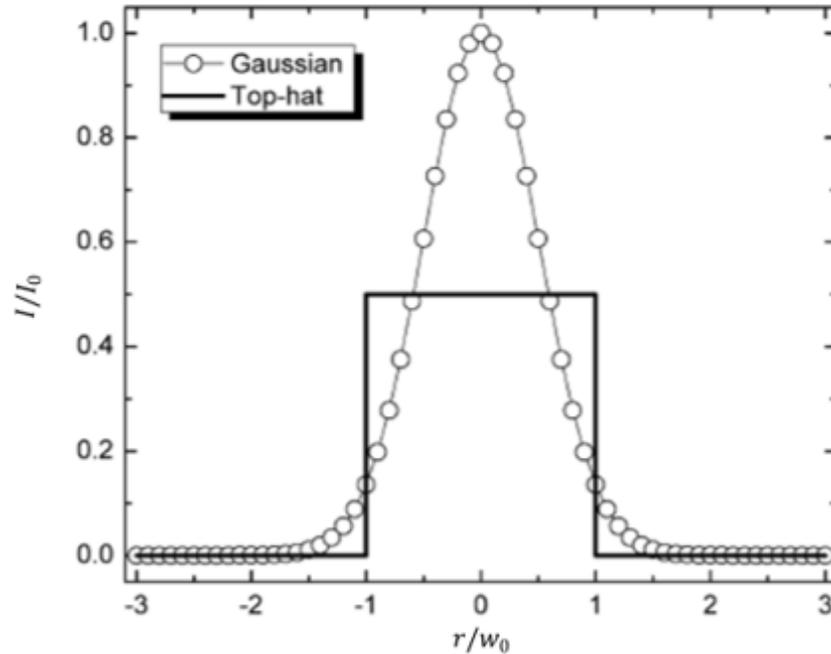
Fonte: Autora (2022)

### 3.3 FEIXE *TOP-HAT*

Embora a maior parte de lasers comerciais emite feixes de luz do tipo Gaussiano, os feixes do tipo *top-hat* podem ser facilmente obtidos a partir deles. Para isto é necessário selecionar apenas uma pequena porção da parte central de um feixe Gaussiano expandido, e bloquear os extremos do feixe (LI et al., 1999), como realizado nesta pesquisa.

O feixe *top-hat* é denominado dessa forma por apresentar um perfil de distribuição de intensidade em um formato de cartola, representado na Figura 15. A intensidade desse feixe é máxima e uniforme no “topo da cartola” e cai pra zero perto das bordas do feixe. Outra característica desse perfil de feixe é a descontinuidade da intensidade do feixe em campo distante, apresentando mudanças no seu perfil também ao interagir com elementos ópticos, por exemplo, lentes convergentes (NASROLLAHI et al, 2020).

Figura 15 – Comparação entre os feixes Gaussiano e top-hat. Intensidade óptica normalizada ( $I/I_0$ ) em função da distância radial normalizada ( $x/w_0$ ) ao longo do eixo óptico do feixe.



Fonte: Adaptado de Astrath (2008)

A propagação em espaço livre do feixe *top-hat* ideal é bastante complexa para ser descrita analiticamente, porém algumas aproximações podem ser úteis para descrever a sua evolução adequadamente. A propagação de um feixe Gaussiano achatado (FG, do inglês *flattened-Gaussian*) é comumente usado como uma aproximação bastante satisfatória na descrição da propagação do feixe *top-hat*. Basicamente, a ideia consiste em expressar o feixe no plano  $z = 0$  como uma série de feixes Laguerre-Gauss (cujos perfis de amplitude são separados em  $r$  e  $\theta$  utilizando coordenadas cilíndricas). Desta forma, é possível descrever uma expressão analítica para a propagação do feixe FG, que resulta em (FORBES, 2014):

$$E_{FG}(z, r) = A_0 \frac{w_N(0)}{w_N(z)} \cdot \exp\{i[kz - \Phi_N(z)]\} \times \exp\left(\frac{ikr^2}{2R_N(z)} - \frac{r^2}{w_N^2(z)}\right) \times \sum_{n=0}^N c_n L_n \left[ \frac{2r^2}{w_N^2(z)} \right] \exp[-2in\Phi_N(z)], \quad (59)$$

Onde  $L_n$  é o polinômios de Laguerre,  $w_N(0) = \frac{w_{FG}}{\sqrt{N+1}}$  e  $c_n = (-1)^n \sum_{m=n}^N \frac{1}{2^m} \binom{m}{n}$ , com  $N$  sendo o parâmetro de ordem do feixe FG, que determina o quanto a distribuição de intensidade se assemelham a um feixe *top-hat* perfeito. De tal forma que no limite de valores muito grandes de  $N$ , a equação (59) é ideal para descrever um feixe *top-hat*. Assim como no feixe Gaussiano (representando na equação 59 para  $N = 0$ ), parâmetros como raio de curvatura do feixe,  $R_N(z)$ ,

o raio do feixe,  $w_N(z)$ , o ângulo de divergência,  $\Phi_N(z)$ , a intensidade do feixe,  $I_{FG}(r)$ , e fator de qualidade,  $M_{FG}^2$ , são destacados e apresentam as seguintes equações, respectivamente:

$$R_N(z) = z \left\{ 1 + \left( \frac{\pi w_N^2(0)}{\lambda z} \right)^2 \right\}, \quad (60)$$

$$w_N(z) = w_N(0) \sqrt{1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_N^2(0)} \right)^2}, \quad (61)$$

$$\Phi_N(z) = \tan^{-1} \left[ \frac{\lambda z}{\pi w_N^2(0)} \right], \quad (62)$$

$$I_{FG}(r) = \left( \frac{2(N+1)}{\pi w_{FG}^2} \right) \sum_{m,n=0}^N \left[ \frac{m!n!2^{m+n}}{(m+n)!} \right], \quad (63)$$

$$M_{FG}^2 = \left( \frac{N}{\pi} \right)^{1/4}, \quad (64)$$

O feixe de perfil *top-hat* muda seu formato ao longo da sua propagação. Isso ocorre pois, quando o parâmetro de ordem é muito alto, ondulações ocorrem rapidamente no perfil do feixe, crescendo em magnitude durante a propagação de campo próximo. Uma maneira de atrasar esse problema é realizando o aumento do tamanho do feixe, pois dessa forma teremos feixes maiores, com topo quase plano e bordas mais suaves que irão propagar-se por caminhos mais longos. Para feixes de altas potências elementos refrativos e difrativos podem ser usadas para criar tais feixes (FORBES, 2014).

### 3.3.1 Geração de um feixe *top-hat* e sua caracterização experimental

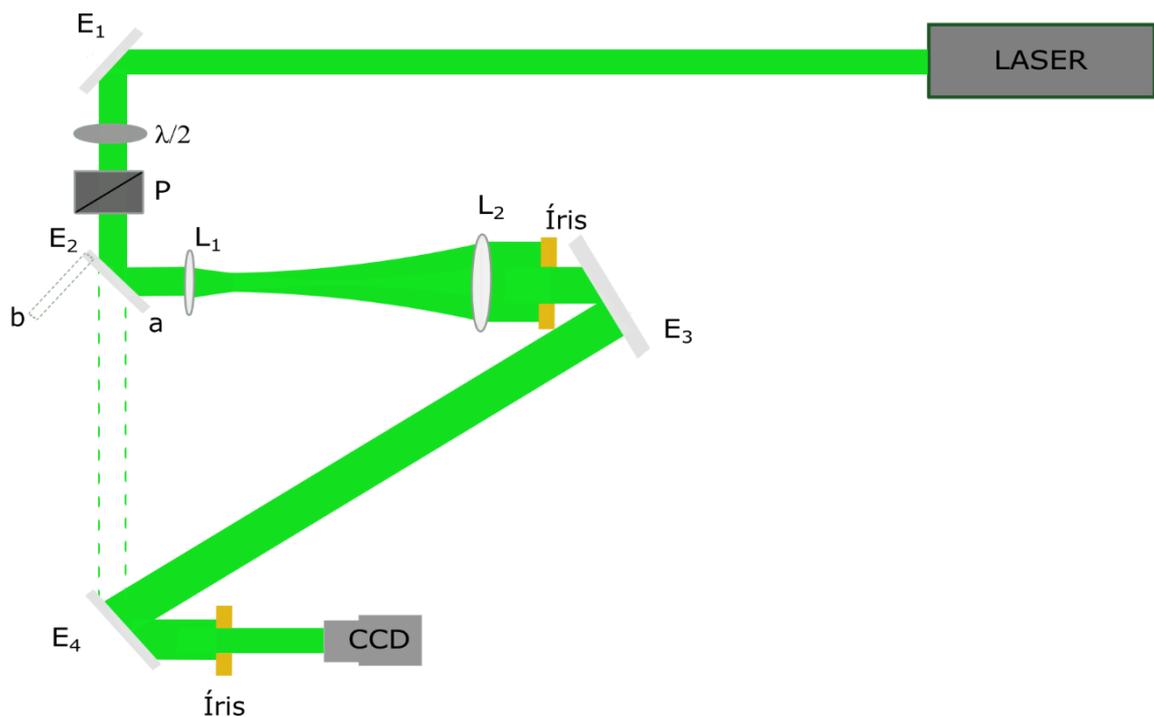
A Figura 16 mostra uma representação do arranjo experimental utilizado nesta dissertação onde o feixe laser linearmente polarizado e de perfil Gaussiano, emitido pelo laser e descrito no ítem 3.2.1, passa através de uma lâmina de meia onda ( $\lambda/2$ ) e um polarizador (P). A lâmina de atraso de fase  $\lambda/2$  é um elemento óptico que resulta na rotação da orientação da polarização linear da luz. O polarizador transmite a componente do campo elétrico unicamente na direção do seu eixo de polarização. Com o conjunto formado pela placa de meia onda e o polarizador é possível fazer o controle da intensidade de luz que será transmitida para o restante do sistema que compõe o experimento. A seguir, o feixe foi direcionado, pelo espelho plano E<sub>2</sub>, para um sistema de magnificação, um telescópio, constituído de duas lentes biconvexas, separadas por uma distância igual a soma das distâncias focais das lentes, e utilizado para aumentar o diâmetro do feixe Gaussiano, em 5 vezes, utilizando uma lente L<sub>1</sub> de distância focal

de 10 cm e  $L_2$  de 50 cm. O fator de magnificação foi escolhido de tal forma que, após o feixe expandido ser cortado por uma íris, a região central do feixe que passa pela íris tenha seu perfil de intensidade aproximadamente uniforme. Assim, a metodologia para gerar feixes do tipo *top-hat*, adotado nesta dissertação, foi realizar cortes na região central de feixes Gaussianos expandidos até apresentar uma distribuição de intensidade uniforme, similar ao descrito na Figura 15.

Como pode ser observado na Figura 16, dois estágios de corte do feixe, usando diferentes íris, foram necessários para obter uma boa aproximação de um feixe *top-hat*, com pouca difração.

Figura 16 – Esquema experimental do sistema óptico utilizado para os experimentos.

Seguimento referente ao feixe de perfil *top-hat*. P: polarizador,  $E_i$ : espelhos ( $i = 1, 3$  e  $4$ ),  $L_i$ : lentes ( $i = 1, 2$ ),  $E_2$ : espelho em montagem giratória.

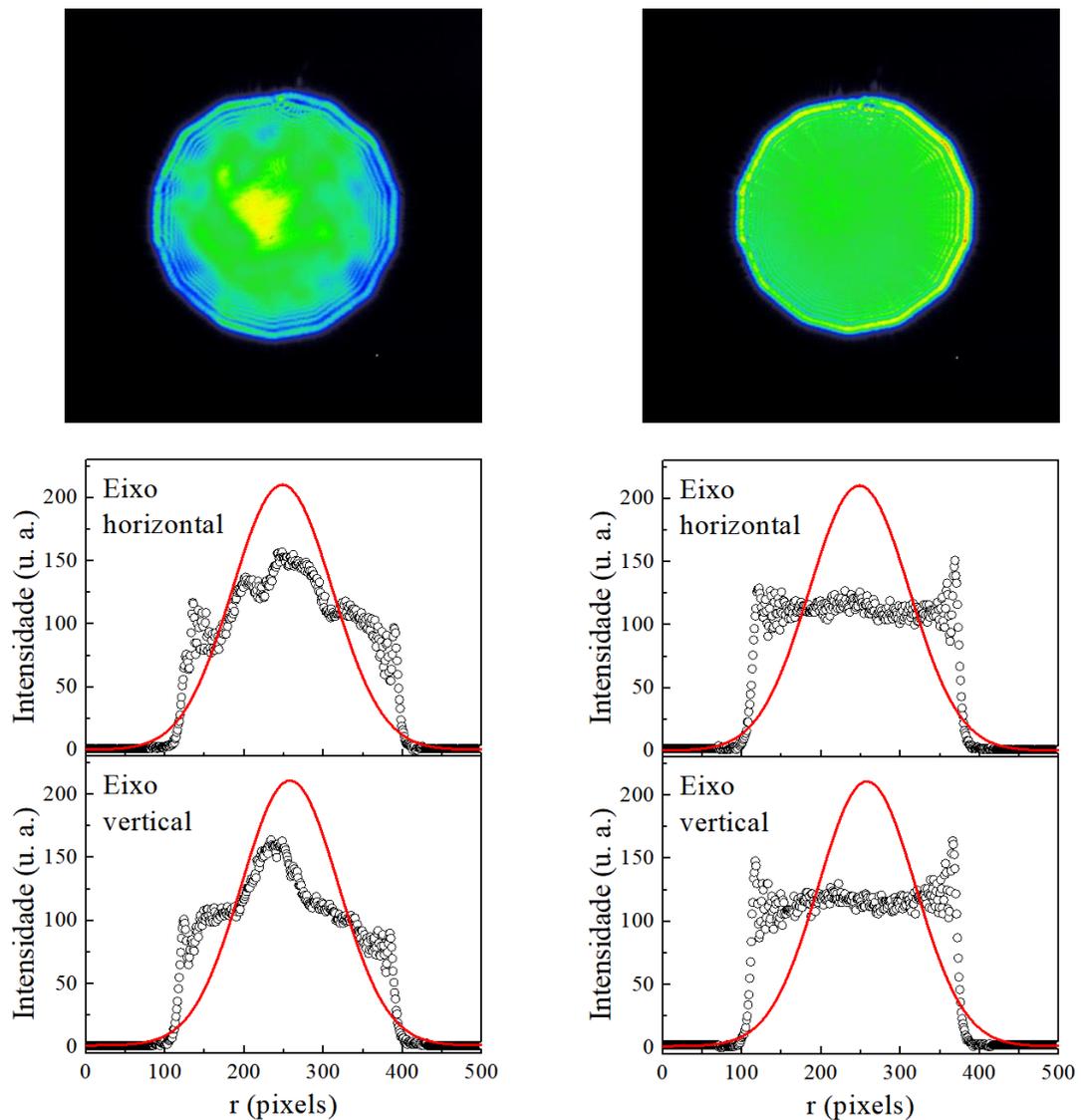


Fonte: autora 2022

A Figura 17 mostra as imagens coletadas pela CCD dos perfis de intensidade dos feixes Gaussianos expandidos após passar pela primeira e segunda íris. Com apenas a segunda íris (sem a primeira íris), o perfil transversal ainda mostra um suave decaimento de intensidade nas bordas do feixe, sendo um perfil associado a um feixe super Gaussiano. Porém, com a presença de ambas as íris, o perfil transmitido apresenta uma distribuição de intensidade uniforme, o perfil *top-hat* deste trabalho. Os perfis transversais de intensidade em uma dimensão (eixo

horizontal e vertical) também são mostrados na Figura 17 para facilitar a visualização da homogeneidade na distribuição de intensidade.

Figura 17 – Imagem coletada pela CCD dos feixes (esquerda) super Gaussiano e (direita) top-hat e seus perfis transversais de intensidade ao longo do eixo x (horizontal) e eixo y (vertical).



Fonte: autora 2022

É importante mencionar que o espelho  $E_2$  na Figura 16 encontra-se acoplado a uma montagem giratória (*flip mount*). Assim, quando o espelho  $E_2$  encontra-se na posição  $a$ , o sistema desvia o feixe para a formação de um feixe super Gaussiano e/ou *top-hat*. Entretanto, quando o espelho  $E_2$  é girado para a posição  $b$ , o feixe Gaussiano que é emitido diretamente

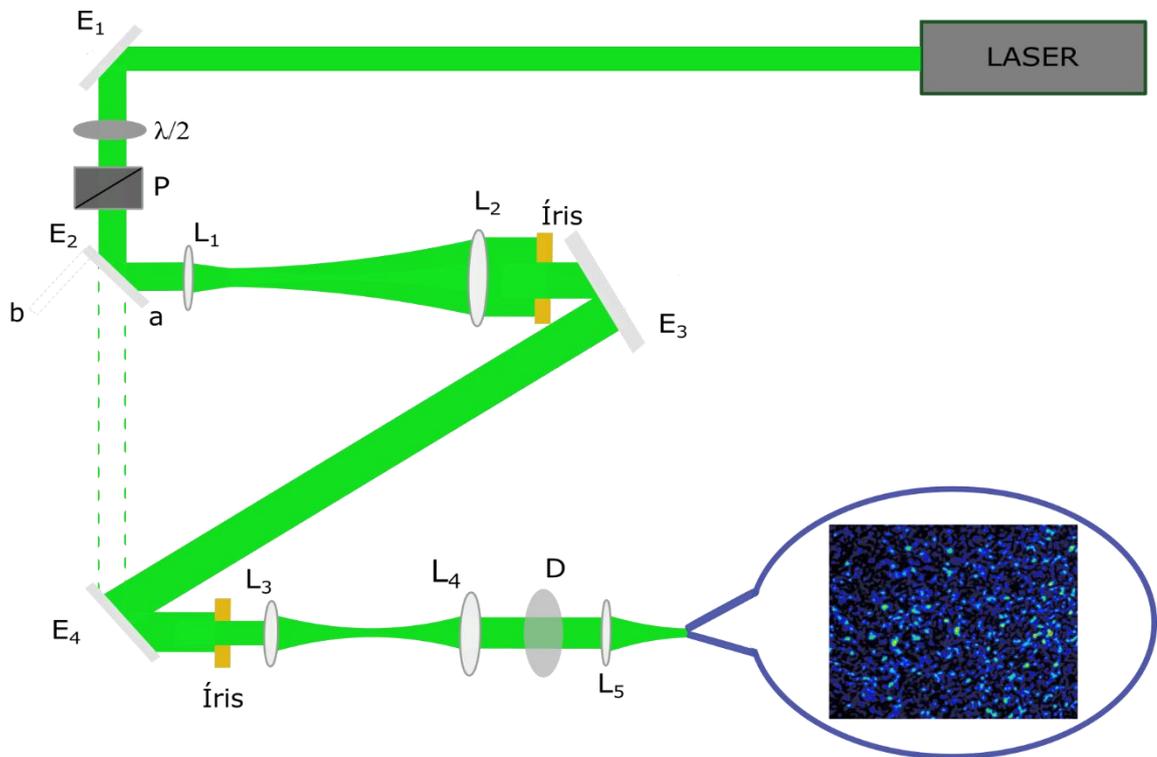
pelo laser atinge a posição da CCD. Logo, uma fácil manipulação do espelho  $E_2$  nos permite estudar as condições de propagação de ambos os feixes.

### 3.4 PADRÕES DE *SPECKLES* E SUAS CARACTERÍSTICAS

Para a formação dos padrões de *speckles* (feixes de luz espacialmente incoerentes), usados nesta dissertação, foi utilizado um difusor (transparente) de luz, fabricado pela *Newport*, com grau de difusão de  $0,5^\circ$ , iluminado pelos feixes de perfil Gaussiano, super Gaussiano e *top-hat*, descritos anteriormente. Para explorar uma área significativa do difusor, foi utilizado um segundo telescópio (lentes  $L_3$  e  $L_4$  com distâncias focais de 5 cm e 10 cm, respectivamente), posicionado após a segunda íris, com uma magnificação de 2, resultando em feixes com diâmetros de  $\sim 1$  cm

Como mostrado na Figura 18, o difusor é colocado após o telescópio, e o padrão de *speckles* gerado é seguidamente focalizado por uma lente biconvexa ( $L_5$ ) de distância focal  $f = 10$  cm. Os meios não lineares, que foram estudados nesta dissertação, foram inseridos em uma cubeta de formato cilíndrico de 20 mm de comprimento, e posicionados no foco da lente  $L_5$ . Portanto, para caracterizar os feixes de luz incoerentes que incidem nos meios não lineares, na posição do foco da lente  $L_5$ , cinquenta imagens dos padrões de *speckles* gerados a partir dos feixes Gaussiano, super Gaussiano e *top-hat* foram capturadas por uma câmera CCD, usando uma óptica de magnificação de imagens que é descrita na seção 4.2. As imagens foram processadas por um programa escrito em *Python*, que as analisa estatisticamente, em termos de intensidade, a função densidade de probabilidade,  $p(I)$  e a autocorrelação espacial  $g^{(2)}(\Delta r)$ , dadas pelas equações (24) e (29), respectivamente.

Figura 18 – Esquema experimental do sistema óptico utilizado para os experimentos. Seguimento referente ao feixe de perfil top-hat. P: polarizador, E: espelhos, L: lentes, E2: espelho em montagem giratória, D: difusor.

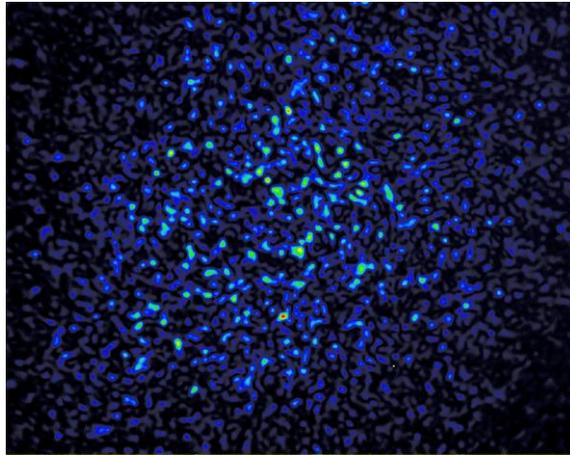


Fonte: autora 2022

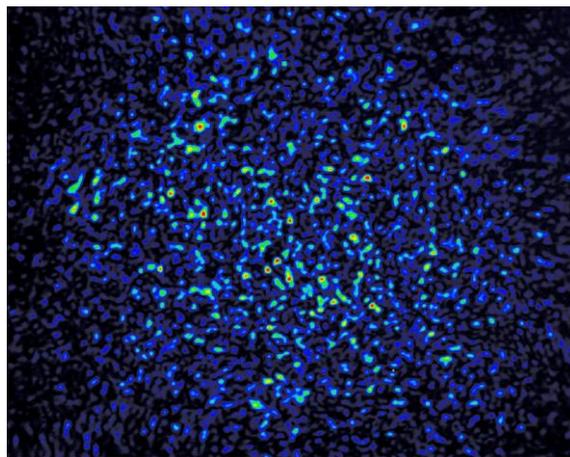
O padrão de *speckles* formado a partir do feixe Gaussiano é representado na figura 19(a). Como pode ser observado, a imagem apresenta vários fragmentos brilhantes (denominados *speckles*) gerados sobre uma envoltória de intensidade Gaussiano. Isto é, apesar dos *speckles* serem distribuídos com um tamanho médio similar ao longo de toda a imagem, a intensidade dos *speckles* é maior na região central que nas bordas. Na mesma Figura 19 também são mostrados os padrões de *speckles* gerados a partir de um feixe super Gaussiano [Figura 19(b)] e *top-hat* [Figura 19(c)]. Nas imagens é notório a formação de *speckles* com tamanhos similares, porém o envoltório utilizado permite uma distribuição mais ou menos, homogênea da intensidade ao longo de toda a área iluminada no sensor da CCD. A distribuição de intensidade mais homogênea é alcançada usando o feixe *top-hat*.

Figura 19 – Padrões de speckles gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade (a) Gaussiano, (b) super Gaussiano e (c) top-hat, atravessando um difusor de luz.

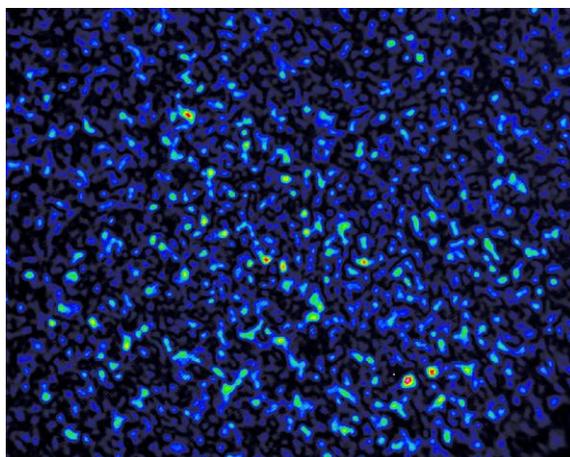
(a)



(b)

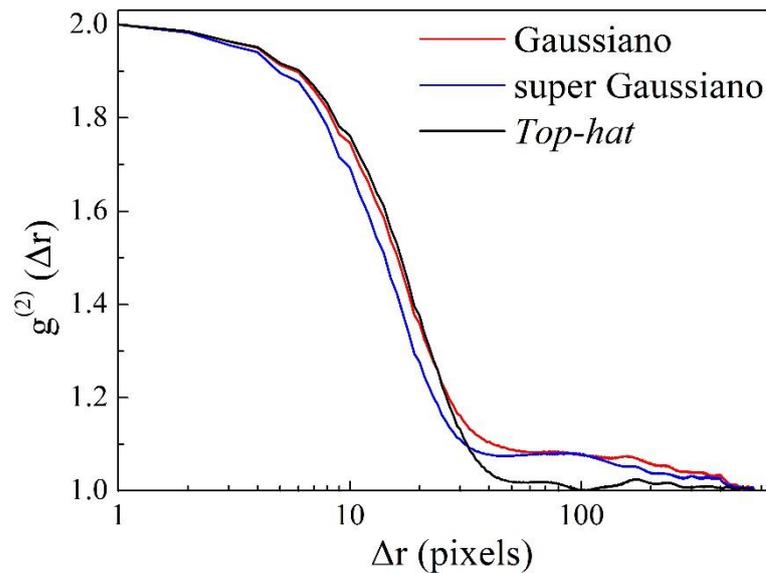


(c)



A Figura 20 mostra a caracterização dos padrões de *speckles* a partir da função de correlação espacial de intensidade,  $g^{(2)}(\Delta r)$ , da qual podem ser extraídas informações relevantes. Por exemplo, o tamanho médio dos *speckles* ( $S$ ) pode ser obtido a partir da largura da curva de função de autocorrelação,  $g^{(2)}(\Delta r)$ . Desta forma, *speckles* com tamanhos médios de 31, 32 e 38 pixels, estimados a partir da largura das curvas de  $g^{(2)}(\Delta r)$ , que foram obtidos para os padrões gerados respectivamente a partir dos feixes Gaussiano, super Gaussiano e *top-hat*. A proximidade entre os tamanhos dos *speckles* para os diferentes padrões nos permite garantir uma comparação adequada no estudo de propagação não linear, discutido no próximo capítulo.

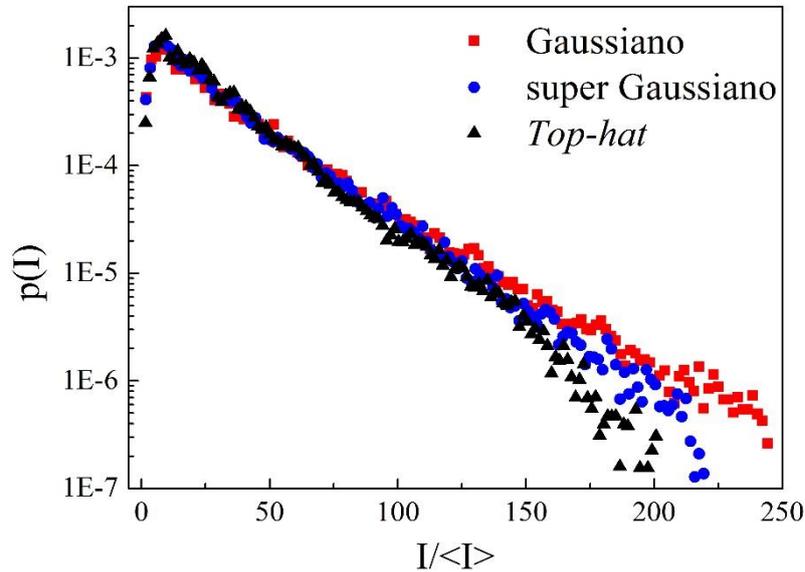
Figura 20 – Funções de autocorrelação espacial de intensidade calculadas para os padrões de *speckles* gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade Gaussiano (curva vermelha), super Gaussiano (curva azul) e *top-hat* (curva preta).



Fonte: autora, 2022

Além disso, a função autocorrelação espacial de intensidade é representada por uma distribuição normal, para os três padrões gerados, com variação de  $g^{(2)}(\Delta r = 0) = 2$  a  $g^{(2)}(\Delta r \rightarrow \infty) = 1$ . Isso significa que à medida que os *speckles* se tornam distantes entre si, para além do seu próprio tamanho médio ( $\Delta r \gg S$ ), a correlação de intensidade entre eles tende a ser um valor constante mínimo ( $g^{(2)} = 1$ ). Em termos das funções de probabilidade de intensidade,  $p(I)$ , mostradas na Figura 20, isso quer dizer que a probabilidade de medir uma determinada intensidade  $I = |E|^2$  apresenta flutuações não correlacionadas para ( $\Delta r \gg S$ ).

Figura 21 – Funções de densidade de probabilidade (de intensidade) para os padrões de speckles gerados a partir de um feixe com perfil de intensidade Gaussiano (quadrados vermelhos), super Gaussiano (círculos azuis) e top-hat (triângulos pretos).



Fonte: autora, 2022

Uma outra informação relevante extraída dos histogramas de  $p(I)$  é a homogeneidade na distribuição de intensidade dos *speckles*. A Figura 21 mostra que o padrão de *speckles* gerados a partir da envoltória Gaussiano consegue apresentar *speckles* com alto contraste em intensidade, embora em pouca quantidade. Isto pode ser facilmente observado na Figura 19(a), onde poucos *speckles* intensos foram coletados na região central do padrão, e *speckles* com baixa intensidade nas bandas laterais do padrão. Por outro lado, uma distribuição de intensidade mais homogênea é obtida para os padrões de *speckles* gerados por envoltórias super Gaussiana e *top-hat*, os quais alcançam valores máximos de  $I/\langle I \rangle$  menores que para a envoltória Gaussiano.

### 3.5 RESPOSTA ÓPTICAS DO CORANTE LDS 722

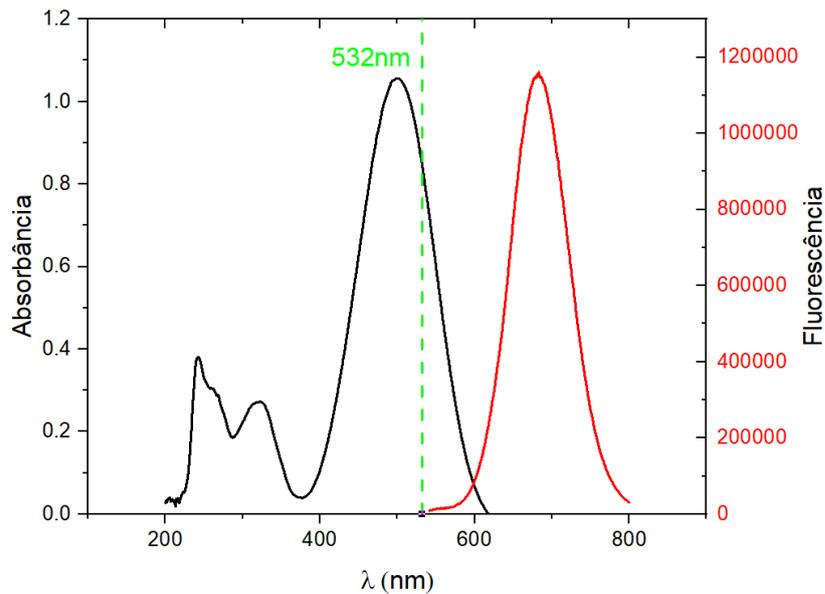
O LDS722 é um corante orgânico que tem base na hemicianina, compostos aromáticos com um forte grupo doador de elétrons em uma extremidade de sua estrutura molecular e um forte grupo receptores de elétrons na extremidade oposta, conectados por grupos metileno. O LDS722 tem como grupo doador de elétrons a anilina e como grupo receptor o piridínio. Devido à possibilidade do deslocamento de elétrons, vários estudos em óptica não linear são realizados

utilizando o corante LDS 722 em combinação com outros materiais, tais como: cápsulas 1D de aluminofosfato de MgAPO-11 (SOLA-LLANO et al., 2016) e filmes finos de argila Laponita, (EPELDE-ELEZCANO et al., 2014). Além disso, o corante LDS722 tem sido objeto de diversas aplicações que vão desde o desenvolvimento de dispositivos optoeletrônicos (ASHWELL et al., 2004), ópticos (SHIM et al., 2006) e até mesmo na área da saúde em pesquisas voltadas ao monitoramento da evolução de doenças degenerativas, como por exemplo: Alzheimer, doença de Parkinson, Esclerose Lateral Amiotrófica – ELA (WARERKAR et. al., 2021). Para os fins desta dissertação, o corante LDS722 tem sido utilizado pela sua resposta térmica que apresenta quando excitado via laser em determinadas condições. As propriedades ópticas lineares e não lineares do corante LDS722 são discutidas a seguir.

### 3.5.1 Propriedades ópticas lineares

Nesta dissertação, o meio utilizado para propagar os padrões de *speckles* com envoltória Gaussiana, super Gaussiana e *top-hat* foi o corante LDS722 diluído em etanol, com concentrações entre 0,031 e 0,062 mM. Para caracterizar a resposta óptica de absorção e fluorescência deste material foi utilizado um fluorímetro ou fluorômetro (Fluoromax, Horiba). A Figura 22 mostra o espectro de absorbância (curva preta) medido entre os comprimentos de onda,  $\lambda$ , de 200 nm a 800 nm.

Figura 22 – Curvas de absorção em preto e emissão em vermelho da amostra do corante LDS722 diluído em etanol. O tracejado vertical em verde identifica o comprimento de onda do laser ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ).



Fonte: Autora (2022)

Na Figura 22 é possível observar que o corante apresenta uma forte absorção na região do espectro visível que vai do azul (400 nm) ao amarelo (600 nm), com máximo de absorbância em 501 nm. O tracejado vertical em verde identifica o comprimento de onda do laser ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) que foi usado nos experimentos para incidir nas amostras. Devido à proximidade entre o comprimento de onda do laser e o pico de absorção do corante, a condição de excitação escolhida para nossos experimentos foi ideal para induzir efeitos térmicos na amostra por absorção de radiação.

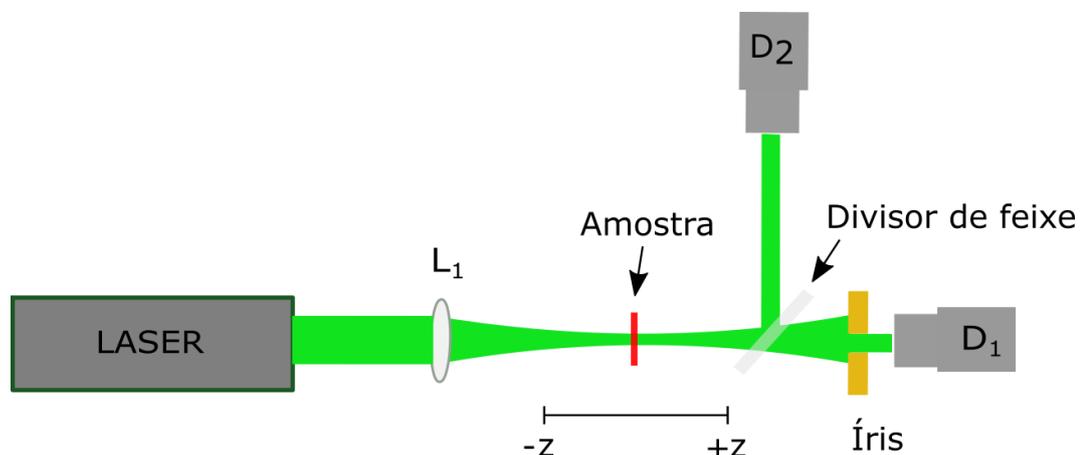
Quando o corante LDS722 foi excitado em 532 nm foi observado uma banda de fluorescência na região vermelha, entre 600 nm e 800 nm, com máximo em 683 nm. Os experimentos desta dissertação não são dedicados a estudos de fluorescência, mas à resposta óptica não linear do corante LDS722. Entretanto, o espectro de fluorescência nos permite selecionar um filtro adequado que permita eliminar a luminescência do material dos estudos de propagação não linear, como discutido na seção 4.2.

### 3.5.2 Propriedades ópticas não lineares

Para os estudos de propagação não linear de feixes incoerentes, três concentrações diferentes do corante LDS722 em etanol foram usados, sendo de: 0,062; 0,046 e 0,031 mM. Para isto, primeiro foi necessário caracterizar a resposta óptica não linear dos corantes, através da técnica de Varredura Z.

A técnica de Varredura Z foi desenvolvida por Sheik-Bahae e seus colaboradores em 1990 (BAHAE et al., 1990), e consiste em um arranjo experimental simples onde uma amostra fina é submetida a um feixe laser focalizado e essa amostra é deslocada ao longo do eixo z (eixo de propagação do feixe) passando por posições próximas do foco e no foco do feixe laser. Enquanto isso, dois detectores, localizados em campo distante, fazem a captura das intensidades dos feixes transmitidos. Devido aos efeitos de autofocalização e autodesfocalização, discutidos no capítulo anterior, os feixes sofrem uma variação de fase não linear que produzem mudanças nas frentes de onda, causando a divergência ou convergência do feixe transmitidos. Na Figura 23, o feixe transmitido e coletado pelo detector  $D_1$ , mede as variações de intensidade produzidas pelas mudanças da sua frente de onda, as quais são perceptíveis para este detector pelo fato dele estar localizado logo após a íris. Desta forma, a transmitância para este caso revela informações a respeito do índice de refração não linear,  $n_2$ , do meio. Já o detector  $D_2$ , sem uma íris na frente, coleta a potência total do feixe transmitido, sendo incapaz de identificar a influência das variações de frente de onda. Dessa forma, a medida da transmitância leva informações do comportamento de absorção da amostra em função da intensidade de excitação.

Figura 23 – Arranjo experimental da técnica de Varredura Z. L; lentes e D: detectores.

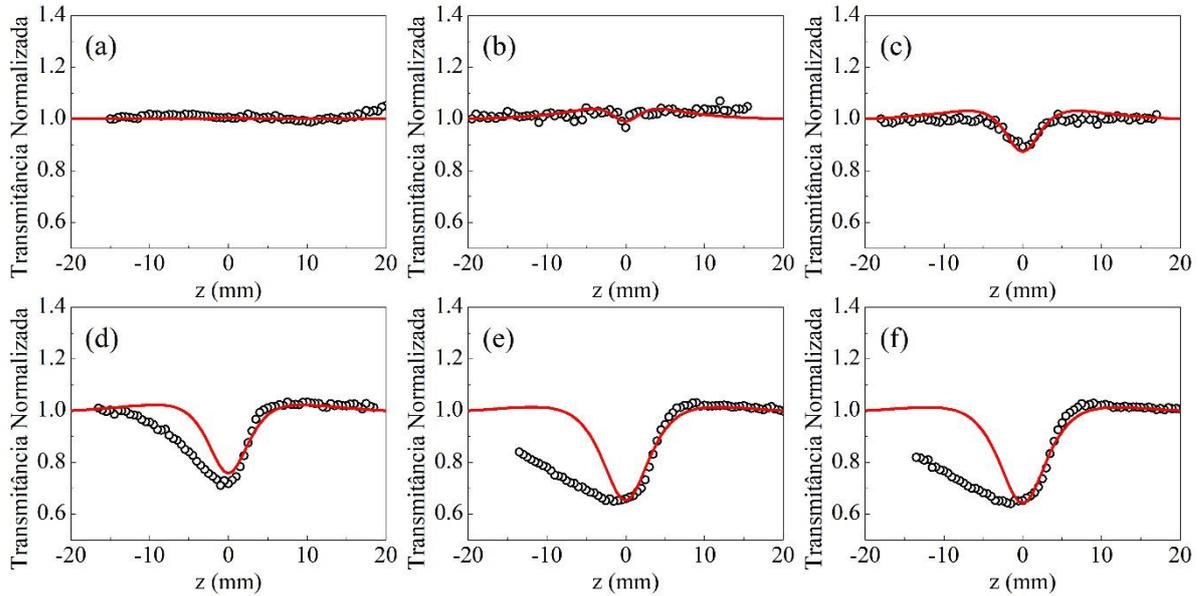


Fonte: Autora (2022)

A técnica de Varredura Z, na configuração de fenda aberta (detector D2), é utilizada para medir o coeficiente de absorção não linear do corante LDS722, através da medida de variação de transmitância do feixe em função da posição, ao longo do eixo de propagação e em torno do foco da lente. Para isto, as amostras com diferentes concentrações foram colocadas em uma cubeta de quartzo de 1mm de espessura, e a varredura foi realizada por 35 mm ao redor do plano focal da lente. Para as medidas de Varredura Z, as amostras foram excitadas apenas com feixes de perfil de intensidade Gaussiano, como proposto originalmente por Sheik-Bahae (BAHAE et al., 1990).

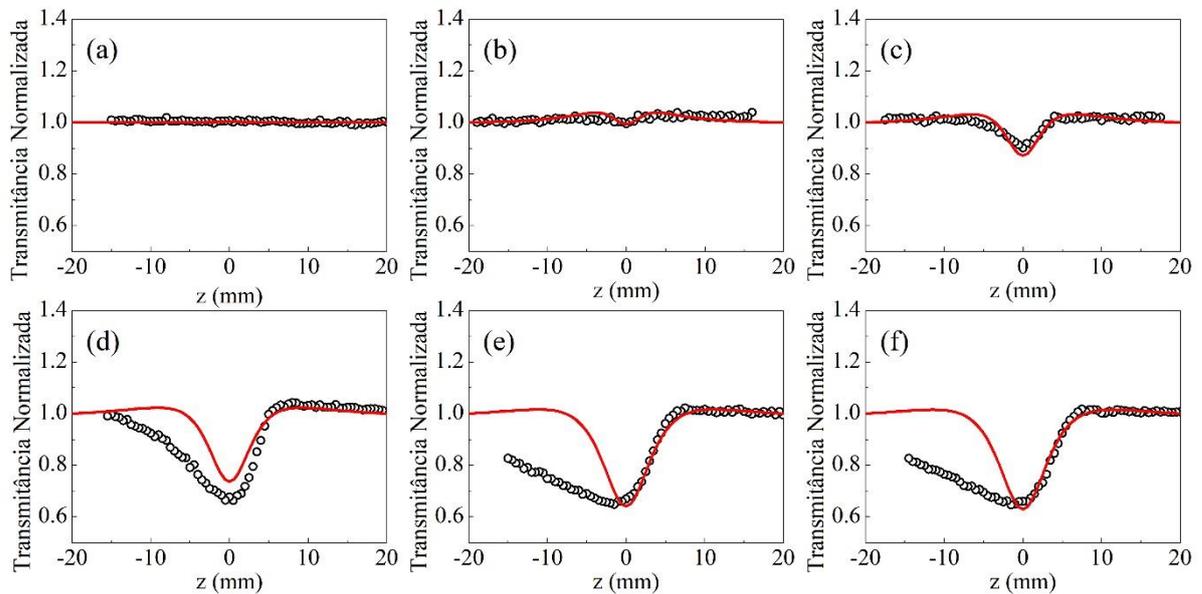
As Figuras 24, 25 e 26 mostram as curvas de Varredura Z de fenda aberta, para as três concentrações de amostra de LDS722 em etanol, que foram submetidas a seis intensidades diferentes do feixe, variando entre  $0,5 \text{ kW/cm}^2$  até  $304,7 \text{ kW/cm}^2$ . Para a menor intensidade de excitação, uma transmitância constante ( $T(z) = 1,0$ ) é observada ao longo da varredura indicando que efeitos de absorção não linear não existem ou são insignificantes. Contudo, para todas as concentrações observa-se que à medida que a intensidade da luz incidente aumenta, um vale na região de maior intensidade (próximo de  $z = 0$ ) acompanhado de dois pequenos lóbulos laterais (transmitância acima de 1,0) é formado. Com o aumento contínuo da intensidade incidente, o vale fica cada vez mais fundo. Entretanto, para as intensidades maiores a profundidade do vale apresenta pequenas variações, mas é possível observar uma assimetria notável nas curvas.

Figura 24 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,031 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm<sup>2</sup>, (b) 50,5 kW/cm<sup>2</sup>, (c) 110,2 kW/cm<sup>2</sup>, (d) 186,8 kW/cm<sup>2</sup>, (e) 290,9 kW/cm<sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm<sup>2</sup>.



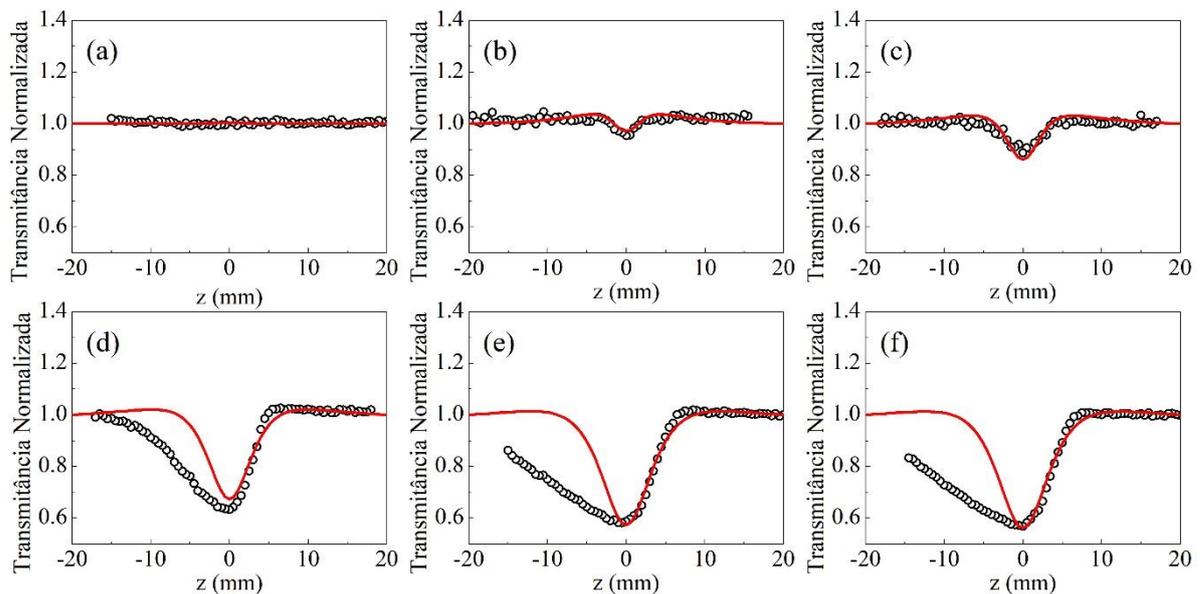
Fonte: Autora (2022)

Figura 25 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,046 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm<sup>2</sup>, (b) 50,5 kW/cm<sup>2</sup>, (c) 110,2 kW/cm<sup>2</sup>, (d) 199 kW/cm<sup>2</sup>, (e) 290,9 kW/cm<sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm<sup>2</sup>.



Fonte: Autora (2022)

Figura 26 – Curvas de Varredura Z (fenda aberta) para o corante LDS722 em etanol a uma concentração 0,062 mM nas intensidades de: (a) 0,5 kW/cm<sup>2</sup>, (b) 50,5 kW/cm<sup>2</sup>, (c) 110,2 kW/cm<sup>2</sup>, (d) 199 kW/cm<sup>2</sup>, (e) 290,9 kW/cm<sup>2</sup> e (f) 304,7 kW/cm<sup>2</sup>.



Fonte: Autora (2022)

As curvas de Z-scan na configuração de fenda aberta podem ser explicadas pelos efeitos de absorção não linear e saturada, discutidas na seção 2.3.3. O aumento na transmitância para valores acima de 1,0 (lóbulos laterais para  $I = 50,5 \text{ kW/cm}^2$ ) ocorre devido ao processo de absorção saturada de um fóton. Esse comportamento é esperado pois os corantes são excitados próximo do pico máximo de absorção, como mostrado na Figura 21. Isto faz com que o estado excitado, que recebe os elétrons do estado fundamental, sature rapidamente, deixando de absorver novos fótons e desta forma aumenta o valor da transmitância. A expressão para descrever o efeito de absorção saturada é dada pela equação 44. Por outro lado, o vale formado na curva da transmitância caracteriza um processo de absorção de 2 fótons (2PA), como descrito na seção 2.3.2.1. Fazendo a mesma análise no espectro de absorção, pode-se observar que a absorção de 2 fótons de 532 nm (com energia de 2,33 eV por fóton) é esperada desde que uma banda de absorção pode ser visualizada na região próxima a 266 nm (4,66 eV), como mostrado na Figura 22. O aumento da profundidade do vale é claro até intensidades de aproximadamente 200 kW/cm<sup>2</sup>. Porém, para intensidades maiores, a profundidade permanece praticamente constante indicando uma saturação do fenômeno de absorção de 2 fótons. Portanto, as curvas de Varredura Z foram ajustadas para todas as intensidades estudadas, por considerar o coeficiente de absorção como uma contribuição de saturação das absorções de 1 e 2 fótons, dado por (KIRKPATRICK, 2001):

$$\alpha(z) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_{S_{1PA}}} + \frac{\alpha_2 I}{1 + (I/I_{S_{2PA}})^2} \quad (65)$$

onde  $\alpha_0$  é o coeficiente de absorção de 1 fóton,  $\alpha_2$  é o coeficiente de absorção de 2 fótons,  $I_{S_{1PA}}$  e  $I_{S_{2PA}}$  são as intensidades de saturação dos processos de absorção de 1 e 2 fótons, respectivamente.

Dos ajustes (linhas sólidas) das curvas experimentais (círculos) das Figuras 24, 25 e 26 foram obtidos os parâmetros que caracterizam a resposta não linear do corante LDS722 em etanol, listados na tabela 1. Apenas o valor de  $\alpha_0$  foi obtido experimentalmente através do espectro de absorção medido no fluorímetro.

Tabela 1 - Parâmetros de ajuste das curvas de Varredura Z de fenda aberta das figuras 24, 25 e 26 usando a equação 65.

Parâmetros de ajuste usando eq. 64	Concentração do corante LDS em etanol		
	0,031 mM	0,046 mM	0,062 mM
$\alpha_0$ (1/cm)	3,11	4,61	6,22
$\alpha_2$ (cm/W)	$(9,0 \pm 0,9) \times 10^{-5}$	$(11,7 \pm 1,17) \times 10^{-5}$	$(18,0 \pm 1,8) \times 10^{-5}$
$I_{S_{1PA}}$ (kW/cm <sup>2</sup> )	$10 \pm 0,1$	$15 \pm 1,5$	$15 \pm 1,5$
$I_{S_{2PA}}$ (kW/cm <sup>2</sup> )	$400 \pm 40$	$400 \pm 40$	$400 \pm 40$

Fonte: Autora (2022)

As Figuras 24, 25 e 26 também mostram que para as maiores intensidades as curvas de Varredura Z apresentam uma forte assimetria. Uma possível explicação para a deformação da curva é devido ao forte efeito térmico induzido na amostra. Nos experimentos, a varredura foi realizada iniciando na posição  $z = +20$  mm com direção a  $z = -15$  mm. Isso significa que na região de  $z > 0$  o vale apresenta o comportamento típico de uma absorção não linear (2PA para o nosso caso). Porém, após passar pela região de maior intensidade ( $z = 0$ ), o corante que foi fortemente aquecido pelo laser não consegue dissipar a energia para retornar a temperatura inicial de equilíbrio na mesma velocidade com a que foi aquecida (referente a velocidade dos passos na varredura). Assim, a curva de transmitância para a região  $z < 0$  retorna para o valor inicial de  $T(z) = 1,0$  em um tempo maior, causando a assimetria da curva.

Portanto, a técnica de Varredura Z nos permitiu caracterizar a resposta não linear do corante LDS722, o qual se mostrou um meio adequado para a observação de diversos fenômenos de absorção não linear. Para as concentrações do corante usadas nos experimentos não foi possível observar uma curva de Varredura Z de fenda fechada. Isto é, a refração não

linear do corante foi inferior aos valores que podem ser medidos com o nosso aparato experimental, que para intensidades de  $100 \text{ kW/cm}^2$  corresponderia a um  $n_2 \approx 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{W}$ .

## 4 RESULTADOS EXPERIMENTAIS DA PROPAGAÇÃO NÃO LINEAR DE PADRÕES DE SPECKLES

### 4.1 INTRODUÇÃO

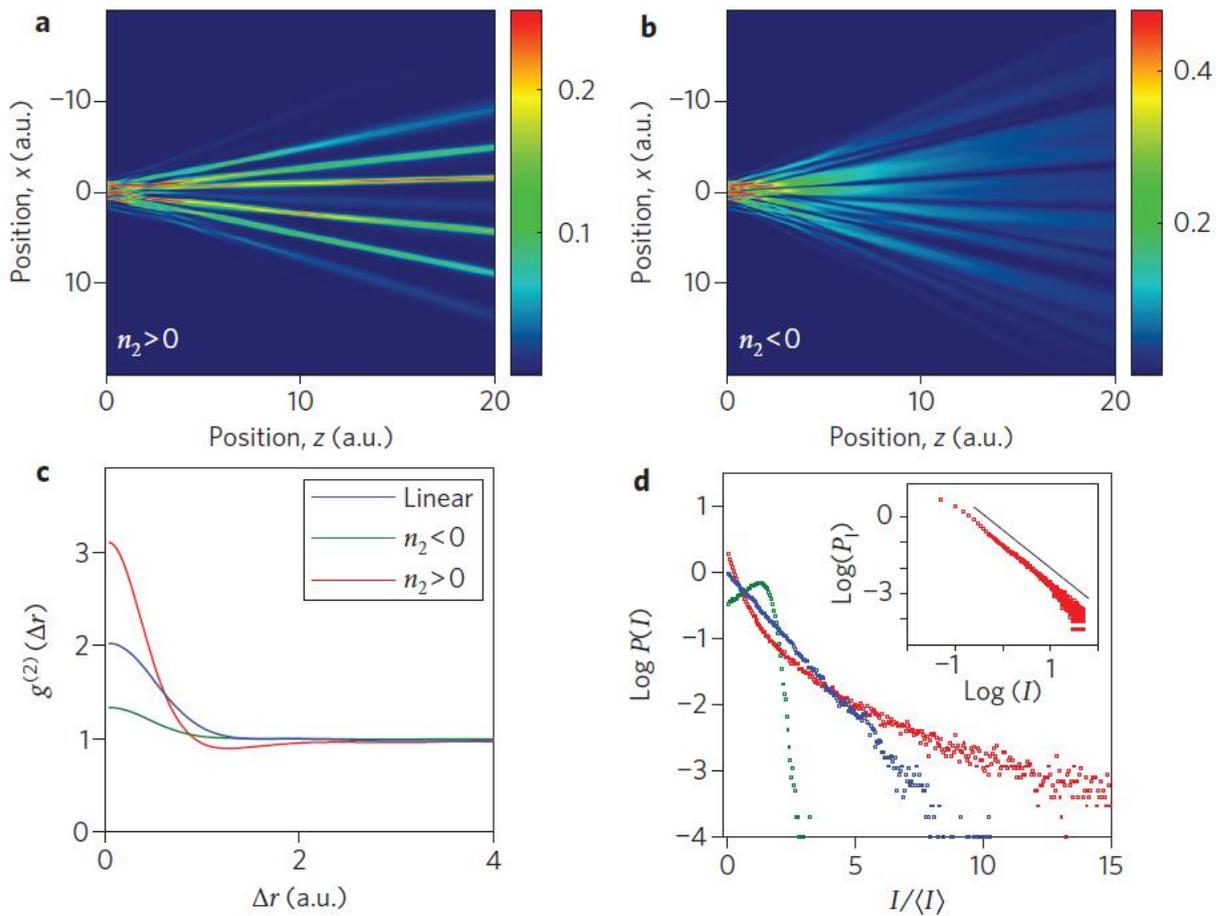
Trabalhos recentes reportados na literatura (BROMBERG et al., 2010; ALVES et al., 2019) têm explorado estudos que discutem as mudanças nas propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* quando se propagam em meios não lineares, autofocalizadores e autodesfocalizadores. A Figura 27 apresenta resultados da pesquisa de BROMBERG et al., mostrando que quando os meios são autofocalizadores ( $n_2 > 0$ ), a curva de autocorrelação,  $g^{(2)}(\Delta r)$ , do padrão de *speckles* transmitido apresenta um aumento do seu máximo em relação à propagação no regime linear ( $n_2 = 0$ ) [Fig. 27(c)]. Esse comportamento indica um aumento no grau de correlação dos *speckles*, pois em termos de intensidade, um ponto dentro de um *speckles* apresenta uma similaridade alta com um ponto vizinho, ainda dentro do mesmo *speckles*. Nessa mesma condição também é observado o estreitamento da curva  $g^{(2)}(\Delta r)$ , a qual ocorre porque uma outra consequência da autofocalização é a diminuição no tamanho dos *speckles*, como mostrado na Figura 27(a). Além disso, outra análise estatística é apresentada pelos autores através da Figura 27(d), na qual é possível observar a função densidade de probabilidade,  $p(I)$ , das intensidades dos *speckles* para um meio autofocalizador. O resultado observado foi um aumento na probabilidade de encontrarmos intensidades bem maiores que a média. Isto também é um resultado da autofocalização, pois com a diminuição do tamanho dos *speckles*, intensidades maiores são atingidas, mantendo-se a potência constante.

Quando os materiais são autodesfocalizadores, as curvas de correlação  $g^{(2)}(\Delta r)$  [Figura 27(c)], apresentam seus máximos cada vez menores, pois a similaridade entre pontos brilhantes próximos (e dentro do mesmo *Speckle*) se torna reduzida quanto mais desfocado o *speckle* estiver [Figura 27(b)]. Neste caso, a distribuição de densidade de probabilidade,  $p(I)$ , representada pela Figura 27(d), apresenta-se com uma redução da probabilidade de encontrar regiões com altas intensidades.

Contudo, na pesquisa desenvolvida por ALVES et al., mostra-se que os efeitos de absorção não linear podem contribuir as mudanças nas propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* ao longo da sua propagação. Por exemplo, em vapores atômicos (ALVES et al., 2019) reporta-se que em meios autodesfocalizadores, com absorção não linear, a curva de  $g^{(2)}(\Delta r)$

pode ter seu máximo valor aumentado, bem como a função densidade de probabilidade pode mostrar valores altos de intensidade, um comportamento que é esperado para o meio autofocalizador (BROMBERG et al., 2010).

Figura 27 – Simulação numérica da propagação de padrões de speckles em meio (a) autofocalizador e (b) autodesfocalizador. (c) Funções de autocorrelação de intensidade e (d) funções densidade de probabilidade para um meio linear (pontos azuis,  $n_2 = 0$ ), autofocalizador (pontos vermelhos,  $n_2 > 0$ ) e autodesfocalizador (pontos verdes,  $n_2 < 0$ ).



Autor: Bromberg (2010)

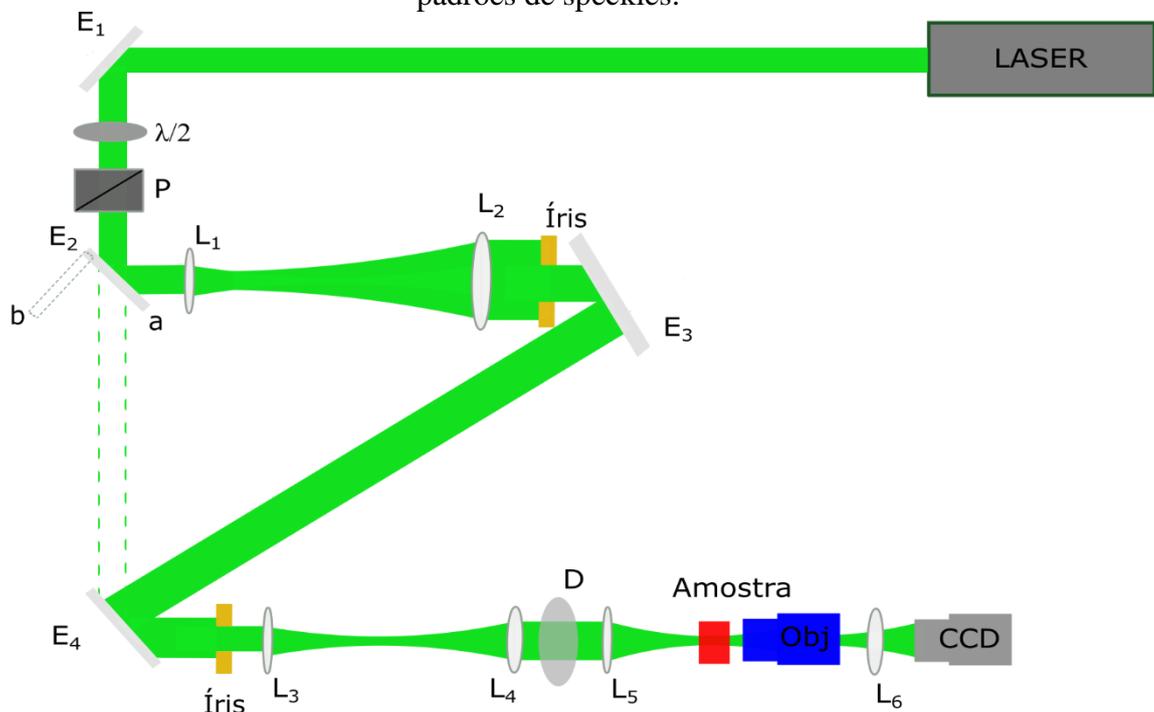
O objetivo dos estudos desta dissertação, no tópicos de propagação de *speckles* em meios não lineares, é incrementar os conhecimentos reportados até agora, mostrando as variações nas estatísticas de propagação de padrões de *speckles* que podem acontecer devido à influência da refração e absorção não linear. Para isso foram utilizados três tipos diferentes de padrões de *speckles* gerados com envoltória de intensidade: Gaussiana, super-Gaussiana e *top-hat*, que respondem de forma diferente à não linearidade do corante LDS722.

## 4.2 ARRANJO EXPERIMENTAL

O arranjo experimental usado para estudar a propagação não linear de padrões de *speckles* é similar ao mostrado na Figura 18, usado para caracterizar os padrões de *speckles* no foco da lente  $L_5$ . Entretanto, desta vez foi adicionada a cubeta de formato cilíndrico de 20 mm de comprimento, contendo o meio não linear, com a face de entrada (face em que o feixe incide primeiro) localizada no foco da lente  $L_5$ , como mostrado na Figura 28.

Para que fosse realizada a captura dos padrões de *speckles*, na face de saída da cubeta, foi necessário utilizar um sistema de magnificação de imagens. O sistema consiste de uma lente objetiva de microscópio, com magnificação linear de 4X e abertura numérica de 0,1, uma lente biconvexa ( $L_6$ ) e uma câmera CCD localizadas em posições específicas. A objetiva foi posicionada a uma distância de  $\sim 19,3$  mm da face de saída da amostra, correspondente a sua distância de trabalho. A distância entre o final da objetiva e a câmera CCD foi de 15 cm. Porém, a lente  $L_6$ , com distância focal de  $f = 7,5$  cm, foi colocada entre a objetiva e a CCD, numa configuração  $4f$ , para que a imagem do feixe apresentasse um tamanho adequado para a sua caracterização.

Figura 28 – Arranjo experimental utilizado para os experimentos de propagação não linear de padrões de *speckles*.



Fonte: Autora (2022)

A cubeta de quartzo usada para as amostras tem o formato cilíndrico, com as bases sendo planas e transparentes, com uma distância de separação de 20 mm. Numa das bases existe umas letras pequenas impressas no quartzo que servem de identificação do material da cubeta. Essa base foi usada como face de saída em nossos estudos, e as letras impressas nela foram usadas para garantir que os componentes ópticos de magnificação encontram-se nas posições corretas para a captura das imagens formadas no plano desejado. Então, inicialmente a cubeta foi colocada de tal forma que o feixe passe pela região onde encontram-se as letras de identificação, e o feixe transmitido foi coletado pelo sistema óptico de magnificação. Através de ajustes milimétricos, ao longo das direções longitudinal e transversal, a objetiva de microscópio foi deslocada até que a imagem das letras coletadas na CCD fosse formada com a máxima nitidez possível. Uma vez atingida a posição correta da objetiva, a cubeta foi deslocada verticalmente para que as letras não interferissem na realização das medidas com as amostras de LDS722. O mesmo sistema de magnificação foi utilizado para coletar as imagens na face de entrada da cubeta, mostradas na Figura 18. Para esse caso, todo o sistema óptico de magnificação (incluindo a CCD) foi deslocado 20 mm para frente (tamanho da cubeta) de forma a coletar os padrões de *speckles* incidentes.

O estudo da propagação não linear de feixes incoerentes foi realizado usando os 3 padrões de *speckles* caracterizados no capítulo anterior, incidindo no corante LDS722 diluído em etanol às concentrações de 0,031; 0,046 e 0,062 mM, e submetidos a diferentes intensidades de excitação. Para cada medida foram realizadas 50 capturas de imagens dos padrões de *speckles* formados no plano de saída da cubeta. O estudo das propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* propagados no meio não linear foram realizados através das funções de correlação de intensidade e densidade de probabilidade, como discutido a seguir.

#### 4.3 PROPAGAÇÃO NÃO LINEAR DE PADRÕES DE *SPECKLES* E SUAS PROPRIEDADES ESTATÍSTICAS

Três padrões de *speckles* com envoltória Gaussiana, super-Gaussiana e *top-hat* foram propagados no meio não linear, o que corresponde ao corante LDS722 em três concentrações diferentes, em uma cubeta de 20 mm. As análises estatísticas referentes a esses padrões de *speckles* foram realizadas para uma melhor compreensão dos fenômenos ópticos não lineares envolvidos ao longo da propagação. Dessa maneira, a função de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , a função

de correlação cruzada,  $g_{cross}^{(2)}$ , e a função densidade de probabilidade,  $p(I)$ , foram geradas e analisadas para cada padrão de *speckles*, em função das variações de intensidade incidente, responsáveis por excitar os fenômenos não lineares. Propriedades estatísticas diferentes foram observadas para os padrões de *speckles* gerados com diferentes envoltórias.

#### 4.3.1 Propagação dos padrões de *speckles* para intensidades moderadas ( $I < 30 \text{ kW/cm}^2$ )

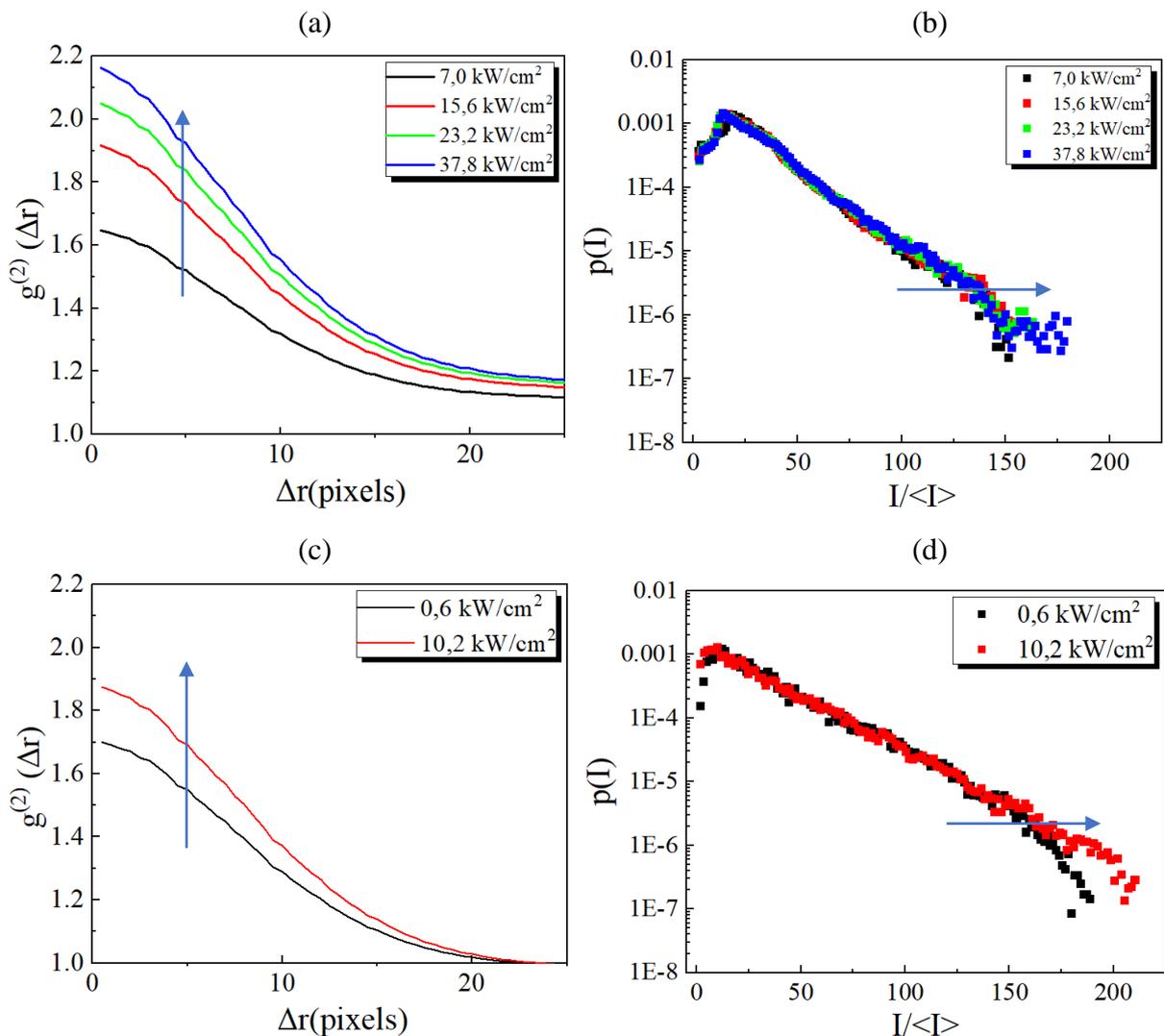
Na primeira faixa de intensidade, a propagação de padrões de *speckles* foi estudada para intensidades menores a  $30 \text{ kW/cm}^2$ . Neste caso, segundo a caracterização não linear do corante LDS722, realizado na seção 3.5.2, o comportamento de absorção não linear dominante é o efeito de absorção saturada de 1 fóton.

Os primeiros feixes incoerentes produzidos, propagados e analisados, correspondem aos padrões de *speckles* com envoltória de intensidade Gaussiano. Cada padrão foi gerado com uma potência diferente e esse fator foi analisado pela perspectiva estatística da autocorrelação de intensidade,  $g^{(2)}$ , e da estatística da densidade de probabilidade de intensidade,  $p(I)$ . Os resultados estão destacados na Figura 29, para as concentrações do corante de 0,062 e 0,031 mM.

Na Figura 29, analisando as curvas das funções de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , pode-se estimar uma média do tamanho dos *speckles*,  $S \approx 18$  pixels, para ambas as concentrações do corante. Também se nota que, para maiores intensidades incidentes do padrão de *speckles*, um aumento nos valores alcançados pela curva de  $g^{(2)}$  é observado. Isso significa que o corante LDS722, conhecido por apresentar um comportamento autodesfocalizador ( $n_2 < 0$ , devido ao efeito térmico) no regime de excitação CW, apresenta um resultado contrário ao reportado por Bromberg et al. (Figura 27(c)). Contudo, a caracterização com a técnica de Z-scan de fenda fechada mostra que, para as concentrações usadas em nossos experimentos, a contribuição da refração não linear é pequena. Desta forma, uma possível explicação para as variações na estatística dos padrões de *speckles* é a da influência que a absorção não linear do meio autodesfocalizador pode apresentar nos resultados de  $g^{(2)}$ , como foi discutido em (ALVES et al., 2019). Em nosso caso, devido a absorção não linear ser dominada pelo efeito de absorção saturada de 1 fóton, para  $I < 30 \text{ kW/cm}^2$ , nós temos que o coeficiente de absorção pode ser

descrito apenas pelo primeiro termo da equação (64), ou seja:  $\alpha(I) = \alpha_0 / (1 + I/I_{S,1PA})$ . Então, quando os *speckles* apresentam uma distribuição de intensidade Gaussiana (parte central

Figura 29 – Funções de (a, c) autocorrelação,  $g^{(2)}$ , e (b, d) densidade de probabilidade,  $p(I)$ , dos padrões *speckles* com envoltória de intensidade Gaussiano após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM e (c, d) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente.



Fonte: Autora (2022)

mais intensa que as bordas), ao propagar-se em um meio não linear com absorção saturada, as regiões que apresentam intensidade abaixo do limiar de intensidade de saturação (bordas dos *speckles*) sofrerão a absorção de 1 fóton,  $\alpha(I) = \alpha_0$ . Entretanto, as regiões mais intensas dos *speckles* (parte central), que superam o limiar de intensidade de saturação,  $I_{S,1PA}$ , são absorvidas com menor intensidade devido à saturação da absorção de 1 fóton (1PA). Dessa maneira, a área dos *speckles* que aparece nas imagens capturadas pela CCD é menor, pois

apenas a região de maior intensidade foi transmitida com maior eficiência. Como resultado, as análises de autocorrelação são de curvas de  $g^{(2)}$  que atingem valores maiores com o aumento da intensidade (até 30 kW/cm<sup>2</sup>), similar ao comportamento das curvas de  $g^{(2)}$  de autofocalização descrito por Bromberg et al., sendo que desta vez produzidas apenas pela contribuição da absorção saturada de 1 fóton.

A análise das funções densidade de probabilidade da distribuição de intensidade,  $p(I)$ , apresentadas nas Figuras 29(b) e (d), mostra que à medida em que a intensidade do feixe cresce a curva de  $p(I)$  apresentam pequenas diferenças, como novos pontos atingindo valores maiores da razão intensidade/média da intensidade. Essas pequenas variações também estão associadas ao fenômeno de absorção saturada de 1 fóton, pois a maior parte da intensidade transmitida é referente as regiões mais intensas dos *speckles*, ou seja, acima da intensidade de saturação de 1 fóton,  $I_{S\_1PA}$ .

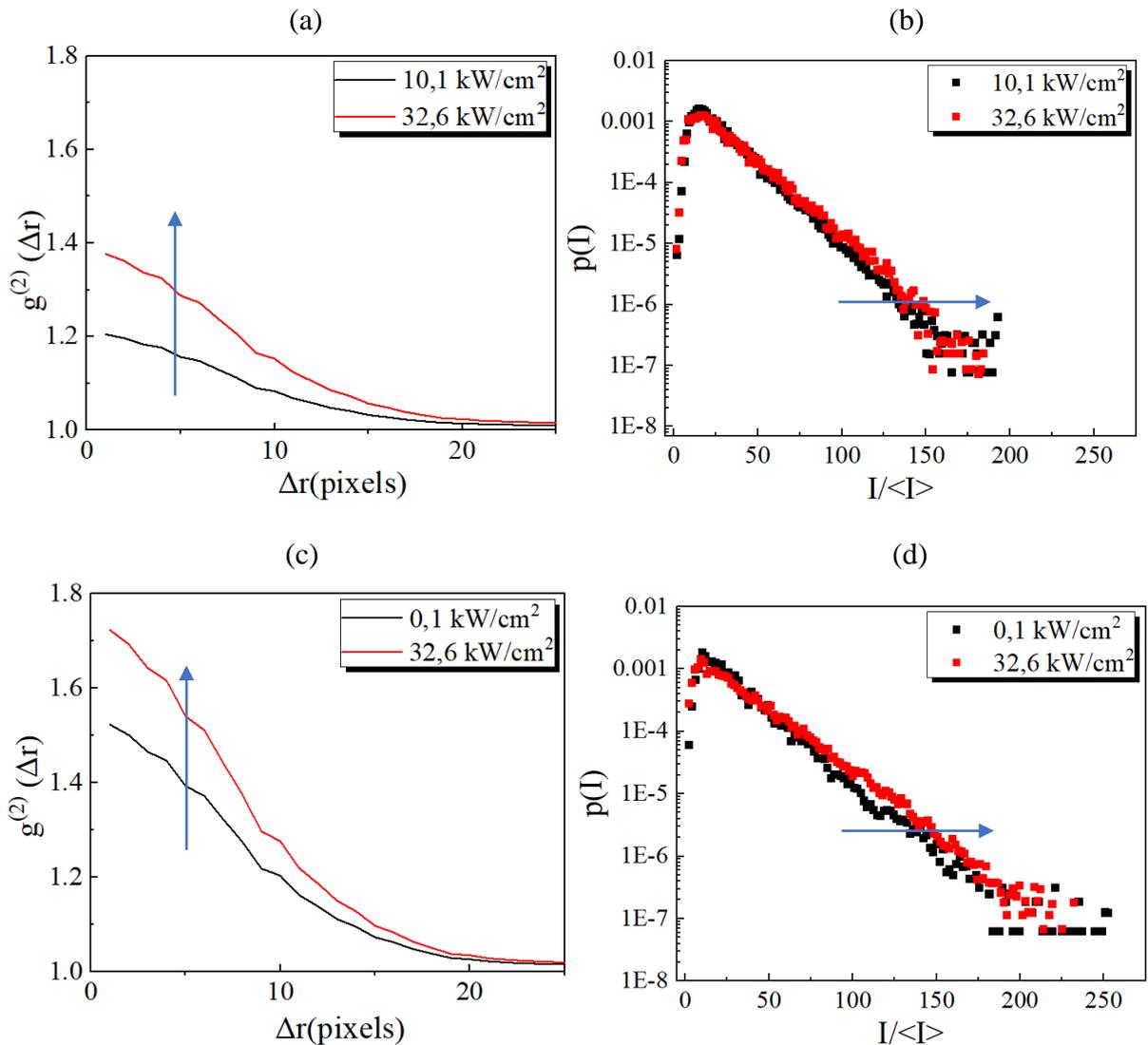
De forma análoga, padrões de *speckles* gerados a partir de uma envoltória de intensidade super-Gaussiana também apresentam um comportamento de crescimento das curvas de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , com o aumento da intensidade incidente, até 30 kW/cm<sup>2</sup> [Figura 30 (a) e (c)]. Sendo assim, compreende-se que o comportamento da propagação dos *speckles*, com envoltória super-Gaussiana apresenta condições similares ao que foi discutido para a Figura 29 (a) e (c). Ainda observando as curvas da função de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , pode-se estimar uma média do tamanho dos *speckles* de  $S \approx 19$  pixels, para ambas as concentrações do corante.

Por outro lado, analisando as funções de densidade de probabilidade da distribuição de intensidade,  $p(I)$ , mostradas nas Figuras 30(b) e (d), observa-se que as curvas são muito próximas entre si para as diferentes intensidades. Isso porque, a distribuição de intensidade dos *speckles* é mais homogênea devido a envoltória do padrão ter uma distribuição de intensidade super-Gaussiana. Assim, existe uma diferença, com menor contraste, entre as regiões dos *speckles* que apresentam intensidade abaixo e acima do limiar de saturação de absorção de 1 fóton,  $I_{S\_1PA}$ .

Uma explicação mais detalhada pode ser entendida a partir da Figura 31, que mostra uma representação das distribuições de intensidade de feixes Gaussiano, super-Gaussiano e *top-hat* com a mesma potência total. Para gerar os perfis de intensidade foi utilizado a equação  $I(x) = I_0 \exp[-2(r/w_0)^N]$ , com  $N = 2, 6$  e  $1000$  para os feixes Gaussiano, super-Gaussiano e *top-hat*, respectivamente. Os valores de  $I_0$  foram escolhidos de tal forma que a integração dos

perfis de intensidades ( $\int_{-\infty}^{+\infty} I(x)dx$ ) sejam iguais para os 3 feixes, garantindo a mesma potência. Uma linha tracejada horizontal é colocada representando a intensidade de saturação da absorção de 1 fóton,  $I_{S_{1PA}}$ . Deve-se mencionar que para facilitar a explicação dos fenômenos observados.

Figura 30 – Análises estatísticas das funções de (a, c) autocorrelação,  $g^{(2)}$ , e (b, d) densidade de probabilidade,  $p(I)$ , dos padrões speckles com envoltória de intensidade super-Gaussiano após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM e (c, d) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente.



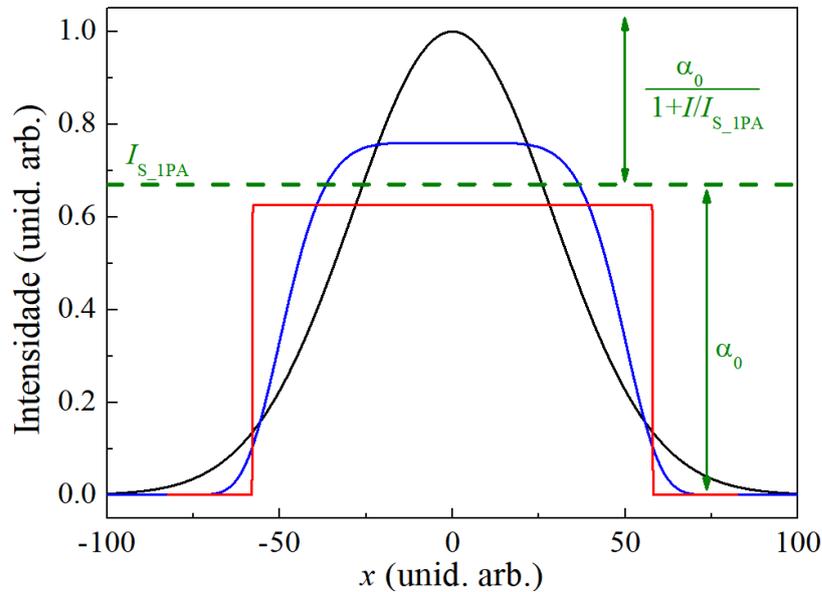
Fonte: Autora (2022)

nesta dissertação, a  $I_{S_{1PA}}$  foi escolhida para estar por cima da intensidade do feixe *top-hat*, porém abaixo dos máximos de intensidade para os feixes Gaussiano e super-Gaussiano.

Entretanto, a posição de  $I_{S_{1PA}}$  em relação aos máximos de intensidade dos feixes varia dependendo da potência de cada feixe, bem como da concentração da amostra utilizada.

Na Figura 31 observamos que os feixes Gaussiano e super-Gaussiano são constituídos por regiões de intensidade que se encontram acima e abaixo do limiar de intensidade de saturação de absorção de 1 fóton,  $I_{S_{1PA}}$ . Isso significa que ambos os feixes podem sofrer (em diferentes regiões) absorção de 1 fóton,  $\alpha_0$ , (nas bordas) e absorção saturada de 1 fóton,  $\frac{\alpha_0}{1+I/I_{S_{1PA}}}$ , (na parte central). Tal diferença faz com que os padrões de *speckles* gerados pelos de intensidade Gaussiano e super-Gaussiano apresentem aumento na função de autocorrelação, como podemos observar nas Figuras 28 e 29. Também, pode-se observar que essa diferença entre as regiões que sofrem 1PA e saturação de 1PA é menos marcante no feixe super-Gaussiano em relação ao Gaussiano. Contudo, no feixe com perfil de intensidade do tipo *top-hat*, é possível observar que todo o perfil fica abaixo do limiar de intensidade de saturação de 1PA,  $I_{S_{1PA}}$ . Assim, como os *speckles* têm intensidade distribuída uniformemente, todos eles sofrem apenas a absorção de 1 fóton. Mencionamos novamente que o perfil de *top-hat* pode estar por cima da intensidade de saturação  $I_{S_{1PA}}$ , porém seguindo o mesmo raciocínio, todos os *speckles* sofreram o efeito de absorção saturada de 1 fóton, com a mesma intensidade para todos. Portanto, a diferença no estudo usando o padrão de *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat* é que todos os *speckles* passam apenas por um tipo de absorção, seja a 1PA ou saturação de 1PA.

Figura 31 – Representação dos fenômenos de absorção que sofrem os feixes Gaussiano (curva preta), super-Gaussiano (curva azul) e top-hat (curva vermelha). As expressões representam as regiões com coeficiente de absorção linear,  $\alpha_0$ , absorção saturada de 1 fóton  $\frac{\alpha_0}{1+I/I_{S\_1PA}}$  e limiar de intensidade de saturação  $I_{S\_1PA}$ .

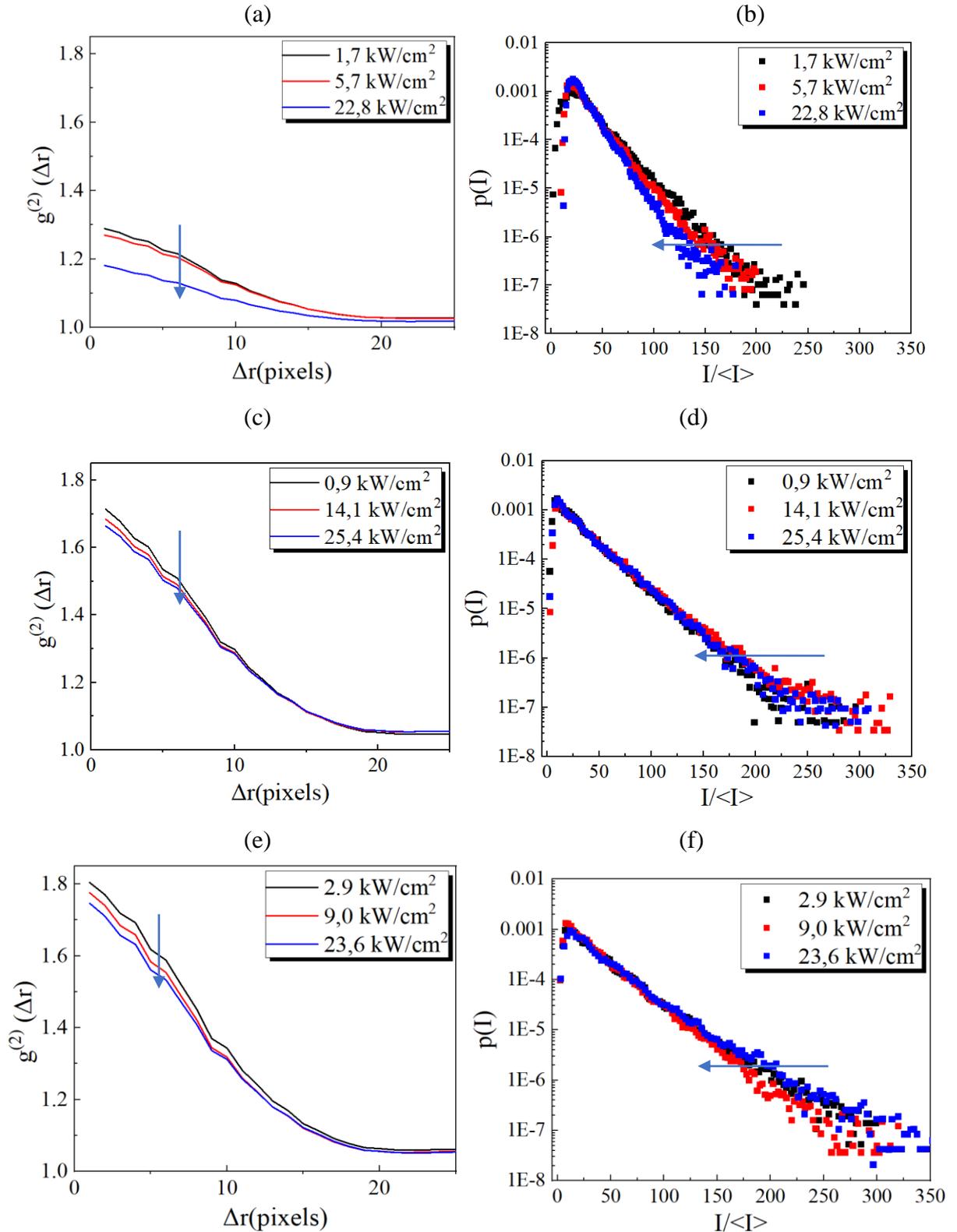


Fonte: Autora (2022)

Por fim, a estatística dos padrões de *speckles* gerados a partir do feixe do tipo *top-hat*, e propagados no corante LDS722 nas concentrações de 0,062 mM; 0,046 mM e 0,031 mM são mostrados na Figura 32. As larguras das curvas mostram um tamanho médio dos *speckles* de  $S \approx 18$  pixels e uma diminuição nos máximos das curvas de autocorrelação,  $g^{(2)}(\Delta r)$ , à medida em que a intensidade do feixe incidente foi aumentada [Figuras 32(a), (c) e (e)]. Esse comportamento é oposto ao obtido para os padrões de *speckles* com envoltória Gaussiano e super-Gaussiano, discutidos anteriormente, mas está de acordo com os resultados obtidos por Bromberg et al. para um meio autodesfocalizador (BROMBERG et al., 2010). É importante ressaltar que assim como nos dois casos anteriormente discutidos, o padrão de *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat* também sofre com a absorção no meio de propagação. Porém, por se tratar de um padrão com intensidades distribuídas uniformemente no seu topo, seus *speckles* são afetados por apenas um tipo de absorção, seja uma absorção de 1 fóton ou uma absorção saturada de 1 fóton, dependendo se a intensidade incidente for menor ou maior ao limiar de intensidade de saturação,  $I_{S\_1PA}$  (veja a representação da Figura 31). Isso significa que as mudanças nas curvas de  $g^{(2)}(\Delta r)$  são principalmente devido ao comportamento de autodesfocalização do meio não linear, tendo em vista que a absorção afeta todos os *speckles* por igual.

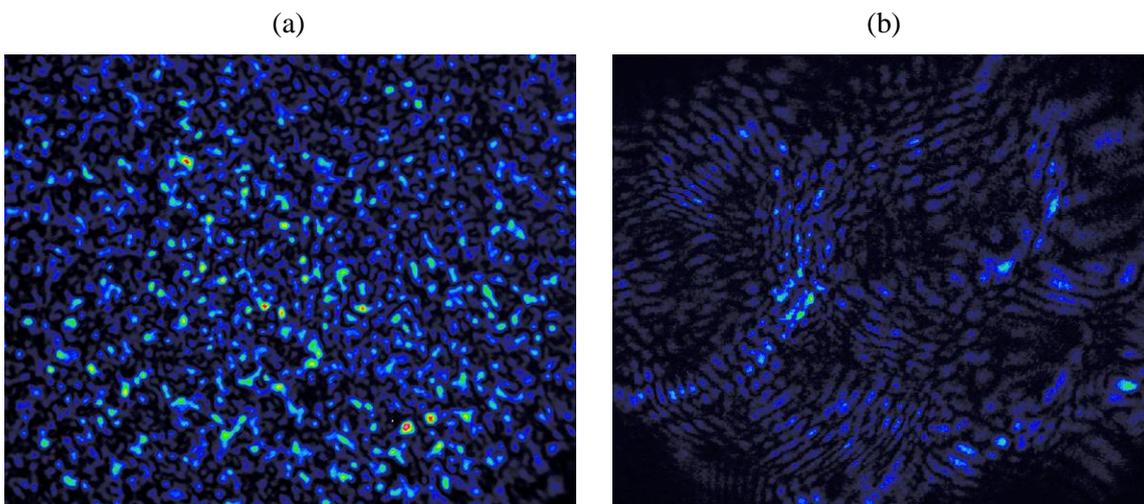
Além disso, as funções densidade de probabilidade,  $p(I)$ , mostradas nas figuras 31(b), (d) e (f) também apresentaram resultados de acordo com o relatado por Bromberg et al. Neste caso, com o aumento da intensidade do feixe incidente foi medido uma diminuição nos valores de intensidade atingidos no padrão de *speckles*. Esse comportamento é causado pela autodesfocalização induzida pelo meio não linear que produz que a divergência dos *speckles* apresente uma distribuição de intensidade cada vez mais próxima da intensidade média (predominante em todo o padrão) afastando-se, assim, das mais altas intensidades.

Figura 32 – Análises estatísticas das funções de (a, c, e) autocorrelação,  $g^{(2)}$ , e (b, d, f) densidade de probabilidade,  $p(I)$ , dos padrões speckles com envoltória de intensidade top-hat após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM; (c, d) 0,046 mM e (e, f) 0,031 mM. As setas nos gráficos representam o incremento da intensidade incidente.



Com o intuito de garantir que o comportamento estatístico observado para a propagação dos padrões de *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat*, que mostra uma diminuição das curvas de  $g^{(2)}$  com o aumento da intensidade, não muda com a área de iluminação do difusor, o elemento rugoso foi colocado no telescópio formado pelas lentes  $L_3$  e  $L_4$  da Figura 28. Neste caso, uma área de iluminação menor do difusor causa uma maior correlação entre os pontos vizinhos do padrão de *speckles* gerado. Essa última metodologia é mais próxima da adotada pelo Bromberg et al., que na sua configuração experimental explora uma área pequena do difusor. A Figura 33 mostra uma comparação entre os padrões de *speckles* gerados quando o difusor é posicionado dentro ou fora do telescópio.

Figura 33 – Padrões de *speckles* gerados por transmitir um feixe com perfil de intensidade *top-hat* por um difusor de luz posicionado (a) fora do telescópio (área de iluminação grande) e (b) dentro do telescópio (área de iluminação pequena).

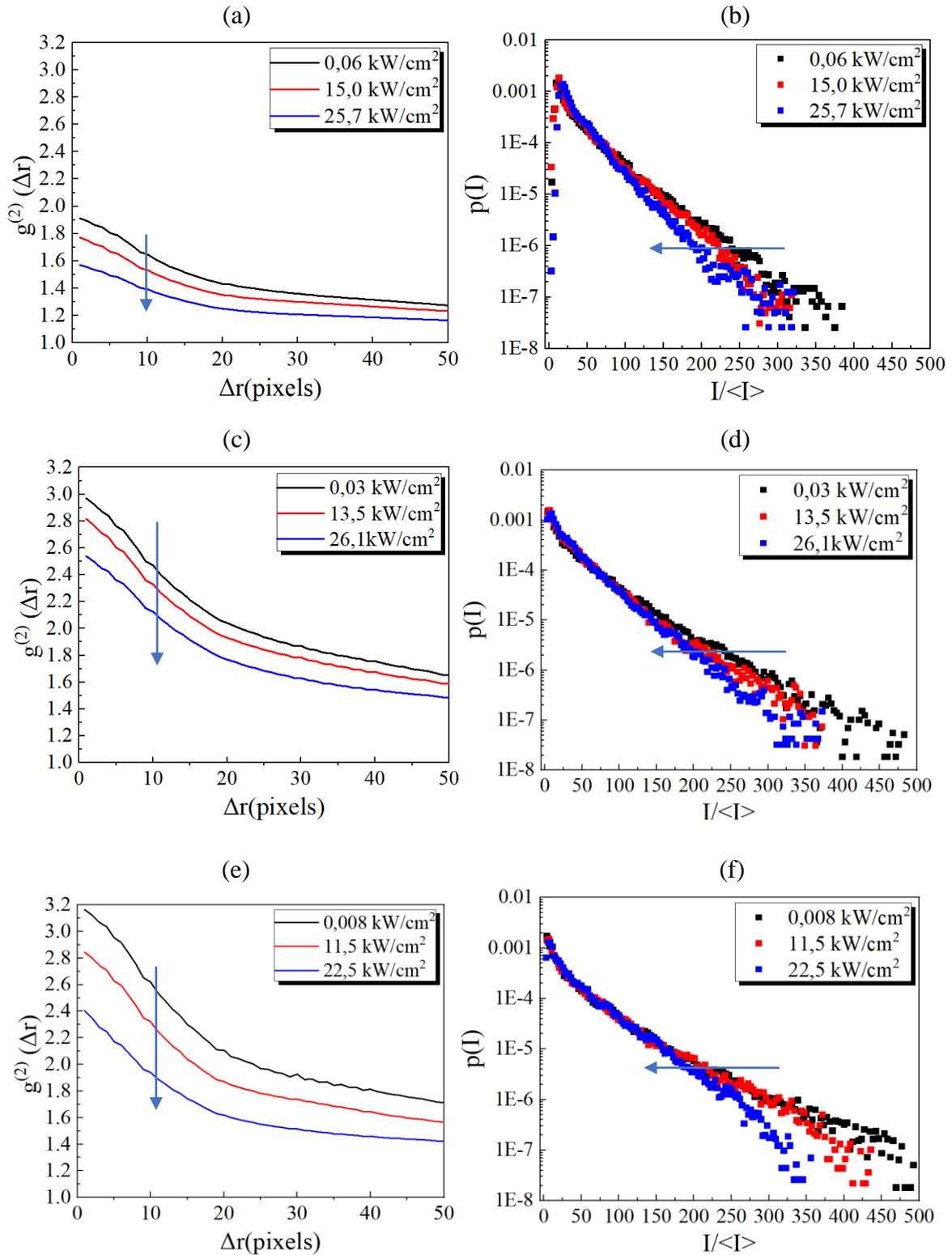


Fonte: Autora (2022)

Nas figuras 34(a), (c) e (e), para a nova condição de geração do padrão de *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat* iluminando uma área pequena do difusor, também é observado a diminuição das curvas de  $g^{(2)}$  com o aumento da intensidade incidente. Similarmente, é possível ver, para as três concentrações diferentes, que a distribuição de densidade de probabilidade,  $p(I)$ , mostradas nas Figuras 34(b), (d) e (f) apresentam uma redução na probabilidade de encontrarmos pontos de intensidades mais altas à medida em que é aumentada a intensidade incidente. Logo, a diminuição das curvas de  $g^{(2)}$  junto ao estreitamento da função densidade de probabilidade,  $p(I)$ , são o resultado dos efeitos não

lineares induzidos pelo meio durante a propagação dos padrões de *speckles*, corroborando os resultados reportados em (BROMBERG et al., 2010).

Figura 34 – Análises estatísticas das funções de (a, c, e) autocorrelação,  $g^{(2)}$ , e (b, d, f) densidade de probabilidade,  $p(I)$ , dos padrões *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat* (com uma área de iluminação pequena do difusor) após a propagação no corante LDS722 diluído em etanol nas concentrações de (a, b) 0,062 mM; (c, d) 0,046 mM e (e, f) 0,031 mM.



Fonte: Autora (2022)

#### 4.3.2 Propagação dos padrões de *speckles* para intensidades altas ( $I > 30 \text{ kW/cm}^2$ )

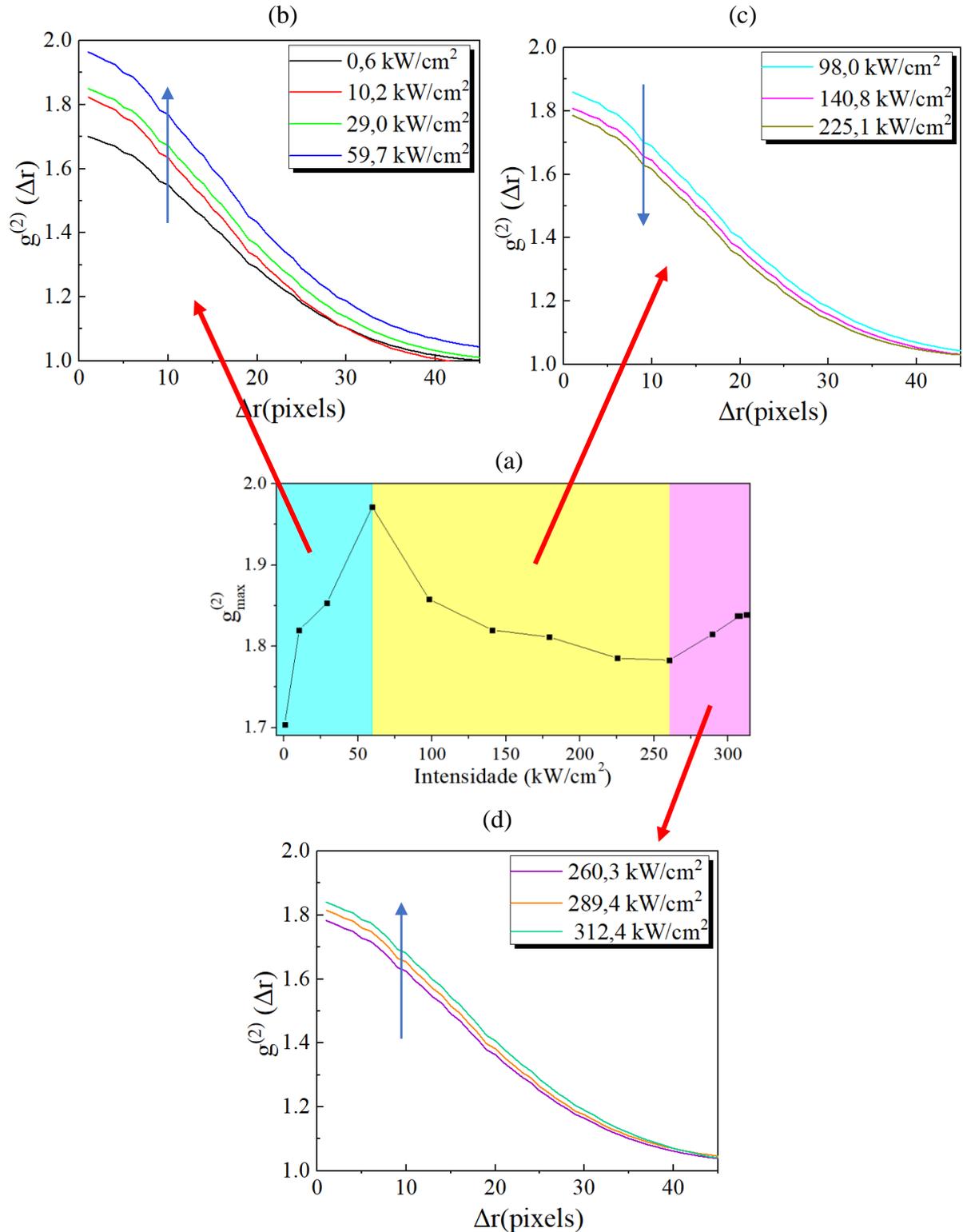
Com o objetivo de estudar a influência do fenômeno de absorção de 2 fótons e absorção saturada de 2 fótons, além da saturação de 1PA, sobre a estatística dos padrões de *speckles* propagados no meio não linear foram realizados estudos para intensidades incidentes maiores que  $30 \text{ kW/cm}^2$ . A figura 35 mostra as medidas de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , obtidas para os padrões de *speckles*, com envoltória de intensidade Gaussiano, que se propagam no corante LDS722 diluído em etanol, na concentração de  $0,031 \text{ mM}$ . Na faixa de intensidades estudadas, entre  $1 \text{ kW/cm}^2$  e  $320 \text{ kW/cm}^2$ , foi possível observar que os valores máximos das funções de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , mostram comportamentos que, em função da intensidade incidente, podem ser divididos em três regimes de estudo, que podem ser relacionados a três processos de absorção não linear diferentes. O primeiro regime ocorre para intensidades menores que  $60 \text{ kW/cm}^2$ , onde o processo de absorção saturada de 1 fóton (1PA) é dominante. Neste regime, como discutido na seção anterior para os padrões de *speckles* com envoltória de intensidade Gaussiano, os máximos das curvas de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , aumentam com o incremento da intensidade incidente. Como já discutido, esse comportamento ocorre porque diferentes regiões dos *speckles* sofrem diferentes fenômenos de absorção: 1PA nas regiões de intensidades mais baixas dos *speckles* (nas bordas), e uma saturação da 1PA para as regiões de maior intensidade (parte central do *speckles*).

No segundo regime, a estatística é estudada para intensidades entre  $60$  e  $260 \text{ kW/cm}^2$ . Neste caso, a intensidade é alta o suficiente para estimular o meio a absorver dois fótons simultaneamente. Desta forma, como discutido na seção 3.5.2, surge o fenômeno de absorção de 2 fótons, expressado pelo coeficiente de absorção não linear,  $\alpha_2$ . A consequência do fenômeno de 2PA é que os máximos das curvas de autocorrelação sofrem uma diminuição. Contrário ao fenômeno de saturação de 1PA, na 2PA (sem saturação) as regiões de maior intensidade dos *speckles* (parte central) são absorvidos com maior intensidade em comparação as regiões menos intensas (bordas). Portanto, a 2PA tende a diminuir o contraste da imagem, resultando numa diminuição da função de autocorrelação,  $g^{(2)}$ .

Por fim, para intensidades entre  $260$  e  $320 \text{ kW/cm}^2$ , as curvas de  $g^{(2)}$  passam a apresentar valores máximos que aumentam com a intensidade do feixe incidente. Esse terceiro regime está associado com o fenômeno de saturação da absorção de 2 fótons, que foi caracterizado na seção 3.5.2 para as intensidades maiores. Similar ao fenômeno de saturação de

1PA, a saturação de 2PA permite uma maior transmissão de luz na região mais intensa dos *speckles*, enquanto as regiões menos intensas (bordas) serão afetadas ainda pela 2PA (sem saturação). Logo, como na primeira região de intensidades estudada, um aumento das funções de correlação é esperado com o aumento da intensidade incidente. A figura 35 também mostra as funções de correlação obtidas para cada região de intensidade.

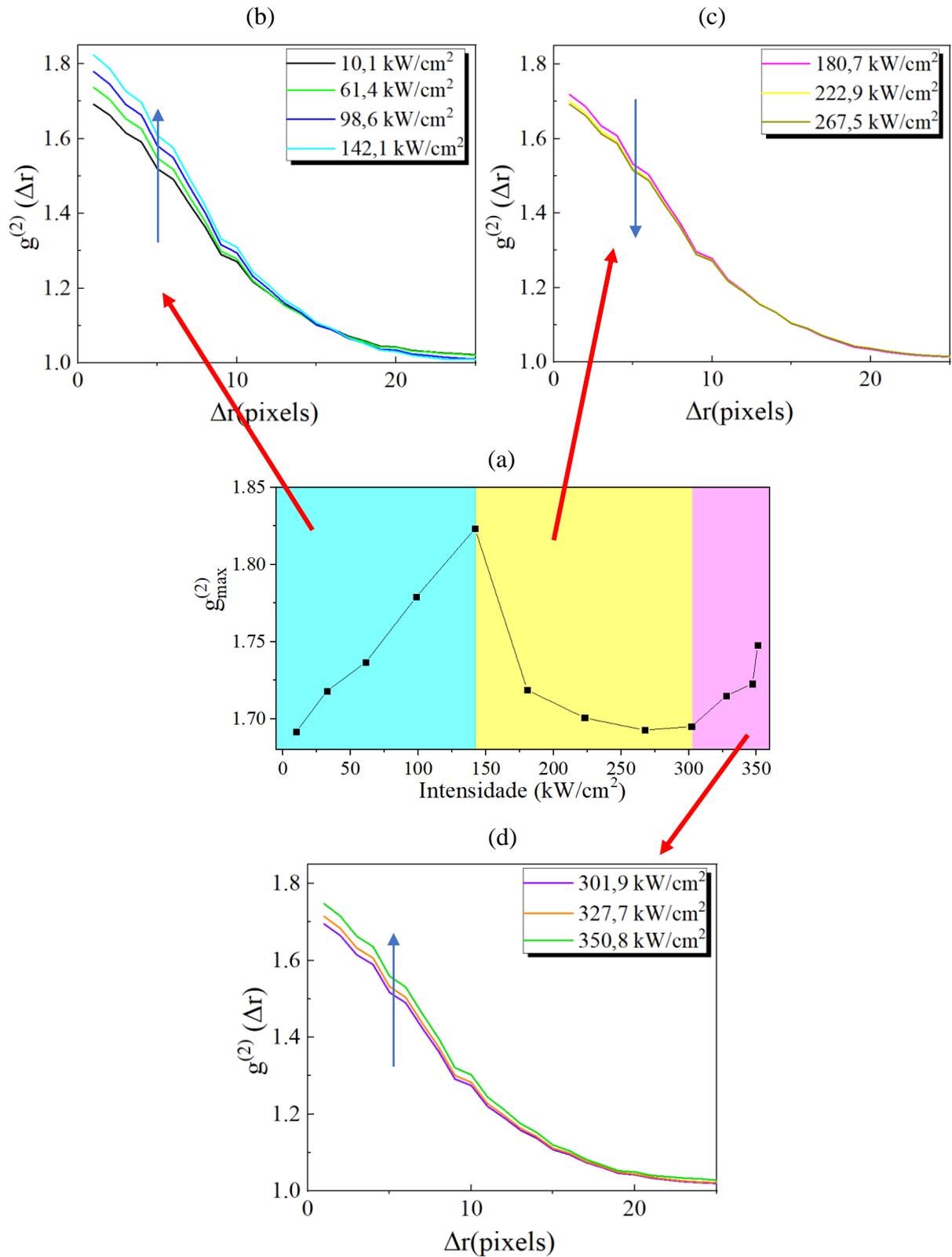
Figura 35 – (a) Valores máximos das funções de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , em função da intensidade incidente, para um padrão de speckles com envoltória de intensidade Gaussiano propagando-se no corante LDS722 (0,031 mM). Funções de correlação correspondentes aos três regimes de intensidade destacados na figura (a), onde o efeito dominante corresponde à: (b) saturação de 1PA (região azul); (c) 2PA (região amarela) e (d) saturação da 2PA (região rosa).



O mesmo estudo foi realizado para a propagação dos padrões de *speckles* com envoltória de intensidade super Gaussiano. A figura 37 mostra que os fenômenos de absorção não linear de saturação de 1PA, 2PA e saturação de 2PA também são evidentes na propagação deste tipo de padrões de *speckles*, quando os máximos da função de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , são analisados. Porém, podemos ver que a variação entre os valores máximos de  $g^{(2)}$  não é tão grande quanto o da figura 35. Isto pode ser relacionado ao perfil de intensidade do feixe que gera o padrão de *speckles*, pois o perfil do feixe super-Gaussiano apresenta uma queda rápida nas bordas, diferente do feixe Gaussiano, que apresenta uma queda suave. Essa queda rápida nas bordas do feixe super-Gaussiano faz com que os *speckles* não mostrem variações tão grandes na sua distribuição de intensidades. Portanto, a diferença entre as regiões dos *speckles* que sofrem diferentes fenômenos de absorção são menores que os *speckles* gerados com envoltória Gaussiano.

O estudo para a propagação dos padrões de *speckles* com envoltória de intensidade *top-hat* não apresenta variações para as diferentes regiões de intensidade onde os fenômenos de saturação de 1PA, 2PA e saturação de 2PA são dominantes. Isto ocorre porque a distribuição de intensidades dos *speckles* é uniforme, de tal forma que todos os *speckles* são submetidos apenas a um único fenômeno de absorção não linear por vez.

Figura 36 – (a) Valores máximos das funções de autocorrelação,  $g^{(2)}$ , em função da intensidade incidente, para um padrão de speckles com envoltória de intensidade super-Gaussiano propagando-se no corante LDS722 (0,031 mM).

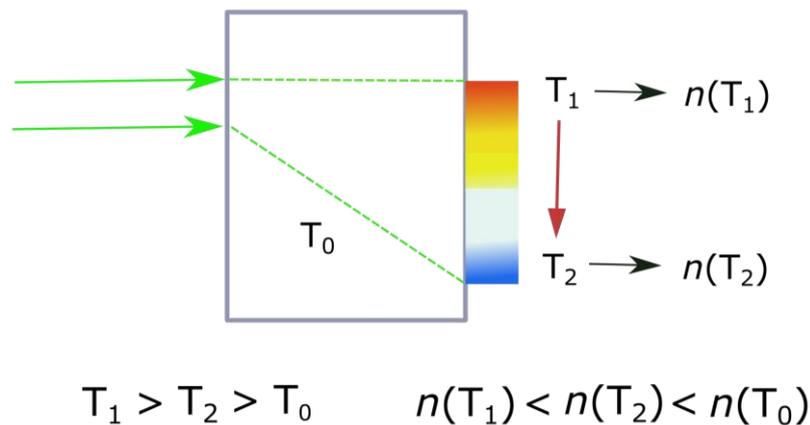


#### 4.4 ANÁLISE DA AUTODEFLEXÃO (SELF-DEFLECTION OR SELF-BENDING) EM PADRÕES DE SPECKLES

Os estudos realizados na seção anterior foram concentrados, na sua maioria, na influência dos efeitos de absorção não linear sob a estatística dos padrões de *speckles* propagados no corante LDS722. Entretanto, a forte absorção (linear ou não linear) de radiação contínua (CW) do corante induz uma modulação da temperatura dentro (e ao redor) da região iluminada na amostra. Assim, o índice de refração do meio,  $n$ , varia em função da temperatura induzida,  $T$ , da seguinte forma:  $n = n_0 + \frac{dn}{dT}(T - T_0)$ , onde  $n_0$  é o índice de refração linear do meio na temperatura  $T_0$ , sendo na maioria dos casos a temperatura ambiente (SHELDON, 1982). Nessa equação, a variação de temperatura está relacionada com a intensidade do feixe incidente que induz o aumento da temperatura por absorção. Desta forma, quanto maior a intensidade incidente, maior o valor de  $(T - T_0)$ . Baseado nisso, a equação do índice de refração também pode ser escrita como:  $n = n_0 + n_2 I$ , com  $n_2 \propto \frac{dn}{dT}$ , como já discutido na seção 2.3.4.

Nos experimentos discutidos nesta dissertação, a direção de propagação dos feixes ocorre no eixo horizontal (eixo  $z$ ), portanto um gradiente de temperatura vertical é formado no líquido (corante LDS722 diluído em etanol). A Figura 36 mostra uma representação do gradiente de temperatura induzido no meio, onde intensidades (ou temperaturas) maiores são alcançadas na altura definida pelo eixo de propagação, e as intensidades (ou temperaturas) diminuem para alturas abaixo do eixo de propagação. Ou seja,  $T_1 > T_2 > T_0$ . Como o meio não linear utilizado corresponde a um meio autodesfocalizador ( $n_2 < 0$ ), o índice de refração total (linear + não linear) induzido no meio é menor no eixo de propagação que abaixo dele. Ou seja,  $n(T_1) < n(T_2)$ . Essa mudança no índice de refração total do meio causa a deflexão (ou desvio da direção) do feixe para as regiões com maior índice de refração (abaixo do eixo de propagação). Como a deflexão do feixe é causado pela intensidade do próprio feixe, o efeito é chamado de autodeflexão (ou em inglês, *self-deflection or self-bending*).

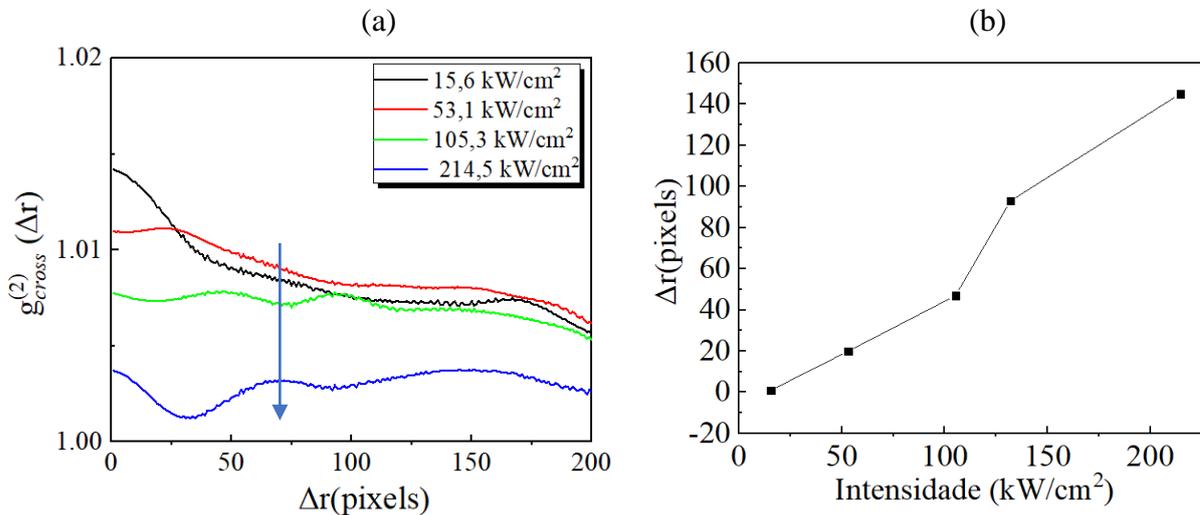
Figura 37 – Representação do gradiente de temperatura e índice de refração induzido num material autodesfocalizador.



Fonte: Autora (2022)

Nesta dissertação, o efeito de autodeflexão induzido nos padrões de *speckles* é medido através de funções de correlações cruzadas,  $g_{cross}^{(2)}$ , calculadas a partir de padrões propagados com duas intensidades incidentes diferentes. O primeiro padrão, chamado de referência, foi obtido ao propagar o padrão de *speckles* no regime linear, ou seja, para uma intensidade incidente muito baixa ( $1,0 \text{ kW/cm}^2$ ) de forma a não induzir o efeito de autodeflexão. O segundo padrão, usado para a análise de correlação cruzada, foi de um padrão de *speckles* propagado com alta intensidade em regime não linear. Assim, a comparação entre o padrão de referência e as mudanças sofridas com o padrão no regime não linear é estudada a partir da função de  $g_{cross}^{(2)}$ . A Figura 38(a) mostra o resultado das funções de correlação cruzada obtidos para padrões de *speckles*, gerados com envoltória de intensidade Gaussiano, em função da intensidade incidente no padrão propagado no regime não linear. Os resultados obtidos mostram que para cada correlação cruzada surge uma nova posição dos máximos de  $g_{cross}^{(2)}$ . Para facilitar a observação, a Figura 38(b) mostra os valores de  $\Delta r$  para os quais foi encontrado os máximos de  $g_{cross}^{(2)}$ , para todas as intensidades incidentes. Nestas condições é possível ver que os máximos de  $g_{cross}^{(2)}$  deslocam-se para  $\Delta r$  maiores à medida em que a intensidade é aumentada.

Figura 38 – (a) Funções de correlação cruzada,  $g_{cross}^{(2)}$ , obtidas a partir dos experimentos de propagação de padrões de speckles, com envoltória de intensidade Gaussiano, no corante LDS722 diluído em etanol para uma concentração de 0,062mM. (b) Valores de  $\Delta r$  para os quais foi encontrado os máximos de  $g_{cross}^{(2)}$  em função da intensidade incidente.

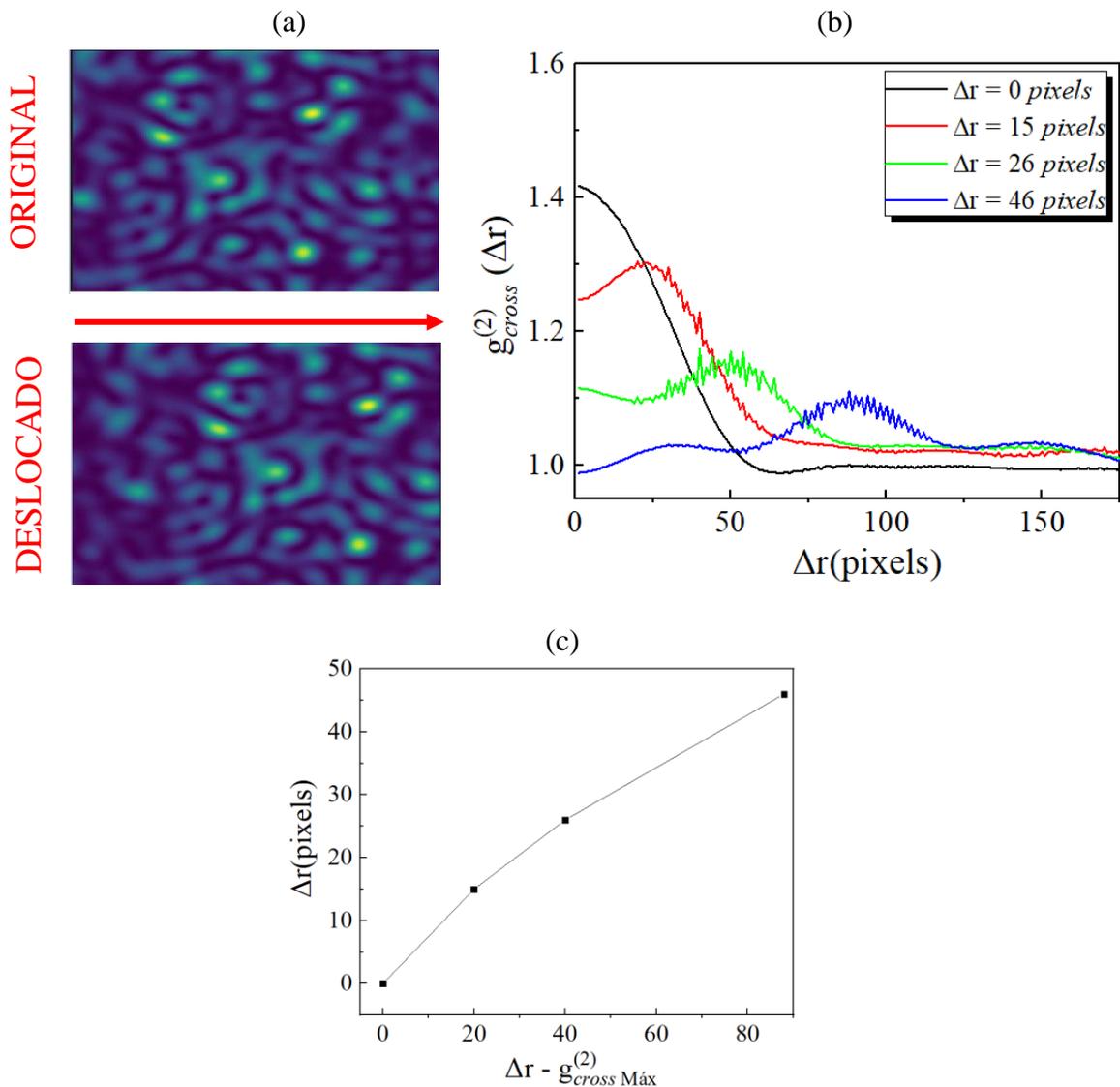


Fonte: Autora (2022)

Para entender o deslocamento do máximo das curvas de  $g_{cross}^{(2)}$  é necessário deixar claro que o valor máximo de uma correlação (seja autocorrelação ou correlação cruzada) acontece quando na análise são comparados dois pontos dentro do padrão, separados por uma distância  $\Delta r$ , que tenham as mesmas características. Então, se comparamos dois padrões de *speckles* idênticos, o máximo da função de correlação ocorrerá para  $\Delta r = 0$ , pois a comparação estaria sendo feita entre um ponto com ele mesmo. Como podemos observar na Figura 38(a), para a intensidade de 15,1 kW/cm<sup>2</sup>, o máximo de  $g_{cross}^{(2)}$  ocorre para  $\Delta r \rightarrow 0$ , indicando que a posição do padrão de *speckles* nessa intensidade não sofre deslocamento em relação ao padrão de referência. Também podemos ver que com o aumento de  $\Delta r$  a  $g_{cross}^{(2)}$  diminui até obter valores mínimos, que representam dois pontos dentro de um padrão com características diferentes. Entretanto, para intensidade maiores, podemos ver que o máximo de  $g_{cross}^{(2)}$  é deslocado para valores de  $\Delta r > 0$ . Podemos entender o resultado como uma indicação que os padrões de *speckles* estão se deslocando (ou seja, sofrendo uma autodeflexão devido ao gradiente de índice de refração causado pelas mudanças na temperatura da amostra) à medida em que se aumenta a intensidade do feixe incidente. Desta forma, o valor máximo de  $g_{cross}^{(2)}$  ocorrerá quando o  $\Delta r$  coincidir com o deslocamento do padrão, pois é nesta distância de separação que encontraremos novamente a condição de dois pontos com as características similares (ou próximas entre si).

Para fortalecer nossa explicação, foi realizado uma simulação numérica para calcular a função de correlação cruzada de dois padrões de *speckles* idênticos, porém que foram deslocados, por uma distância específica, um em relação ao outro, como mostrado na figura 39(a). O cálculo das funções de correlação cruzada é mostrado na Figura 39(b) para deslocamentos de 0, 15, 26 e 46 pixels ao longo do eixo horizontal. Como podemos ver os máximos das curvas de  $g_{cross}^{(2)}$  ocorrem nos valores de  $\Delta r$  dados pelo deslocamento dos padrões. Cabe mencionar que o resultado é o mesmo para deslocamentos dos padrões de *speckles* feitos em qualquer direção.

Figura 39 – (a) Padrões de speckles obtidos numericamente e deslocados uma distância de 46 pixels no eixo horizontal. (b) Cálculo das funções de correlação cruzada,  $g_{cross}^{(2)}$ , para os padrões da figura (a) com deslocamentos de 0, 15, 26 e 46 pixels. (c) Valores de  $\Delta r$  em função da posição dos máximos de  $g_{cross}^{(2)}$ .



Podemos observar nas Figuras 38(a) e 39(b) que as curvas de  $g_{cross}^{(2)}$  alcançam valores bem maiores na simulação que no experimento. Isto ocorre porque na simulação são comparados dois espectros idênticos, sendo eles apenas deslocados. Porém, no experimento, os espectros, além do deslocamento, sofrem os efeitos de autodesfocalização e absorção não linear de cada um dos *speckles*, resultando em padrões diferentes no regime linear (referência) e não linear.

É importante mencionar que as simulações mostradas na Figura 39 servem apenas para demonstrar a hipótese que o deslocamento dos padrões de *speckles* produz variações nos valores de  $\Delta r$  para os quais são encontrados os valores máximos de  $g_{cross}^{(2)}$ . Nestas condições é possível ver que os máximos de  $g_{cross}^{(2)}$  deslocam-se para  $\Delta r$  maiores à medida em que a intensidade é aumentada. Entretanto, uma teoria (ou simulações numéricas) sobre a propagação não linear de padrões de *speckles* é necessária para encontrar as relações entre os deslocamentos dos valores máximos de  $g_{cross}^{(2)}$  e o índice de refração não linear,  $n_2$ , causado pelo gradiente térmico,  $\frac{dn}{dT}$ . O desenvolvimento dessas teorias são parte das perspectivas de trabalho da presente dissertação.

## 5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

De forma geral, os estudos realizados nesta dissertação mostram como os efeitos ópticos não lineares refrativos, como o de autodesfocalização, bem como de diversos fenômenos de absorção não linear influenciam a interação entre fótons durante a propagação de padrões de *speckles*. Através das análises das funções de densidade de probabilidade e autocorrelação de intensidade é discutido, pela primeira vez na literatura, as variações nas propriedades estatísticas que sofrem os padrões de *speckles* quando se propagam em meios dissipativos que apresentam transições entre os efeitos de absorção saturada de 1 fóton, absorção de 2 fótons e absorção saturada de 2 fótons. Já a influência do índice de refração não linear sobre a propagação dos padrões de *speckles* foi estudada através da função de correlação cruzada de intensidade, a qual permitiu caracterizar o efeito de autodeflexão de luz. Assim, o estudo das propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* se revelou com uma ferramenta interessante para descrever a propagação não linear de padrões de luz incoerentes.

De forma específica, os trabalhos experimentais foram iniciados com a caracterização da resposta óptica não linear do corante LDS722 diluído em etanol, escolhido como meio não linear de propagação dos padrões de *speckles*. A caracterização não linear foi realizada usando a técnica de Varredura Z, para três concentrações diferentes. No esquema de fenda aberta foi possível observar a contribuição dos fenômenos de absorção saturada de 1 fóton, absorção de 2 fótons e absorção saturada de 2 fótons em função da intensidade incidente. Fazendo o ajuste das curvas foi obtido os coeficientes de absorção não linear e as intensidades de saturação para cada efeito. Desta forma foi possível distinguir as regiões de intensidade onde cada efeito é dominante, o que permitiu estudar a influência de cada fenômeno durante a propagação dos padrões de *speckles*.

Na sequência, o arranjo experimental para a geração de padrões de *speckles* foi montado. Nesta dissertação optamos por gerar padrões de *speckles* distintos, através da transmissão por um difusor de luz de três diferentes tipos de feixes: feixe com perfil de intensidade Gaussiano, super Gaussiano e *top-hat*. Desta forma, os padrões de *speckles* gerados carregam uma envoltória de intensidade com bordas suaves (Gaussiano), menos suaves (super Gaussiano) ou abruptas (*top-hat*). A diferença na envoltória de intensidade permite que os *speckles*, durante sua propagação, sejam afetados por um ou mais efeitos de absorção não linear simultaneamente e para caracterizar as propriedades estatísticas de todos os padrões de *speckles* foram analisadas as funções de correlação espacial de intensidade e as funções densidade de probabilidade.

Após a geração e caracterização dos padrões de *speckles* iniciou-se o estudo da propagação não linear no regime de intensidades incidentes moderadas ( $1 \text{ kW/cm}^2 < I < 30 \text{ kW/cm}^2$ ). Neste regime, o efeito de absorção não linear dominante é a absorção saturada de 1 fóton. Para o caso dos padrões de *speckles* gerados com a envoltória de intensidade *top-hat*, as funções de autocorrelação apresentam uma diminuição do seu valor máximo à medida que a intensidade do feixe aumenta. Este comportamento é reportado na literatura e atribuído a materiais autodesfocalizadores (BROMBERG et al., 2010). No entanto, um comportamento contrário é observado para os padrões de *speckles* gerados com a envoltória de intensidade Gaussiano e Super-Gaussiano, na qual as funções de autocorrelação apresentam um aumento do seu valor máximo à medida que a intensidade do feixe aumenta. Essa diferença entre as propriedades estatísticas dos padrões de *speckles* é devido às implicações da resposta óptica absorptiva do meio não linear. Enquanto nos padrões de *speckles* com envoltória de intensidade Gaussiano e super Gaussiano, o feixe é sujeito a processos de absorção de 1 fóton (bordas dos *speckles*) e absorção saturada de 1 fóton (centro dos *speckles*) simultaneamente devido ao perfil de intensidade apresentar bordas suaves, no padrão com envoltória de intensidade *top-hat*, os *speckles* são sujeitos apenas a um único processo de absorção, seja o de 1PA ou da saturação de 1PA. Portanto, concluímos que além do efeito de autodesfocalização, os processos de absorção não linear podem modificar as propriedades estatísticas da propagação dos padrões de *speckles*, em concordância com (ALVES et al., 2019).

Devido ao meio não linear escolhido apresentar diferentes fenômenos de absorção não linear, em diferentes regiões de intensidade, a influência na propagação dos padrões de *speckles* devido as transição dos fenômenos de absorção saturada de 1 fóton, absorção de 2 fótons e absorção saturada de 2 fótons foi estudada em intensidades de excitação de até  $320 \text{ kW/cm}^2$ . Neste caso, foi percebido que padrões de *speckles* gerados com a envoltória de intensidade Gaussiano e super Gaussiano apresentaram mudanças nas funções de autocorrelação que podem ser divididas em três regiões diferentes, associadas aos efeitos de absorção não linear dominantes. A primeira região é aquela em que ocorre absorção de 1 fóton, nas regiões de menor intensidade do *speckles* (bordas), e absorção saturada de 1 fóton nas regiões de maior intensidade dos *speckles* (parte central), apresentando um aumento nas curvas de autocorrelação com o aumento da intensidade (até  $60 \text{ kW/cm}^2$ ). A segunda região observada, para intensidades entre  $60$  e  $260 \text{ kW/cm}^2$ , corresponde à dominância da absorção de 2 fótons (2PA), onde as curvas de autocorrelação apresentam, dessa vez, seus valores máximos decrescendo com o aumento da intensidade do feixe. Finalmente, a terceira região, para

intensidades entre 260 e 320 kW/cm<sup>2</sup>, apresenta um novo fenômeno de saturação, desta vez da absorção de 2 fótons, e as curvas de autocorrelação voltam a apresentar um crescimento com o aumento da intensidade do feixe incidente. Uma vez mais é possível afirmar que a influência dos diferentes fenômenos de absorção não linear se mostram presentes na estatística de propagação dos padrões de *speckles*, e que os diferentes tipos de perfil de intensidade dos feixes podem sofrer diferentes influências dos efeitos de absorção não linear. Portanto os estudos desta dissertação pretendem incrementar os conhecimentos sobre a propagação não linear de padrões de *speckles* que existe na literatura.

Ainda mais, com o entendimento da influência dos efeitos não lineares sobre a propagação dos padrões de *speckles*, os estudos realizados nesta dissertação também permitiram propor uma metodologia para verificar o efeito de autodeflexão induzido pela modulação do índice de refração no meio não linear gerado pelo gradiente de temperatura induzido pela intensidade do feixe propagado. Portanto, a partir das análises das funções de correlação cruzada, entre padrões de *speckles* propagados no regime linear (baixa intensidade) e não linear (alta intensidade), foi possível medir os deslocamentos que os *speckles* sofrem durante sua propagação. Uma simulação simples que corrobora a observação experimental foi obtida a partir do cálculo da correlação cruzada entre 2 padrões de *speckles* deslocados um do outro numericamente. Essa proposta abre novos caminhos para o desenvolvimento de técnicas de caracterização da resposta óptica não linear de diversos meios, usando padrões de *speckles*.

Nesta dissertação, os efeitos de absorção do meio conduziram a uma resposta não linear refrativa dominada por efeitos térmicos. Porém, como perspectivas do trabalho, podemos propor o estudo da propagação de padrões de *speckles* em meios cuja resposta não linear seja rápida ou ultrarrápida, como os efeitos eletrônicos. Além disso, pretende-se continuar os estudos para que a metodologia de análise das funções de correlação cruzada, usando padrões de *speckles*, seja implementada como uma nova técnica de determinação do índice de refração não linear de diversos materiais.

## REFERÊNCIAS

- AGRAWAL, G. P. **Nonlinear Fiber Optics - Optics and Photonics**. 3. ed. New York: Academic Press, 2001.
- AKHMANOV S. A. et al. Thermal Self-Actions of Laser Beams. **IEEE J. Quantum Electron**, p. 568 – 575, 1968. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/stamp/stamp.jsp?tp=&arnumber=1074930>. Acesso em 6 dez. 2022.
- ALDA, J. **Encyclopedia of Optical Engineering**. New York: Marcel Dekker, 2003.
- ALVES, S. B., et al. Controlling the intensity statistics of speckle patterns: From normal to subthermal or superthermal distributions. **Physics Review A**, v. 99, 2019. Disponível em: <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.99.033838>. Acesso em 22 nov. 2022.
- AMARAL, Anderson M., et al.  $D_4\sigma$  curves described analytically through propagation analysis of transverse irradiance moments. **Optics Letters**, v. 41, n. 9, p. 2081 – 2084, 2016. Disponível em: <https://opg.optica.org/ol/abstract.cfm?uri=ol-41-9-2081>. Acesso em: 12 jan. 2022.
- ASHWELL, G. J., et al. Molecular rectification: Self-assembled monolayers in which donor- $(\pi$ -bridge)-acceptor moieties are centrally located and symmetrically coupled to both gold electrodes. **Journal of the American Chemical Society**, v. 126, p. 7102-7110, 2004. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/ja049633u>. Acesso em: 25 ago. 2022.
- ASTRATH, N.G.C., et al. Top-hat cw laser induced thermal mirror: a complete model for material characterization, **Applied Physics B**, v. 94, p. 473-481, 2008. Disponível em: [https://www.academia.edu/78553538/Top\\_hat\\_cw\\_laser\\_induced\\_thermal\\_mirror\\_a\\_complete\\_model\\_for\\_material\\_characterization](https://www.academia.edu/78553538/Top_hat_cw_laser_induced_thermal_mirror_a_complete_model_for_material_characterization). Acesso em: 15 ago. 2022.
- AUSTIN, D. H. **Picosecond nonlinear optics**. New York: Springer-Verlag, 1977. Disponível em: [https://link.springer.com/content/pdf/10.1007/3-540-13493-X\\_18.pdf](https://link.springer.com/content/pdf/10.1007/3-540-13493-X_18.pdf). Acesso em: 15 ago. 2022.
- BAE, Y., et al. Photoacoustic study of two-photon absorption in hexagonal ZnS. **J. Appl. Phys**, v. 53, p. 615–619, 1982. Disponível em: <https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.329967>. Acesso em: 15 dez. 2022.
- BAESSO, M. L., et al. Mode-mismatched thermal lens determination of temperature coefficient of optical path length in soda lime glass at different wavelengths. **Journal of Applied Physics**, v. 75, n. 8, p. 3732–3737, 1994. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/224554373\\_Mode-mismatched\\_thermal\\_lens\\_determination\\_of\\_temperature\\_coefficient\\_of\\_optical\\_path\\_length\\_in\\_soda\\_lime\\_glass\\_at\\_different\\_wavelengths](https://www.researchgate.net/publication/224554373_Mode-mismatched_thermal_lens_determination_of_temperature_coefficient_of_optical_path_length_in_soda_lime_glass_at_different_wavelengths). Acesso em: 13 jul. 2022.
- BASHKANSKY, M.; REINTJES, J. Statistics and reduction of speckle in optical coherence tomography. **Optics Letters**, v. 25, p. 545, 2000. Disponível em: <https://opg.optica.org/ol/abstract.cfm?uri=OL-25-8-545>. Acesso em: 13 dez. 2021.

BIANCHI, S. Vibration detection by observation of speckle patterns. **Applied Optics**, v. 53, n.5, p. 931-936, 2014. **Applied Optics**, v. 53, n.5, p. 931-936, 2014. Disponível em: <https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?uri=ao-53-5-931> Acesso em: 14 dez. 2022.

BOGGESS, T. F., et al. Nonlinear-optical energy regulation by nonlinear refraction and absorption in silicon. **Opt. Lett.**, v. 9, p. 291-293, 1984. Disponível em: <https://opg.optica.org/ol/abstract.cfm?uri=ol-9-7-291>. Acesso em: 23 nov. 2022.

BOUDEBS, G., et al. Nonlinear characterization of materials using the D4 $\sigma$  method inside a Z-scan 4f-system. **Optics Letters**, v. 38, p. 2206-2208, 2013. Disponível em: <https://okina.univ-angers.fr/publications/ua5744/1/ol-38-13-2206.pdf>. Acesso em: 30 nov. 2022.

BOUDEBS, G.; ARAÚJO, C. B. Characterization of light-induced modification of the nonlinear refractive index using a one-laser-shot nonlinear imaging technique. **Appl. Phys. Lett.**, v. 85, p. 3740-3742, 2004. Disponível em: [https://www.academia.edu/25429528/Characterization\\_of\\_light\\_induced\\_modification\\_of\\_the\\_nonlinear\\_refractive\\_index\\_using\\_a\\_one\\_laser\\_shot\\_nonlinear\\_imaging\\_technique](https://www.academia.edu/25429528/Characterization_of_light_induced_modification_of_the_nonlinear_refractive_index_using_a_one_laser_shot_nonlinear_imaging_technique). Acesso em 21 dez. 2021.

BOYD, R.W. **Nonlinear Optics**, 3. ed. New York: Academic Press, 2007. Disponível em: [https://booksite.elsevier.com/samplechapters/9780123694706/Sample\\_Chapters/01~Front\\_Matter.pdf](https://booksite.elsevier.com/samplechapters/9780123694706/Sample_Chapters/01~Front_Matter.pdf) . Acesso em: 24 jun. 2022.

BOYD, R. W. Topical review: Order-of-magnitude estimates of the nonlinear optical susceptibility. **J. Mod. Phys.**, v. 46, p. 367–378, 1999. Disponível em: <https://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/09500349908231277>. Acesso em: 24 jun. 2022.

BROMBERG, Y. et al. Hanbury Brown and Twiss interferometry with interacting photons. **Nature Photonics**, v.4, p. 721-726, 2010. Disponível em: <https://www.nature.com/articles/nphoton.2010.195>. Acesso em: 08 out. 2022.

BUTCHER, P. N.; COTTER, D. **The Elements of Nonlinear Optics**. Cambridge: Cambridge University Press, 1990. Disponível em: <https://www.cambridge.org/core/books/elements-of-nonlinear-optics/F6B3C66E6115CD3DE8F615DF16BBB47C>. Acesso em 20 nov. 2022.

CARTER, C.A.; HARRIS, J.M. Comparison of models describing the thermal lens effect. **Appl. Opt.**, v. 23, p. 476–481, 1984. Disponível em: <https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?uri=ao-23-3-476>. Acesso em: 22 dez. 2021.

CERULLO, G.; S. DE SILVESTRI, Ultrafast optical parametric amplifiers. **Review of scientific instruments**, v. 74, n.1, p. 1-18, 2003. Disponível em: <https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.1523642>. Acesso em: 10 nov. 2021.

CHARRETT, T. O.; TATAM, R. P. Objective speckle displacement: an extended theory for the small deformation of shaped objects. **Optics Express**, v. 22, n. 21, p. 25466-25480, 2014. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/266858454\\_Objective\\_speckle\\_displacement\\_An\\_extended\\_theory\\_for\\_the\\_small\\_deformation\\_of\\_shaped\\_objects](https://www.researchgate.net/publication/266858454_Objective_speckle_displacement_An_extended_theory_for_the_small_deformation_of_shaped_objects). Acesso em: 21 out. 2022.

CREATH, K. Phase-measurement interferometry techniques. **Progress in optics**, v. 26, p. 349–393, 1988. Disponível em: [http://u.arizona.edu/~kcreath/pdf/pubs/1988\\_KC\\_ProgOptXXVI\\_p349-398\\_PMI\\_tech\\_searchable.pdf](http://u.arizona.edu/~kcreath/pdf/pubs/1988_KC_ProgOptXXVI_p349-398_PMI_tech_searchable.pdf). Acesso em: 17 dez. 2021

CRISPIM, M. J. B. S. **IC-scan**: Uma nova técnica para medir o índice de refração não linear de meios espalhadores. 2022. Dissertação (Mestrado em Engenharia Física) – Universidade Federal Rural de Pernambuco, Cabo de Santo Agostinho, 2022. Disponível em: <http://www.tede2.ufrpe.br:8080/tede2/handle/tede2/8588>. Acesso em: 01 jan. 2023.

DEMTRÖDER, W. **Laser spectroscopy**: Basic concepts and instrumentation. 3. ed. New York: Springer, 2003. Disponível em <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-662-08260-7>. Acesso em: 17 nov. 2021.

DUNN, A. K. et al. Dynamic imaging of cerebral blood flow using laser speckle. **Journal of Cerebral Blood Flow & Metabolism**, v. 21, n. 3, p. 195-201, 2001. ISSN 0271-678X. Disponível em: <https://opg.optica.org/oe/fulltext.cfm?uri=oe-17-16-13904&id=183850>. Acesso em 21 nov. 2022.

EEVON, C., et al. Linear and nonlinear optical properties of Gd<sup>3+</sup> doped zinc borotellurite glasses for all-optical switching applications. **Results Phys**, v. 6, p. 761-766, 2016. Disponível em: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2211379716300742>. Acesso em: 12 jun. 2022.

EHRlich, J., et al. Two-photon absorption and broadband optical limiting with bis-donor stilbenes. **Optics Letters**, v. 22, n. 24, p. 1843-1845, 1997. Disponível em: <https://authors.library.caltech.edu/2901/1/EHRol97.pdf>. Acesso em: 17 nov. 2021.

EPELDE-ELEZCANO, N., et al. Preparation, Photophysical Characterization, and Modeling of LDS722/Laponite 2D-Ordered Hybrid Films. **Langmuir**, v. 30, p. 10112-10117, 2014. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/la502081c>. Acesso em: 09 set. 2022.

ESTRADA, D. M. E. **Propagação de feixes ópticos em meios não-lineares**. 2008 Dissertação (Mestrado em Engenharia Eletrotécnica e de Computadores) – Instituto superior técnico - Universidade Técnica de Lisboa, Lisboa, 2008. Disponível em: <https://fenix.tecnico.ulisboa.pt/downloadFile/395137713694/Propaga%C3%A7%C3%A3o%20de%20Feixes%20%C3%93pticos%20em%20Meios%20N%C3%A3o%20-%20Lineares.pdf>. Acesso em: 04 abr. 2022.

HECHT, E. **Optics**. 5. ed. Boston: Pearson, 2017. Disponível em: [https://www.academia.edu/44107964/OPTics\\_FiFTh\\_EdiTiON\\_GlObAl\\_EdiTiON](https://www.academia.edu/44107964/OPTics_FiFTh_EdiTiON_GlObAl_EdiTiON). Acesso em: 02 fev. 2022.

FORK, R., et al. Femtosecond white-light continuum pulses. **Optics letters**, v. 8, n.1, p. 1-3, 1983. Disponível em: <https://opg.optica.org/ol/abstract.cfm?uri=ol-8-1-1>. Acesso em: 20 dez. 2021.

FORBES, A. **Laser beam propagation generation and propagation of customized light**. 1. ed. Boca Raton; CRC Press, 2014.

FRANKEN, P. A., et al. Generation of optical harmonics. **Phys. Rev. Lett**, v.7, n. 4, p. 118-119, 1961. Disponível em: <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.7.118>. Acesso em: 01 dez. 2022.

FRIEDMAN, J.S.; SHE, C.Y. The effects of molecular geometry on the depolarized stimulated gain spectra of simple liquids. **The Journal of Chemical Physics**, v. 99, n.7, p. 4960–4969, 1993. Disponível em: <https://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.466023>. Acesso em: 10 mar. 2022.

GABOR, D. Holography: 1948-1971. **Science**, v.177, n. 4046, p.299-313, 1972. Disponível em: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.177.4046.299>. Acesso em: 25 mai. 2022.

GANEEV, R. A., et al. Investigation of nonlinear optical properties of various organic materials by the Z-scan method. **Opt. Spectrosc.**, v. 112, p. 906-913, 2012. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/257842960\\_Investigation\\_of\\_nonlinear\\_optical\\_properties\\_of\\_various\\_organic\\_materials\\_by\\_the\\_Z-scan\\_method](https://www.researchgate.net/publication/257842960_Investigation_of_nonlinear_optical_properties_of_various_organic_materials_by_the_Z-scan_method). Acesso em: 20 dez. 2021.

GOLDFISCHER, L. I. Autocorrelation Function and Power Spectral Density of Laser-Produced Speckle Patterns. **Journal of the Optical Society of America**, v. 55, n. 3, p.247 – 253, 1965. Disponível em: <https://opg.optica.org/josa/abstract.cfm?uri=josa-55-3-247>. Acesso em: 18 dez. 2022.

GOODMAN, J. W. Some fundamental properties of speckle. **Journal of the Optical Society of America**, v. 66, n. 11, p. 1145-1150, 1976. Disponível em: <http://materias.df.uba.ar/15a2021c1/files/2021/05/goodman1976.pdf>. Acesso em: 10 mar. 2022.

GOODMAN, J. W. Statistical properties of laser speckle patterns. In: DAINTY, J. C. et al. **Laser Speckle Related Phenomena**. Berlin: Springer, 1975. Disponível em: [https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-662-43205-1\\_2](https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-662-43205-1_2). Acesso em: 18 abr. 2022.

GOODMAN, J.W. **Statistical optics**. 2. ed. New Jersey: Wiley, 2000.

GORDON, J. P., et al. Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples. **Journal of Applied Physics**, v. 36, p. 3–8, 1965. Disponível em: <https://www.researchgate.net/profile/Darwin-Guanga/post/Hi-all-In-thermal-lens-topic-What-is-the-meaning-of-characteristic-time-tcw2-4D-w-is-waist-of-beam-laser-and-D-thermal-difusivity/attachment/59d627376cda7b8083a2459a/AS%3A535708001214464%401504734148061/download/referencia+1.pdf>. Acesso em: 14 jul. 2022.

GNOLI, a., et al., Z-scan measurements using high repetition rate lasers: how to manage thermal effects. **Optics Express**, v. 13, p. 7976-7981, 2005. Disponível em: <https://opg.optica.org/oe/fulltext.cfm?uri=oe-13-20-7976&id=85749>. Acesso em: 20 jun. 2022.

HAUS, H. A., et al. Analytic Theory of Additive Pulse and Kerr Lens Mode-Locking. **IEEE J. Quantum Electron**, v. 28, p. 2086-2096, 1992. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/159519>. Acesso em: 20 jun 2022.

HAUS, H. A. **Waves and Fields in Optoelectronics**, New Jersey: Prentice-Hall, 1984.

HE, G. S.; LIU, S. H. **Physics of Nonlinear Optics**. 1. ed. New Jersey: World Scientific, 1999.

ISHIMARU, A. **Wave Propagation and Scattering in Random Media**. 1. ed. New York: Academic Press, 1978.

JORGE, Kelly C., et al. Measurements of the nonlinear refractive index in scattering media using the Scattered Light Imaging Method – SLIM. **Optics Express**, v. 23, n. 15, p. 19512-19521, 2015. Disponível em: <https://opg.optica.org/oe/fulltext.cfm?uri=oe-23-15-19512&id=322768>. Acesso em: 2 jan. 2022.

JOUDRIER, V., et al. Nonlinear light scattering in a two-component medium: optical limiting application. **Appl. Phys. B**, v. 67, n. 5, p. 627–632, 1998. Disponível em: <https://link.springer.com/article/10.1007/s003400050557>. Acesso em: 20 nov. 2022.

SHIM, T. K., et al. Determination of the hyperpolarizability components of hemicyanine dyes by measuring the anisotropic fluorescence and second harmonic of the dyes uniformly aligned within zeolite channels. **The Journal of Physical Chemistry B**, v. 110, p. 16874-16878. 2006. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jp062859u>. Acesso em: 14 dez. 2022.

SOLA-LLANO, et al. Formation of a Nonlinear Optical Host–Guest Hybrid Material by Tight Confinement of LDS 722 into Aluminophosphate 1D Nanochannels. **Chemistry - A European Journal**, v. 22 p. 15700-15711, 2016. Disponível em: <https://chemistry-europe.onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/chem.201601736>. Acesso em: 12 abr. 2022.

STRUTT, J. On the resultant of a large number of vibrations of the same pitch and of arbitrary phase. **Philos. Mag.**, V. 10, P. 73-78, 1880. Disponível em: <https://zenodo.org/record/1835396/files/article.pdf>. Acesso em: 2 dez. 2022.

KALPOUZOS, C., et al. Femtosecond laser-induced optical kerr dynamics in CS<sub>2</sub>/alkane binary solutions. **Chemical Physics Letters**, v. 150, n.1, p. 138 –146, 1988. Disponível em: <https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?uri=ao-40-15-2485>. Acesso em: 17 dez. 2021.

KAUR, N.; PARMAR, H. S. Non-linear scattering effects in fiber optic cables: a comprehensive review. **International Journal of Scientific & Engineering Research**, v. 7, p. 217-226, 2016. Disponível em: <https://www.ijser.org/researchpaper/Non-linear-scattering-effects-in-fiber-optic-cables-a-comprehensive-review.pdf>. Acesso em: 10 nov. 2021.

KIRKPATRICK, S. M., et al. Nonlinear Saturation and Determination of the Two-Photon Absorption Cross Section of Green Fluorescent Protein. **J. Phys. Chem. B**, v. 105, p. 2867-2873, 2001. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jp0041609>. Acesso em: 10 nov. 2022.

KIVELSON, D.; P. Madden. Light scattering studies of molecular liquids. **Annual Review of Physical Chemistry**, v. 31, n.1, p. 523-558, 1980. Disponível em: <https://www.annualreviews.org/doi/abs/10.1146/annurev.pc.31.100180.002515>. Acesso em: 22 set. 2022.

- KIYOHARA, K., et al. Orientational and collision-induced contribution to third-order nonlinear optical response of liquid CS. **The Journal of Chemical Physics**, v. 112, n. 14, p. 6338-6348, 2000. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/234920916\\_Orientational\\_and\\_collision-induced\\_contribution\\_to\\_third-order\\_nonlinear\\_optical\\_response\\_of\\_liquid\\_CS2](https://www.researchgate.net/publication/234920916_Orientational_and_collision-induced_contribution_to_third-order_nonlinear_optical_response_of_liquid_CS2). Acesso em: 20 nov. 2022.
- KYUNGDUK, Kim, et.al. Remote sensing of pressure inside deformable microchannels using light scattering in Scotch tape. **Opt. Lett.**, v. 41, p. 1837-1840, 2016. Disponível em: <https://arxiv.org/pdf/1512.01743>. Acesso em: 5 jan. 2022.
- LEENDERTZ, J.A. Interferometric displacement measurement on scattering surfaces utilizing speckle effect. **J. Phys.E (Sci. Instr.)**, v. 3, p. 214, 1970. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/230949470\\_Interferometric\\_Displacement\\_Measurement\\_Scattering\\_Surfaces\\_Utilizing\\_Speckle\\_Effects](https://www.researchgate.net/publication/230949470_Interferometric_Displacement_Measurement_Scattering_Surfaces_Utilizing_Speckle_Effects). Acesso em: 1 dez. 2022.
- LI, B. WELSCH, E. Probe-beam diffraction in a pulsed top-hat beam thermal lens with a mode-mismatched configuration **Applied optics**, v. 38, n. 24, 1999. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/5528364\\_Probe-Beam\\_Diffraction\\_in\\_a\\_Pulsed\\_Top-Hat\\_Beam\\_Thermal\\_Lens\\_with\\_a\\_Mode-Mismatched\\_Configuration](https://www.researchgate.net/publication/5528364_Probe-Beam_Diffraction_in_a_Pulsed_Top-Hat_Beam_Thermal_Lens_with_a_Mode-Mismatched_Configuration). Acesso em: 11 set. 2022.
- LORD RAYLEIGH, F. R. S. XII. On the resultant of a large number of vibrations of the same pitch and of arbitrary phase. **Philosophical Magazine Series 5**, v. 10, p. 73-78, 1880. Disponível em: <https://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786448008626893>. Acesso em: 07 nov. 2022.
- LORD RAYLEIGH, F. R. S. XXXI. On the Problem of Random Vibrations, and of random Flights in one, two, or three Dimensions. **Philosophical Magazine Series 5**, v. 37, p. 321-347, 1919. Disponível em: <https://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786440408635894>. Acesso em: 02 abr. 2021.
- MACKLIN, J.J et al. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. **Physical review letters**, v.70, n.6, p. 766, 1993. Disponível em: <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.70.766>. Acesso em: 25 set. 2022.
- MAIMAN, T. H. Stimulated Optical Radiation in Ruby. **Nature**, v. 187, p. 493-494, 1960. Disponível em: <https://www.nature.com/articles/187493a0>. Acesso em: 02 mar. 2021.
- MAKER , P. D.; TERHUNE, R. W.. Study of optical effects due to an induced polarization third order in electric field strength. **Phys. Rev.**, v. 137, p. A801–A818, 1965. Disponível em: <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRev.137.A801>. Acesso em: 1 dez. 2022.
- MATSUMOTO, Y., et al. Strain distribution measuring system using speckle shearing interferometer. *In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON EXPERIMENTAL MECHANICS; THE TWELFTH ASIAN CONFERENCE ON EXPERIMENTAL MECHANICS*, 923413., 2013, Bangkok. [**Anais**]. , Bangkok: Digital library SPIE, 2013. Disponível em: <https://www.spiedigitallibrary.org/conference-proceedings-of->

spie/9234/923413/Strain-distribution-measuring-system-using-speckle-shearing-interferometer/10.1117/12.2054198.short. Acesso em: 12 dez. 2021.

MCMORROW, D., et al. Analysis of Intermolecular Coordinate Contributions to Third-Order Ultrafast Spectroscopy of Liquids in the Harmonic Oscillator Limit. **The Journal of Physical Chemistry A**, v. 105, n.34, p. 7960–7972, 2001. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/231628412\\_Analysis\\_of\\_Intermolecular\\_Coordinate\\_Contributions\\_to\\_Third-Order\\_Ultrafast\\_Spectroscopy\\_of\\_Liquids\\_in\\_the\\_Harmonic\\_Oscillator\\_Limit](https://www.researchgate.net/publication/231628412_Analysis_of_Intermolecular_Coordinate_Contributions_to_Third-Order_Ultrafast_Spectroscopy_of_Liquids_in_the_Harmonic_Oscillator_Limit). Acesso em: 14 abr. 2022.

MCMORROW, D., et al. Femtosecond optical Kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids. **IEEE Journal of Quantum Electronics**, v. 24, n. 2, p. 443-454, 1988. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/144>. Acesso em: 14 abr. 2022.

MIDDLETON, D. **Introduction to Statistical Communication Theory**. New York: McGraw-Hill, 1960.

MILLONI, P. W.; EBERLY, J. H. **Lasers**. New York: Wiley, 1988.

MONTEIRO J. M. **Métodos de interferometria para inspeção não destrutiva**. 2012. Tese (Doutorado em Engenharia Mecânica) - Faculdade de Engenharia, Universidade do Porto, Porto, 2012. Disponível em: <https://repositorio-aberto.up.pt/handle/10216/69307>. Acesso em: 20 jun. 2022.

MORAN, M. J., et al. Interferometric measurements of the nonlinear refractive-index coefficient relative to CS<sub>2</sub> in laser-system related materials. **IEEE J. Quantum Electron**, QE-11, p. 259–265, 1975. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1068611>. Acesso em: 22 jun. 2022.

NIE, W. Optical Nonlinearity: Phenomena, Application and Material, **Adv. Mater**, v. 5, p. 520, 1993. Disponível em: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/adma.19930050704>. Acesso em: 22 jun. 2022.

NASROLLAHI, V., et al. Laser drilling with a top-hat beam of micro-scale high aspect ratio holes in silicon nitride. **Journal of Materials Processing Technology**, v. 281, p. 1-9, 2020. Disponível em: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0924013620300509>. Acesso em: 21 jun. 2022.

NIKOBAKHT, B.; EL-SAYED, M. A. Preparation and Growth Mechanism of Gold Nanorods (NRs) Using Seed-Mediated Growth Method. **Chem. Mater.**, v. 15, p. 1957–1962, 2003. Disponível em: <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/cm020732l>. Acesso em: 16 jun. 2022.

OCAS, A. S. R. **High-order nonlinearities of photonics materials: Fundamentals and applications**. 2017. Tese (Doutorado em Física). Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2017. Disponível em: <https://repositorio.ufpe.br/handle/123456789/25595>. Acesso em: 11 jul. 2022.

- OHTSUBO, J. The Second-order statistics of speckle patterns. **J. Optics**, v. 12, n. 2, p. 129-142, 1981. Disponível em: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0150-536X/12/2/005>. Acesso em: 26 nov. 2022.
- OLIVER, B. M., Sparkling spots and random diffraction. *Proceedings of the IEEE* 51, p. 220-221, 1963. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1443616>. Acesso em: 15 nov. 2022.
- OWYOUNG, A. Ellipse rotation studies in laser host materials. **IEEE J. Quantum Electron**, QE-9, p. 1064–1071, 1973. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1077417>. Acesso em: 15 nov. 2022.
- OZA, G., et al. Tailoring Aspect Ratio of Gold Nano Rods: Impact of Temperature, pH, Silver Ions, CTAB Concentration and Centrifugation. **Adv. Appl. Sci. Res.**, v. 3, n. 2, p. 1027–1038, 2012. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/230707324\\_Tailoring\\_Aspect\\_Ratio\\_of\\_Gold\\_Nano\\_Rods\\_Impact\\_of\\_temperature\\_pH\\_silver\\_ions\\_CTAB\\_concentration\\_and\\_centrifugation](https://www.researchgate.net/publication/230707324_Tailoring_Aspect_Ratio_of_Gold_Nano_Rods_Impact_of_temperature_pH_silver_ions_CTAB_concentration_and_centrifugation). Acesso em: 12 abr. 2022.
- PARRY, G. Speckle patterns in partially coherent light. In: DAINTY, J. C. et al. **Laser Speckle Related Phenomena**. Berlin: Springer, 1975. Disponível em: [https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-662-43205-1\\_3](https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-662-43205-1_3). Acesso em: 25 abr. 2022.
- PATZELT, S., et al. Optical absolute position measurement on rough and unprepared technical surfaces. In: PROCEEDINGS 12<sup>th</sup> EUSPEN INTERNATIONAL CONFERENCE, 2012, Stockholm. **Knowledge Base Euspen**, Stockholm, 2012. p. 84-87. Disponível em: <https://www.euspen.eu/knowledge-base/ICE12112.pdf>. Acesso em 21 dez. 2021.
- PETERS, W.; W. Ranson. Digital imaging techniques in experimental stress analysis. **Optical Engineering**, v. 21, n. 3, p. 213427-213427, 1982. Disponível em: <https://www.spiedigitallibrary.org/journals/optical-engineering/volume-21/issue-3/213427/Digital-Imaging-Techniques-In-Experimental-Stress-Analysis/10.1117/12.7972925.full?SSO=1>. Acesso em: 25 out. 2022.
- PILLA, V. et al. Measurement of the thermo-optic coefficient in liquids by laser-induced conical diffraction and thermal lens techniques. **J. Opt. A: Pure Appl. Opt.** v. 11, 2009. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/231063268\\_Measurement\\_of\\_the\\_thermo-optic\\_coefficient\\_in\\_liquids\\_by\\_laser-induced\\_conical\\_diffraction\\_and\\_thermal\\_lens\\_techniques](https://www.researchgate.net/publication/231063268_Measurement_of_the_thermo-optic_coefficient_in_liquids_by_laser-induced_conical_diffraction_and_thermal_lens_techniques). Acesso em: 23 out. 2022.
- POON, T.; KIM, T. **Engineering Optics with MATLAB**. 2. ed. New Jersey: World Scientific, 2006.
- RAJ, R.K., et al. High-Frequency Optically Heterodyned Saturation Spectroscopy Via Resonant Degenerate Four-Wave Mixing. **Physical Review Letters**, v. 44, n. 19, p. 1251-1254, 1980. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/243469163\\_High-Frequency\\_Optically\\_Heterodyned\\_Saturation\\_Spectroscopy\\_Via\\_Resonant\\_Degenerate\\_Four-Wave\\_Mixing](https://www.researchgate.net/publication/243469163_High-Frequency_Optically_Heterodyned_Saturation_Spectroscopy_Via_Resonant_Degenerate_Four-Wave_Mixing). Acesso em: 15 abr. 2022.

RAMASWAMI, R; SIVARAJAN, K. **Optical Networks: a practical perspective**. 2. ed. San Francisco: Morgan Kaufman, 2002.

RAMÍREZ, García., et al. Far field intensity distributions due to spatial self phase modulation of a Gaussian beam by a thin nonlocal nonlinear media. **Opt. Express**, v. 18, p. 22067–22079, 2010. Disponível em: <https://opg.optica.org/oe/fulltext.cfm?uri=oe-18-21-22067&id=206115>. Acesso em: 21 dez. 2021.

RAMÍREZ, García., et al. Z-scan and spatial self-phase modulation of a Gaussian beam in a thin nonlocal nonlinear media. **J. Opt.**, v. 13, 085203, 2011. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/230916783\\_Z-scan\\_and\\_spatial\\_self-phase\\_modulation\\_of\\_a\\_Gaussian\\_beam\\_in\\_a\\_thin\\_nonlocal\\_nonlinear\\_media](https://www.researchgate.net/publication/230916783_Z-scan_and_spatial_self-phase_modulation_of_a_Gaussian_beam_in_a_thin_nonlocal_nonlinear_media). Acesso em: 5 jan. 2022.

Reed, I. On a moment theorem for complex Gaussian processes. **IRE Transactions on Information Theory** 3, v. 8, p. 194–195, 1962. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/1057719>. Acesso em: 22 out. 2021.

REICHERT, M., et al. Temporal, spectral, and polarization dependence of the nonlinear optical response of carbon disulfide. **Optica**, v. 1 n.6, p. 436-445, 2014. Disponível em: <https://opg.optica.org/optica/fulltext.cfm?uri=optica-1-6-436&id=306345>. Acesso em: 20 set. 2022.

SAMAD, R. E.; VIEIRA, N. D. Analytical description of Z-scan on-axis intensity based on the Huygens–Fresnel principle. **Journal of the Optical Society of America B**, v. 15, n. 11, p. 2742–7, 1998. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/249332991\\_Analytical\\_description\\_of\\_z-scan\\_on-axis\\_intensity\\_based\\_on\\_the\\_Huygens-Fresnel\\_principle](https://www.researchgate.net/publication/249332991_Analytical_description_of_z-scan_on-axis_intensity_based_on_the_Huygens-Fresnel_principle). Acesso em: 18 set. 2022.

SATO, Y., et al. Study on Ultrafast Dynamic Behaviors of Different Nonlinear Refractive Index Components in CS<sub>2</sub> Using a Femtosecond Interferometer. **Jpn. J. Appl. Phys.**, v.36, p.2109-2115, 1997. Disponível em: <https://iopscience.iop.org/article/10.1143/JJAP.36.2109>. Acesso em: 22 out. 2022.

SCHUBERT, M.; WILHELMI, B. **Nonlinear Optics and Quantum Electronics**. New York: Wiley, 1986.

SHEIK-BAHAE, M., et al. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. **IEEE Journal of Quantum Electronics**, v. 26, On. 4, p. 760–769, 1990. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/2963149\\_Sensitive\\_Measurement\\_of\\_Optical\\_Nonlinearities\\_Using\\_a\\_Single\\_Beam](https://www.researchgate.net/publication/2963149_Sensitive_Measurement_of_Optical_Nonlinearities_Using_a_Single_Beam). Acesso em: 18 nov. 2022.

SHEIK-BAHAE, M., et al. W. High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements. **Optics Letters**, v. 14, n. 17, p. 955-957, 1989. Disponível em: [https://www.researchgate.net/publication/237365066\\_High-sensitivity\\_single-beam\\_N2\\_measurements](https://www.researchgate.net/publication/237365066_High-sensitivity_single-beam_N2_measurements). Acesso em: 12 nov. 2022.

SHEIK-BAHAE, M; HASSELBECK, M. P. Third order optical nonlinearities. In: **OSA Handbook of Optics IV**, New York: McGraw-Hill, 2000. Disponível em:

<http://www.phys.unm.edu/msbahae/publications/OSA-Handbook%20of%20Optics-IV-Ch17.pdf>. Acesso em 14 nov. 2022.

SHELDON, S.J., et al. Laser-induced thermal lens effect: a new theoretical model. **Appl. Opt.**, v. 21, p. 1663–1669, 1982. Disponível em: <https://physics.byu.edu/docs/publication/1464>. Acesso em 22 dez. 2021.

SHRIK, J.S., et al. Optical limiter using a lead phthalocyanine. **Applied Physics Letters**, v. 63, p. 1880-1882, 1993. Disponível em: <https://pubs.aip.org/aip/apl/article/63/14/1880/523949/Optical-limiter-using-a-lead-phthalocyanine>. Acesso em: 22 dez. 2021.

SIEGERT, A.J.F. **On the Fluctuations in Signals Returned by Many Independently Moving Scatterers**. Cambridge: Massachusetts Institute of Technology, 1943.

SIEGMAN, A. E. Defining the effective radius of curvature for a nonideal optical beam. **IEEE Journal of Quantum Electronics**, v. 27, p. 1146-1148, 1991. SIEGMAN, A. E. **Lasers**. California: University Science Books, 1986. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/document/83370>. Acesso em: 22 out. 2022.

SUN, Z., et al. Optical modulators with 2D layered materials. **Nature Photonics**, v. 10, n. 4, p. 227–238, 2016. Disponível em: <https://www.engr.colostate.edu/ECE574/Papers/Papersforstudents/nphoton.2016.15.pdf>. Acesso em: 18 mai. 2022.

SUTHERLAND, R.L., et al. **Handbook of Nonlinear Optics**. 2 ed. New York: Marcel Dekker, 2003. Disponível em: [https://www.fulviofrison.com/attachments/article/404/0824742435%20-%20CRC%20-%20Handbook%20of%20Nonlinear%20Optics,%20Second%20Ed,%20-%20\(2003\).pdf](https://www.fulviofrison.com/attachments/article/404/0824742435%20-%20CRC%20-%20Handbook%20of%20Nonlinear%20Optics,%20Second%20Ed,%20-%20(2003).pdf). Acesso em: 11 jul. 2022.

TZER-HSIANG, H., et al. The transient optical Kerr effect of simple liquids studied with an ultrashort laser with variable pulsewidth. Selected Topics in Quantum Electronics, **IEEE Journal of Quantum Electronics**, v.2, n. 3, p. 756-768, 1996. Disponível em: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/571777>. Acesso em: 14 out. 2022.

TIZIANI, H. A study of the use of laser speckle to measure small tilts of optically rough surfaces accurately. **Optics Communications**, v. 5, p. 271–276, 1972. Disponível em: <https://www.semanticscholar.org/paper/A-study-of-the-use-of-laser-speckle-to-measure-of-Tiziani/6ee339281c2c7739142b27ead47755b0491dadcd>. Acesso em: 23 jan. 2021.

VERDET, E. Étude sur la constitution de la lumière non polarisée et de la lumière partiellement polarisée. **Annales scientifiques de l'É.N.S.**, v. 2, p. 291-316, 1865. Disponível em: [http://www.numdam.org/item/?id=ASENS\\_1865\\_1\\_2\\_\\_291\\_0](http://www.numdam.org/item/?id=ASENS_1865_1_2__291_0). Acesso em: 12 out. 2021.

VON LAUE, M. Sitzungsber. **Akad. Wiss.(Berlin)**, v. 44, p. 1144, 1914.

WARERKAR, O. D. et. al. A hemicyanine based fluorescence turn-on sensor for amyloid fibril detection in the far-red region, **Journal of Molecular Liquids**, v. 328, 2021.

WIESNER, B., et al. Improved white-light interferometry on rough surfaces by statistically independent speckle patterns. **Applied Optics**, v. 51, n. 6, p. 751-757, 2012. Disponível em: <http://65.202.222.60/ao/ViewMedia.cfm?uri=ao-51-6-751&seq=0&guid=3d6ba526-3642-40d5-b668-e0415db68372>. Acesso em: 5 dez. 2022.

WILLIAMS, W. E., et al. Optical switching and  $n_2$  measurements in CS<sub>2</sub>. **Opt. Commun**, v. 50, p. 256–260, 1984. Disponível em: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0030401884903286>. Acesso em: 23 out. 2021.

YOUNG, H. D., et al. **Física IV: Óptica e Física Moderna**. 14. ed. São Paulo: Pearson, 2016.

ZILIO, S. D. **Óptica Moderna: Fundamentos e aplicações**. São Paulo: Ed. IFSC-USP, 2017.