

T.C.
GEBZE YÜKSEK TEKNOLOJİ ENSTİTÜSÜ
MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Z-SCAN TEKNİĞİ İLE MALZEMELERİN
NONLİNEER OPTİKSEL ÖZELLİKLERİNİN
BELİRLENMESİ

DUYGU ÖNAL

YÜKSEK LİSANS TEZİ
FİZİK ANABİLİM DALI

GEBZE
2003

T.C.
GEBZE YÜKSEK TEKNOLOJİ ENSTİTÜSÜ
MÜHENDİSLİK VE FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Z-SCAN TEKNİĞİ İLE MALZEMELERİN
NONLİNEER OPTİKSEL ÖZELLİKLERİNİN
BELİRLENMESİ

Duygu ÖNAL

YÜKSEK LİSANS TEZİ
FİZİK ANABİLİM DALI

TEZ DANIŞMANI
Doç. Dr. Serhat ÖZDER

GEBZE
2003

ÖZET

Son yıllarda, optik teknolojinin önemi ve lazer teknolojisinin gelişimi nonlinear optik araştırmaların artmasına sebep olmuştur. Bu kavramın giderek daha fazla anlaşılmasına paralel olarak nonlinear optik malzemelerde çeşitlilik ve gelişim süratle devam etmektedir. Dolayısıyla malzemelerin nonlinear optik karakterizasyonu ve bu karakterizasyon için kullanılan teknikler günümüzde önemli bir araştırma konusu haline gelmiştir.

Bu tez, nonlinear optik malzemelerin karakterizasyon tekniklerinden biri olan Z-Scan tekniği üzerine bir ön çalışma niteliğindedir. Deney düzeneği kurulup, teorik simülasyonu yapılarak, CS_2 (karbon disülfür) ile kalibre edilmeye çalışılmıştır. Bu tekniğin yarı-iletken polimerlerden birçok sıvı kristal numuneye kadar malzemelerin karakteristiklerinin belirlenmesinde çok doyurucu bilgiler verdiği gösterilmiştir.

SUMMARY

In recent years, the importance of the optic technology and the development of the laser technology leads to optical researches to increase. In parallel to much more understanding to this concept, the variety and the development in optical materials, go on faster and faster. Consequently, to make nonlinear optical characterization of the materials and to improve new techniques used for this purpose have been a crucial research field.

This thesis is a kind of prestudy to Z-Scan which is the a well technique to characterize those optical materials. CS₂ (carbon disulfure) was tired to calibre by setting up the experimental procedure and doing theoretical simulations. It was shown that this technique gives satisfactory knowledges to identify the features of the materials ranging from semiconductor polymers to many liquid crystals.

TEŞEKKÜR

Bu tez çalışmamda öncelikle, her türlü bilgi ve tecrübesini bana aktaran, çalışmalarım boyunca ilgi ve desteğini benden esirgemeyen değerli hocam ve danışmanım Doç. Dr. Serhat ÖZDER'e teşekkürü borç bilirim.

Deneysel çalışmamda bilgi ve tecrübelerini benimle paylaşan hocam Doç. Dr. Necati ECEVİT'e, çok yoğun olmasına rağmen kendisine danıştığımda ilgisini hiçbir zaman esirgemeyen hocam Prof. Dr. Vefa AHSEN'e sonsuz teşekkürler.

Ayrıca yazım aşamasında bana çok yardım eden, ki burada isimlerini yazmadan edemeyeceğim sevgili arkadaşlarım İsmail Hakkı TAYYAR ve Semran İPEK'e minnet borçluyum. Çalışmam boyunca gösterdikleri ilgiden dolayı bölümdeki araştırma görevlisi arkadaşlarıma, benim bugünlere gelmemi sağlayan, benden maddi ve manevi desteğini hiçbir zaman esirgemeyen aileme sonsuz teşekkürler.

.

İÇİNDEKİLER DİZİNİ

ÖZET	IV
SUMMARY	V
TEŞEKKÜR	VI
İÇİNDEKİLER DİZİNİ	VII
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	IX
ŞEKİLLER DİZİNİ	XII
TABLolar DİZİNİ	XV
 1. GİRİŞ	 1
 2. GENEL BİLGİLER	 3
2.1. Optiğin Elektromagnetik Temeli	3
2.2. Dielektrik Ortamda Elektrik Polarizasyonu	6
2.3. Dalga Eşitlikleri	8
2.4. Lineer Optik	9
2.4.1. İzotropik Ortam	9
2.4.2. Anizotropik Ortam	11
2.4.3. İzotropik Ortam İçin Lineer Optik	12
2.4.3.1. Yansıma Kanunu	13
2.4.3.2. Kırılma Kanunu (Snell Yasası)	13
2.4.3.3. Yansıma ve Geçirgenlik Katsayıları (Fresnel Formülleri)	13
 3. NONLINEER OPTİĞİN TEMELİ	 16
3.1. Kuadratic Polarizasyondan Kaynaklanan Etkiler	20
3.2. Kübik Polarizasyondan Kaynaklanan Etkiler	22
3.3. Nonlinear Duygunluklar	24
3.3.1. Nonlinear Duygunluğun Simetri İlişkisi	26
3.4. Nonlinear Kırılma İndisi	32
3.4.1. Optiksel Kerr Etkisi	32
3.4.2. Lokal Olmayan Etkiler (Nonlocal Effects)	32
3.4.3. Doyum (Saturation) Etkisi	32
3.4.4. Ortamın Fiziksel Etkilerindeki Değişiklikler	33

3.4.5. Çoklu Etkiler (Cascading Effects)	33
3.5. Tanımlamalar ve Notasyonlar	34
3.5.1. Kerr Tipi Ortam	34
3.5.2. Kerr Tipi Olmayan Ortam	37
3.5.3. Bazı Şartlar Altında (Quasi) Kerr Tipi Ortam	37
3.5.4. Şiddet Modülasyon Etkileri	38
3.6. Self- Focusing	38
3.6.1. İnce Ortam	39
3.6.2. Kalın Ortam ($n_2 > 0$)	40
3.6.3. Kalın Ortam ($n_2 < 0$)	43
3.6.4. Uygulamalar	44
3.7. İki-Foton Soğurması	45
3.7.1. Tek Demetle İki-Foton Soğurması	46
3.8. Tipik Organik Moleküllerin Foto-Fiziği	48
4. Z-SCAN TEKNİĞİ	51
4.1. Tekniğin Avantaj ve Dezavantajları	52
4.2. Teori ve Deney Düzenegi	52
4.2.1. Nonlineer Kırılma ($\Delta\alpha = 0$)	57
4.2.2. Nonlineer Soğurma	58
4.3. İnce ve Kalın Nonlineer Ortamlar İçin Z-Scan Analizi	60
4.3.1. İnce Nonlineer Ortam	60
4.3.2. Kalın Numune İçin Z-Scan	64
4.4. Yorumlar	67
5. YAPILAN DENEYSEL ÇALIŞMA	70
5.1. Deneysel Düzenek	70
5.2. Demet Belinin (Beam waist) Belirlenmesi	71
5.3. CS ₂ 'nin Geçirgenlik Spektrumu	72
5.4. Numune Kalınlığının Geçirgenliğe Etkisi	73
6. SONUÇ	76
KAYNAKLAR	77
ÖZGEÇMİŞ	78

SİMGELER VE KISALTMALAR

$\mathbf{E}$: Elektrik alan vektörü

$\mathbf{H}$: Magnetik alan vektörü

$\mathbf{k}$: Dalga vektörü

A : Dalga genliği

ω : Dalganın frekansı

w_0 : Demet belinin (beam waist) yarıçapı

λ : Dalga boyu

z : Dalganın yayılım düzlemi

$w(z)$: Değişken Gaussian eğrisinin yarı genişliği

z_R : Rayleigh aralığı

$\mathbf{P}$: Polarizasyon vektörü

N : Birim hacimdeki dipol sayısı

μ : Dipol moment

$\chi^{(1)}$: Lineer Duygunluk

$\chi^{(2)}$: İkinci mertebeden nonlinear duygunluk

$\chi^{(3)}$: Üçüncü mertebeden nonlinear duygunluk

ϵ_0 : Serbest uzayda elektriksel geçirgenlik

$\mathbf{S}$: Poyting vektörü

ϵ : Dielektrik sabiti

κ : Lineer dielektrik tensör

α : Soğurma katsayısı

n_0 : Lineer kırılma indisi

n_2 : Nonlinear kırılma indisi

$\mathcal{P}$: Optiksel güç

$\mathbf{D}$: Deplasman vektörü

$R_{s,p}$: Yansıma

T : Geçirgenlik

c : Işık hızı

R : Rayleigh saçılma şiddeti

Ω : Rezonans frekansı

Γ : Yavaşlama sabiti (damping constant)

P_{NL} : Nonlinear polarizasyon

$P^{(2)}$: İkinci mertebeden nonlinear polarizasyon

$P^{(2)}$: Üçüncü mertebeden nonlinear polarizasyon

f : Ortamın nonlinear odak uzaklığı

I_0 : Eksendeki şiddet

$\wp_{cr}$: Kritik güç

β : İki-foton soğurma katsayısı

σ : İki-foton soğurma tesir kesiti

TPA : İki-foton soğurma katsayısı

τ_F : Floresans süresi

τ_p : Phosphoresence süresi

σ_0 : Temel seviye soğurma katsayısı

σ_1 : Singlet seviye soğurma katsayısı

τ_{S1} : S_1 seviyesindeki yaşam süresi

τ_{Sn} : S_n seviyesindeki yaşam süresi

τ_{T1} : T_1 seviyesindeki yaşam süresi

τ_{T_n} : T_n seviyesindeki yaşam süresi

τ_{vib} : Titreşimli seviyeden singlet seviyeye geçiş süresi

τ_{ISC} : S_1 den T_1 e geçiş oranı (Intersystem Crossing Rate)

S_0, S_1, S_n : Singlet seviye

T_1, T_n : Triplet seviye

L : Numunenin kalınlığı

z_0 : Demetin kırınım uzunluğu

S : Yarığın geçirgenliği

$\Delta\Phi_0$: Maksimum nonlineariteye sahip faz değişimi

$\Delta\phi$: Elektrik alanın faz değişimi

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil	Sayfa
2.1. TEM ₀₀ Gaussian demetin sistematik şekli. (a) Demetin yayılım profili (b) Demet tesir kesiti.	5
2. 2. Uygulanan elektrik alana karşı dielektrik ortamın görüntüsü (a) Elektrik alan uygulanmadığında (b) Elektrik alan uygulandığında.	7
2. 3. İki farklı dielektrik ortam arasındaki arayüzeyden elektromanyetik dalganın yayılımının görüntüsü.	15
3.1. Görünen ışık frekansında değişken bir elektrik alana maruz bırakılan dielektrik ortamdaki bağlı yüklerin hareketini temsil eden şekil. İyonların hareketi elektronlara göre daha yavaş olmaları nedeniyle önemsizdir.	17
3.2. Rezonans frekansı ω bölgesinde duygunluğun reel ve imajiner kısmının değişimi.	18
3.3. E elektrik alan altında nonlinear etkinin polarizasyona bağlılığı. Girişe uygulanan küçük alanlar için (a) P lineerlikten pek fazla ayrılmamaktadır. Büyük alanlarda (b), Polarizasyon bozunmuş bir dalga formu içerir.	20
3.4. Optiksel anahtar davranışı kırılma indisi optiksel şiddete bağlı olan bir malzeme içeren Fabry-Perot etalonu tarafından gösterilmektedir. Geçen şiddet I_T nin girişteki şiddet I_I göre değişim grafiği bir histerist göstermektedir. Bu histerisin anlamı I_I nın bazı değerleri için açma ve kapama durumlarının kararsız olduğudur.	23
3.5 Nonlinear ortamda demetin kendi kendine odaklanması.	38
3.6. Hareketli odağın izlediği yolun şematik gösterimi.	43

3.7. Optiksel sınırlayıcılar kendi kendine odaklanma üzerine dayanır (a) $n_2 > 0$, (b) $n_2 < 0$.	44
3.8. İki-Foton Soğurumunun (TPA) sistematik şekli (a) Kendi kendine TPA (b) Pump-probe TPA.	46
3.9. Organik boya molekülünün enerji seviye diyagramı.	49
4.1. Dedektörün çıkışındaki sinyal oranlarını görüntüleyerek gürültüyü azaltmak için z-scan yarığı kullanılır. Açık yarık z-scande yarıklar şekilde gösterildiği gibi işaretin ön tarafında hareket ettirilerek elde edilir. Referans dedektör ise geçen ışığın tamamını dikkatlice toplar.	53
4.2. Pozitif (düz çizgi) ve negatif (noktalı çizgi) üçüncü mertebeden nonlinear kırılma için elde edilmiş tipik bir z-scan grafiği.	54
4.3. Üçüncü mertebeden nonlinear soğurma için tipik bir açık yarık z-scan sinyalinin grafiği.	59
4.4. Geçişteki normalize değişim. Kalın numuneler için $\Delta\Phi_{z0} = 0.01$ için $L/n_0z_0=1, 2, 5, 8, 10$ şeklinde z/n_0z_0 ın bir fonksiyonu olarak F verilmektedir.	66
4.5. $l=L/n_0z_0$ (düz çizgi)'nin bir fonksiyonu olarak efektif numune kalınlığı l_{eff} gösterilmektedir ve bu çizgiye deney sonuçlarıyla fit edilmiştir (noktalı çizgi). Noktalı çizgi eğimi 1'dir.	66
5.1. CS_2 'nin nonlinear optiksel özelliklerinin belirlenmesi için kurulan deneysel düzenek.	70
5.2. Odak noktasındaki demetin kağıt üzerindeki görüntüsü.	71
5.3. Z-scan ölçümü sonucu CS_2 'nin geçirgenlik değişimi (nokta) ve teorik similasyonu (düz çizgi).	72
5.4. Self-focusingden dolayı hücrede meydana gelen hasar. (a) şiddetli lazer ışını uygulanan hasarlı hücre, (b) lazer ışını uygulanmamış sağlam hücre.	73

5.5. Geçirgenliğin kalınlığa göre değişimi. (a) mm mertebesinde kalınlıklar için, (b) cm mertebesinde kalınlıklar için.	74
5.6. Kalınlığa göre geçirgenliğin mak-min pozisyonlarının değişimi.	75

TABLOLAR DİZİNİ

Tablo	Sayfa
3.1. Merkezi simetrik ortamlar için üçüncü mertebeden duygunluğun formu	29
3.2. Farklı simetri sınıfları için d matrisinin formu	30
3.3. n_2 ile $\chi^{(3)}$ arasındaki ilişki	36

1. GİRİŞ

Optikte, maddeyle ışığın etkileşimiyle ilgileniriz. Düşük ışık şiddetlerinde (normal, doğada bulunan) materyallerin optiksel özellikleri aydınlanmanın (illumination) şiddetinden tamamen bağımsızdır. Işık dalgaları ortamın içinden geçebiliyorsa ve nüfuz edebiliyorsa, bu dalgalar arasında herhangi bir etkileşim olmaksızın meydana gelir. Eğer aydınlanma yeterince şiddetli ise optiksel özellikler, ışığın şiddetine ve diğer karakteristik özelliklerine bağlı olarak meydana gelir ve ışık dalgaları hem ortamı hem de birbirlerini etkiler. Bu nonlinear optiğin alanıdır. Bu etkiler eş fazlı (coherent) ışık kaynaklarından (lazer v.b.) elde edilebilir. Böyle davranışlar maddenin özelliklerini ve iç yapısını anlamamızı sağlar.

Nonlinear optik olaylar günlük deneyimlerimizin bir parçası değildir. Nonlinear optiğin keşfi ve gelişimi lazerin bulunuşundan sonra mümkün olmuştur. İlk olarak, 1961 yılında FRANKEN ruby-lazer ışını altında quartz kristalinin içinde frekansın iki katına çıktığını göstermiştir. Bu önemli olayla nonlinear optiğe ilgi başlamıştır. Yine bu yıllarda BLOEMBERGEN teorik çatıyı oluşturmuştur. 1970'lerin sonlarında optiksel fiber telekomünikasyonun gelişimi ile nonlinear optiğin endüstriyel önemi tam olarak anlaşılmıştır. Günümüzde lazer demeti üzerinde iletişim işlemi ile bilgi depolama, algılama ve gösterme yapılmaktadır. Ultra hızlı optoelektronik etkileşimleri ve optiksel sinyallerin doğal paralellliğini kullanarak daha büyük bilgi işleme yeteneği kazanmak için giderek artan çalışmalar yapılmaktadır.

Nonlinear optik kavramının daha iyi anlaşılmasına paralel olarak nonlinear optik malzemelerdeki çeşitlilik ve gelişim artmaktadır. İlk malzemeler inorganik dielektrik kristallerdi. Ardından organik materyallerin daha iyi nonlinear optik özellikler sağladığı 1969'da anlaşıldı. Organik materyallerin içinde yüksek optik nonlinearite veren materyaller Phthalocyanin'lerdir (Pcs). Pcs'ler pikosaniyenin altında yanıt zamanıyla yüksek nonlinearite sağlayabilirler. Soğurma kayıpları IR spektral dağılımının geniş

bölgesinde azdır. Bu nonlinear optik cihazlar için güç ihtiyacını ve ısınmayı azaltır. Pcs'ler inorganik materyallere karşılık düşük dielektrik sabitlerine sahiptir. (optik anahtarlara uygulamalarında faydalı bir özellik).

1980'lerin başlarında nonlinear optik malzemeler yeni yarıiletken malzemelerin üretimi ile genişlemiştir. Örneğin çoklu kuantum wires, kuantum dot ve süper örgüler. Çoklu kuantum well iki farklı yarıiletken tabakanın büyütülmesiyle üretilir (GaAs ve AlGaAs). Bu elektronlar ve deşikler için ardı ardına gelen değişken potansiyel tepelerin ve vadilerin oluşmasına sebep olur. Taşıyıcıların bu potansiyel duvarların içinde olduğu varsayılır. Böylece yarı iki boyutlu davranış göstererek geniş optiksel nonlinearlikler gösterirler.

Günümüzde, nonlinear optik cihazlar için uygun özellikler gösteren materyallerin karakterizasyonu oldukça önemlidir. Bu materyallerin karakterizasyonu için birçok teknik vardır. Burada birçok açıdan büyük avantaj sağlayan z-scan tekniğini ele aldık. Bu çalışmayla Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü Araştırma Fonunun 02-B-01-02-05 nolu projesi için gerekli alt yapı sağlanmış olup bu konu üzerine çalışılmaya devam edilecektir.

2. GENEL BİLGİLER

2.1. Optiğin Elektromagnetik Temeli

Işık elektromagnetik bir dalgadır dolayısıyla elektrik ve magnetik alan bileşenleri vardır. Bu bileşenler sırasıyla $\mathbf{E}$ ve $\mathbf{H}$ dır. Çoğu optikçi için optiksel dalga elektriksel alan bileşeni tanımlanarak karakterize edilir. (Elektromagnetik teoriden bilindiği gibi Maxwell eşitliklerinde magnetik alan ve elektrik alan birbirine bağlıdır.)

Nonlinear optik de oldukça yüksek bir doğrusallığa sahip lazerlerle çalışılır. Bu yüzden elektrik alanın uzayda bir yönde yayılan bir dalga olduğunu varsaymak çok geneldir. Aynı kabul sonlu miktardaki demet yayılımı veya kırınımı içinde geçerlidir. Bu yayılımın ana yönü genellikle z-ekseni olarak alınır. Böylece elektrik alan dalgasının genel formu

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{e}}A(\mathbf{r}, t) \exp [i(kz - \omega t)] + c.c \quad (2.1)$$

ile verilir. Bu denklemden k yayılım dalga vektörü ve ω hızlı salınan dalganın küresel frekansı, $A(\mathbf{r}, t)$ dalga genliğidir. Bu genlik eş(2.1)' deki üstel kısma ilaveten faz birikim olasılığını da içerecek şekilde komplekstir. Dalganın polarizasyonu (elektrik alan vektörünün yönü) birim vektör $\hat{\mathbf{e}}$ cinsinden verilir. Bu vektör reel olduğunda dalganın düzlemsel olduğu söylenir. Kompleks birim vektör demek dalganın eliptik olarak polarize olması demektir. Bunun bir özel durumu dairesel polarizasyondur. Biz düzlem dalga olarak ele alacağız. Burada c.c notasyonu ise kompleks eşleniktir. Lineer ve nonlinear optikteki çoğu problem için alanın sonsuz geniş, yayılım yönündeki bir düzlemde fazın ve genliğin sabit olduğu varsayılabilir. Böylece kompleks alan genliği yalnızca z ve t 'nin fonksiyonu olur. $A(z, t)$ yazılabilir. Bu tip dalgaya sonsuz düzlem dalga denir. Bu yalnızca bir yaklaşımdır. Çünkü gerçek lazer demetleri sonlu bir genişliğe sahip olup genellikle hareket düzlemi boyunca uzaysal olarak değişir.

Sonlu bir demetin en genel formu dairesel Gaussian demetin TEM₀₀ modudur. Bu tip bir dalgaının alanı aşağıdaki gibidir [J. T. Verdeyen, 1989]

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \hat{e}A(z, t) \frac{w_0}{w(z)} \exp \left\{ i \left[\frac{kr^2}{2q(z)} + kz - \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) - \omega t \right] \right\} + c.c \quad (2.2)$$

Bu demet silindirik simetriye sahiptir ve şekil (1) de gösterilmiştir. Demet r noktasında Gaussian eğrisinin yarı genişliği olarak ifade edilen değişken bir w(z) yarıçapı ile Gaussian bir tesir kesitine sahiptir. R noktasında eğri maksimum değerinin 1/e' sindedir. Bu durum şekil (1b) de gösterilmiştir. z = 0 düzleminde yarıçap w₀ ile gösterilir ve minimum değerindedir. w(z) şu şekilde verilir;

$$w(z) = w_0 \left[1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (2.3)$$

z = 0 da demetin çapı 2w₀ olup demet beli (beam waist) olarak nitelendirilir.

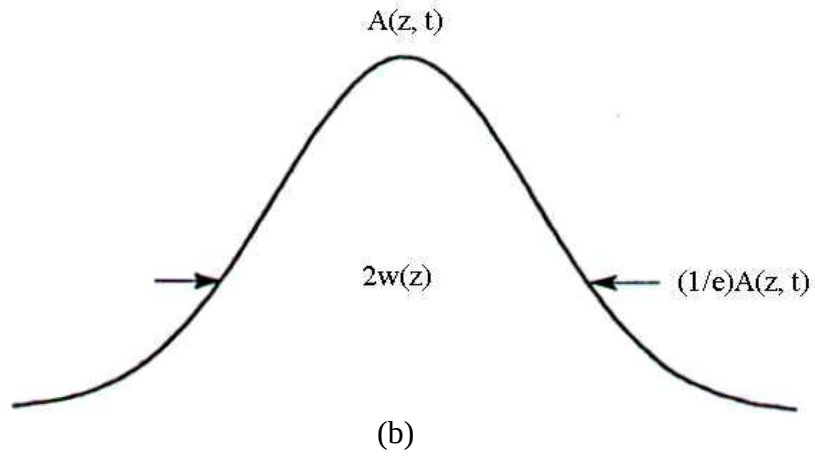
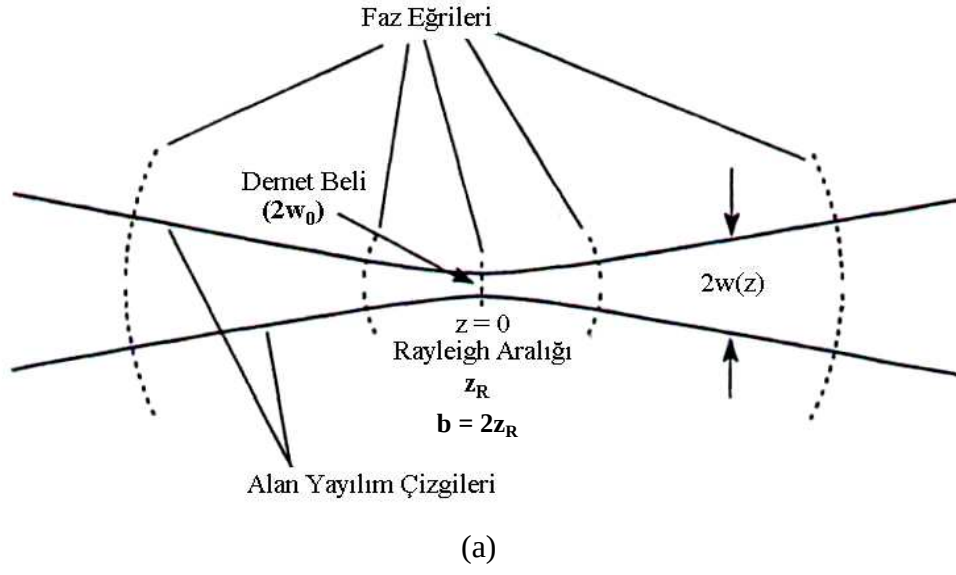
Gaussian bir demet için sabit faz düzlemi eğridir. Demet belinde faz, eğrinin sonsuz bir yarıçapına sahiptir ve böylece bir düzlem dalga meydana getirir. Belden çok uzak mesafelerde eğrinin yarıçapı z'dir. q(z) büyüklüğüne eğrinin kompleks yarıçapı denir.

$$q(z) = z - iz_R \quad (2.4)$$

ile gösterilir. Sonuç olarak z_R büyüklüğüne Rayleigh aralığı denir ve

$$z_R = \frac{n\pi w_0^2}{\lambda} \quad (2.5)$$

ile ifade edilir. Burada n ortamın kırılma indisi ve λ dalga boyudur. Rayleigh aralığı demet yarıçapının (2)^{1/2} faktörü kadar arttığı demet belinden olan uzaklığa karşılık gelir. ± z_R noktaları arasındaki mesafeye konfokal parametresi denir.(b = 2z_R) Bu parametre şekil (2.1a) da gösterilmiştir.



Şekil 2.1 TEM₀₀ Gaussian demetin sistematik şekli. (a) Demetin yayılım profili
(b) Demet tesir kesiti

2.2. Dielektrik Ortamda Elektrik Polarizasyonu

Dielektrik bir ortama elektrik alan uygulandığında (nötral elektriksel yük), bağ yüklerinin dağılımı şekil(2.2) deki gibi indüklenir. Yüklerin böyle dağılımı eğer uygulanan alan değişirse hızlı bir şekilde salınabilen indüklenmiş dipol momentlerin μ oluşmasına sebep olur. Elektrik polarizasyon birim hacimdeki ortalama dipol moment olarak tanımlanır.

$$\mathbf{P} = N \langle \boldsymbol{\mu} \rangle \quad (2.6)$$

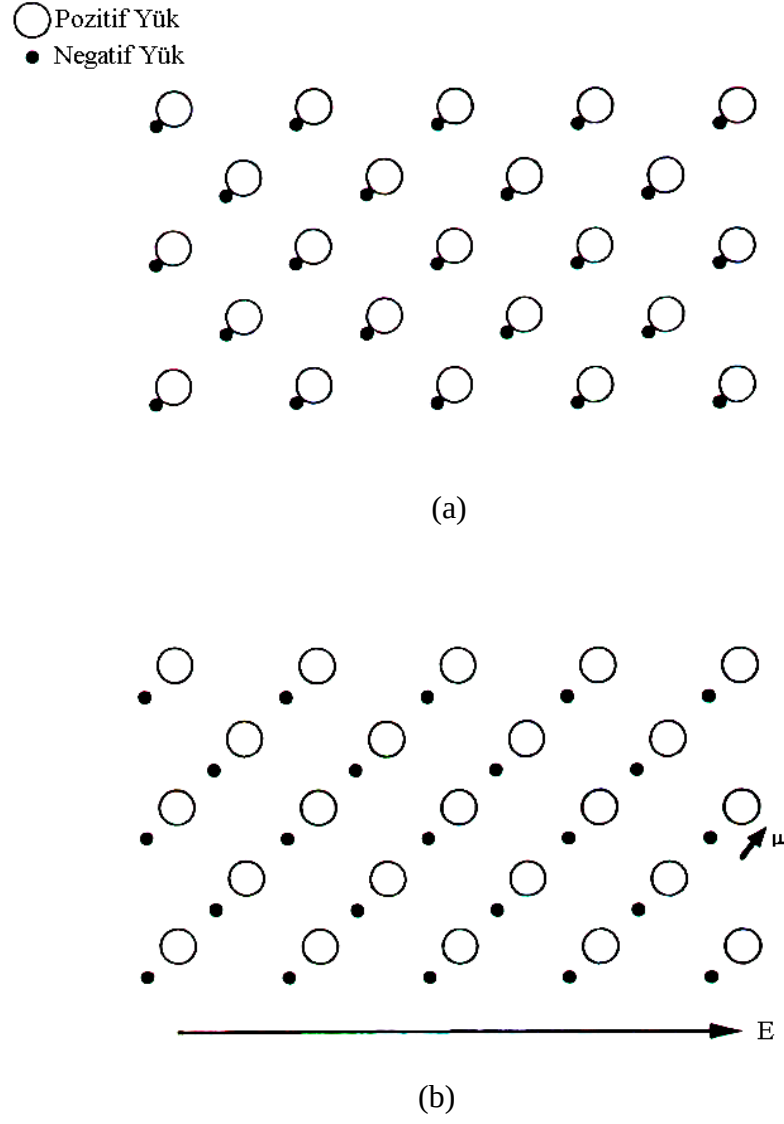
Burada N birim hacimdeki mikroskobik dipollerin sayısıdır. $\langle \rangle$ ise ortamdaki tüm dipoller üzerinden alınan bir ortalamaı ifade eder. Polarizasyon $\mathbf{P}$, elektrik alanın $\mathbf{E}$ bir fonksiyonudur. Işık kaynağının düşük şiddetlerinde polarizasyonla alan arasındaki ilişki lineerdir. Bu bölge lineer optiktir. Malzemenin rezonans frekansından yeterince uzakta bulunan frekanslar için kararlı seviye elektrik polarizasyon tepkisi şu şekilde yazılır.

$$\mathbf{P}_L = \begin{cases} \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} & (SI) \\ \chi^{(1)} \mathbf{E} & (cgs) \end{cases} \quad (2.7)$$

Burada L alt indisi lineer polarizasyonu ifade eder. $\epsilon_0 = 885 \times 10^{-12}$ farad/metre serbest uzayda elektriksel geçirgenlik ve $\chi^{(1)}$ lineer dielektrik tepki tensörüdür. Genellikle $\mathbf{P}$ ile $\mathbf{E}$ arasındaki ilişki tensörelidir. Şu şekilde yazılır,

$$P_{L,i} = \begin{cases} \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j & (SI) \\ \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j & (cgs) \end{cases} \quad (2.8)$$

Burada i alt indisi i .kartezyen koordinatlarını ifade eder. ($i = x, y, z$) ve toplam j üzerinden olup $j = x, y, z$ dir. Böylece $\chi^{(1)}$ tensörü dokuz bileşene sahiptir. İzotropik ortamda tensörün yalnızca bir tane bağımsız, sıfırdan farklı bileşeni vardır. Bu yüzden dielektrik tepki skaler bir büyüklük olur.



Şekil 2.2 Uygulanan elektrik alana karşı dielektrik ortamın görüntüsü (a) Elektrik alan uygulanmadığında (b) Elektrik alan uygulandığında

2.3. Dalga Eşitlikleri

Nonlinear optikte ele alınan durumların büyük çoğunluğu için dielektrik ortamda makroskobik bir polarizasyonun olmadığı varsayılabilir. (mikroskobik elektriksel ve manyetik dipoller yok). Ortam ayrıca elektriksel olarak nötraldir ve iletken değildir. Böylece serbest yük yada akım yoğunluğu ortamda bulunmaz. Bu koşullar altında elektrik alan vektörünün yayılımını ortaya koyan denklem şu şekildedir:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{K}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.9)$$

$c = 3 \times 10^8$ m/s olup ışık hızıdır. K kullanılan sisteme bağlı olarak bir sabittir.

$$K = \begin{cases} (\epsilon_0)^{-1} & (SI) \\ 4\pi & (cgs) \end{cases} \quad (2.10)$$

Işığın şiddeti yeterince büyük olduğunda (örn, lazerden gelen ışık) ek bir polarizasyon meydana gelecektir. Böylece toplam polarizasyon şu şekilde yazılır;

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} \quad (2.11)$$

$\mathbf{P}_{NL}$ uygulanan alanın nonlinear fonksiyonudur. Bu ifadeleri eş(2.9) da yerine koyup eş(2.7)'yi kullanırsak dalga eşleniği şu şekle gelir;

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \kappa \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{K}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.12)$$

κ lineer dielektrik tensör, ϵ (cgs) veya ϵ/ϵ_0 (SI)'dır.

$$\epsilon_0 = \begin{cases} \epsilon_0 (\delta_{ij} + \chi_{ij}^{(1)}) & (SI) \\ \delta_{ij} + 4\pi\chi_{ij}^{(1)} & (cgs) \end{cases} \quad (2.13)$$

ve

$$\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & (i = j) \\ 0 & (i \neq j) \end{cases} \quad (2.14)$$

Nonlinear optikteki çoğu durum için toplam elektrik alan quasi-monochromatic dalgaların süperpozisyonu olarak düşünülebilir (lazer demetleri). Toplam alan şu şekilde yazılır;

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mu} \hat{e} A_{\mu}(\mathbf{r}, t) \exp[i(\mathbf{k}_{\mu} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\mu} t)] + c.c \quad (2.15)$$

Burada toplam ω_{μ} frekanslarının tam sayı dalgaları ve dalga vektörleri $\mathbf{k}_{\mu}$ üzerindendir. Nonlinear polarizasyon toplam polarizasyon üzerine küçük bir pertürbasyon etkisi gösterdiğinde şu şekilde yazılabilir.

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mu} \mathbf{P}_{NL, \mu}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega_{\mu} t) + c.c \quad (2.16)$$

Burada $\mathbf{P}_{NL, \mu}(\mathbf{r}, t)$ zamanla yavaş değişen kompleks polarizasyon genliğidir (dalğanın hızlı salınan kısmına oranla daha yavaştır).

2.4. Lineer Optik

Lineer optikte, polarizasyonun nonlinear terimi ihmal edilir (sıfıra eşittir). Eşitlik(2.12) homojen bir diferansiyel denkleme dönüşür. Bu denklemin çözümü eş(2.1) ile aynı formdadır.

2.4.1. İzotropik Ortam

İzotropik ortamda duygululuk skaler bir büyüklüktür. Genel olarak

$$\chi^{(1)} = \chi_R^{(1)} + i\chi_I^{(1)} \quad (2.17)$$

şekilde yazılır. R ve I sırasıyla reel ve sanal kısımları ifade eder. Ayrıca dielektrik sabiti de komplekstir.

$$\sqrt{\frac{\epsilon(\omega)}{\epsilon_0}} = n(\omega) + \frac{i\alpha(\omega)}{4\pi} \quad (2.19)$$

Bu ifade SI birim sisteminde yazılmıştır, cgs birim sistemi için $\epsilon_0 = 1$ alınmalıdır. Eşitlik (2.19)'da $n(\omega)$ kırılma indisidir ve şu şekilde ifade edilir;

$$n(\omega) = \begin{cases} \sqrt{1 + \chi_R^{(1)}(\omega)} & (SI) \\ \sqrt{1 + 4\pi\chi_R^{(1)}(\omega)} & (cgs) \end{cases} \quad (2.20)$$

$\alpha(\omega)$ soğurma katsayısıdır:

$$\alpha(\omega) = \begin{cases} \frac{\omega\chi_I^{(1)}(\omega)}{n(\omega)c} & (SI) \\ \frac{4\pi\omega\chi_I^{(1)}(\omega)}{n(\omega)c} & (cgs) \end{cases} \quad (2.21)$$

Dalga denkleminde düzlem dalga çözümü

$$\mathbf{E}(z, t) = \hat{e}A_0 \exp\left(-\frac{\alpha z}{2}\right) \exp[i(kz - \omega t)] + c.c \quad (2.22)$$

ile verilir. Burada A_0 , $z = 0$ daki dalga genliğidir. Dalga faz hızıyla hareket eder ($v_p = c/n$). İzotropik ortamda, elektrik alan vektörü daima dalga vektörüne diktir ve dalganın faz hızı yayılım yönünden bağımsızdır. Dedektörler hızla değişen optik frekansı ölçemediklerinden dolayı ölçülen deneysel nicelikler zamanla değişen ortalama alan akısıdır. Buradaki ortalama birkaç optiksel devir üzerinedir. Alan genliği ile ilişkili ışım şiddeti (irradiance);

$$I(z,t) = \begin{cases} 2\varepsilon_0 nc |A(z,t)|^2 & (SI) \\ \frac{nc}{2\pi} |A(z,t)|^2 & (cgs) \end{cases} \quad (2.23)$$

Sürekli lazer (cw) demetinin ölçülen optiksel gücü ile ışıma şiddeti arasındaki ilişki;

$$\mathcal{P} = \int_A I dA \quad (2.24)$$

şeklindedir. Burada integral demet alanı A üzerindendir ve kompleks alan genliğiyle karıştırılmamalıdır (A(r, t)). TEM₀₀ Gaussian demet için demet beli ile ilişki şu şekilde verilir;

$$\mathcal{P} = \frac{\pi \omega_0^2}{2} I_0 \quad (2.25)$$

I_0 Gaussian demetin eksen üzerindeki tepe değeridir.

2.4.2. Anizotropik Ortam

Anizotropik ortamda durum basit değildir. Genel olarak, elektrik alan vektörü dalga vektörüne dik değildir. Bundan dolayı yerdeğiştirme vektörü tanımlanır.

$$\mathbf{D} = \begin{cases} \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} & (SI) \\ \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P} & (csg) \end{cases} \quad (2.26)$$

Deplasman vektörü dalga vektörüne diktir (ortogonal). Herhangi bir anizotropik ortamda iki birbirinden bağımsız ortogonal polarize deplasman dalgaları farklı faz hızlarıyla hareket edebilirler. Anizotropik ortamdaki problem bu modların polarizasyonunu ve bunlara karşılık gelen faz hızlarını bulmaktır.

Lineer dielektrik sabitinin simetrik tensör olduğu gösterilebilir ($\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$) [M. Born and E. Wolfe, 1975]. Lineer cebir kanunlarından, bir ortogonal koordinat

sistemi bulunabilir, bu durumda bu tensör diagonaldır ($\epsilon_{ij} = \epsilon_{ii} \delta_{ij}$, dirac deltadır). Dielektrik tensörün diagonal elemanları ortamın dielektrik sabitinin temelidir. Bunlar ϵ_{xx} , ϵ_{yy} , ϵ_{zz} ile belirtilir. Bu semboller temel eksenini belirtmek için kullanılır. Benzer olarak temel kırılma indisi $n_{ii} = (\epsilon_{ii}/\epsilon_0)^{1/2}$ ile bulunur. i . ekseninde faz hızı $v_{pi} = c/n_{ii}$ ile tanımlanır.

Eğer dielektrik tensör elemanları kompleks ise, temel kırılma indisleri yukarıda verilen ifadenin karakökünün reel kısmına eşittir. Karakökün imajiner kısmı ise temel soğurma katsayısıyla α_{ii} ilgilidir. Bu denklem eş(2.21) de verilmiştir. Bu polarizasyona bağlı yayılmaya ve yöne bağlı soğurmaya “pleochromism” denir [M. Born and E. Wolfe, 1975]. Genellikle $n_x \neq n_y \neq n_z$ dir. Temel indislerden ikisi eşit olduğunda ($n_x = n_y \neq n_z$) büyük basitlik olur. Bu durumda ortam tekeksendir. Simetrisinin tek eksenli vardır, optik eksen denilen bu eksen z-ekseni olarak alırız. Işık bu eksen boyunca yayıldığında faz hızı polarizasyondan bağımsızdır. “o” indisi ordinary dalgalar için, e indisi ise extraordinary dalgaları göstermek üzere $n_x = n_y = n_o$ ve $n_z = n_e$ ifadeleri yazılır.

Çift kırınım gösteren tek eksenli ortamın çift-kırıcı (birefringe) olduğu söylenir. Ortamın çift-kırıcılığı $\Delta n = n_e - n_o$ ile verilir. Nonlineer optikte ki çoğu geçirgen kristal küçük bir çift-kırıcılığa sahiptir ($|\Delta n| \ll 1$).

2.4.3. İzotropik Ortam İçin Lineer Optik

Maxwell eşitlikleri ve elektromanyetik dalgaların formu iki dielektrik ortam arasındaki ara yüzeyde optik kanunları üretmek için kullanılabilir [M. Born and E. Wolfe, 1975]. Ara yüzeyin geometrisi, gelen, yansıyan ve geçen dalgalar şekil(3) de gösterilmiştir. İki izotropik ortam için lineer optiğin kanunları aşağıda verilmektedir.

2.4.3.1. Yansıma Kanunu

$$\theta_r = \theta_i \quad (2.27)$$

Burada θ_i gelen açı, θ_r yansıyan açıdır. Her ikisinde ara yüzeyin normaliyle yaptıkları açılardır. Böylece ara yüzeye gelen dalganın açısı yansıyan dalganın açısına eşittir.

2.4.3.2. Kırılma Kanunu (Snell Yasası)

$$n_i \sin \theta_i = n_t \sin \theta_t \quad (2.28)$$

Burada i alt indisi ara yüzeyde dalganın geldiği ortamı belirtirken t dalganın geçtiği ortamı belirtir. $n_i \neq n_t$ olduğundan gelen ışının doğrultusu ara yüzeye doğru gelirken bükülür. Bükülmenin yönü $n_i < n_t$ ise ara yüzeyin normaline doğrudur. $n_i > n_t$ iken ise bu yön normalden uzaklaşır.

2.4.3.3. Yansıma ve Geçirgenlik Katsayıları (Fresnel Formülleri)

Ara yüzeyde yansıyan ve geçen elektromanyetik enerjinin miktarı katsayılarla Fresnel formülleri yardımıyla belirlenir. Bunlar gelen dalganın polarizasyonuna bağlı olacaktır. Polarizasyon vektörü gelen düzleme göre belirlenir. Bu düzlem şekil (2.3) de gösterildiği gibi gelen, yansıyan ve geçen ışınları içerir. Gelen düzleme normal şekilde polarize olan ışık s polarizasyonu olarak nitelendirilirken gelen düzlemin içinde polarize olan ışık p polarizasyonu olarak nitelendirilir. Gelen ve yansıyan alan genliklerinin oranı r ile verilir. t ise yansıyan ve gelen dalga genliklerinin oranına karşılık gelir. Fresnel formülleri:

$$r_s = \frac{n_i \cos \theta_i - n_t \cos \theta_t}{n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t} \quad (2.29)$$

$$t_s = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t} \quad (2.30)$$

$$r_p = \frac{n_i \cos \theta_t - n_t \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_t + n_t \cos \theta_i} \quad (2.31)$$

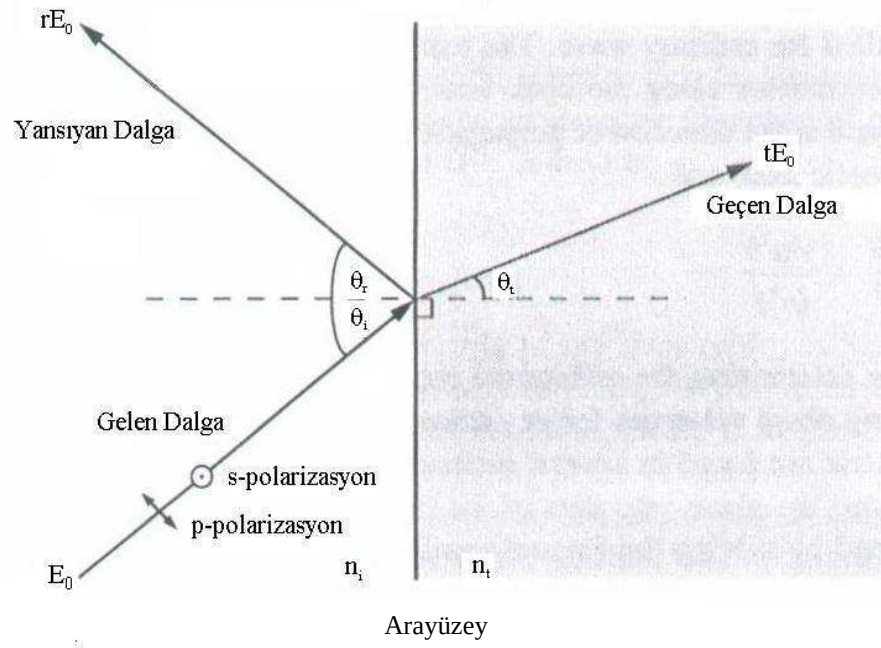
$$t_p = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_t + n_t \cos \theta_i} \quad (2.32)$$

Ölçülebilir büyüklükler ara yüzeyin yansıması ve geçirgenliğidir. Bunlar sırasıyla yansıyan ve geçen gücün zaman ortalamasının gelen güce oranıyla bulunabilir. Hem s hemde p-polarizasyonları için bu büyüklükler Fresnel katsayılarıyla birbirine bağlıdır. Bu katsayılar;

$$R_{s,p} = |r_{s,p}|^2 \quad (2.33)$$

$$T_{s,p} = \frac{n_t \cos \theta_t}{n_i \cos \theta_i} |t_{s,p}|^2 \quad (2.34)$$

R yansıma, T geçirgenliktir.



Şekil 2.3 İki farklı dielektrik ortam arasındaki arayüzeyden elektromanyetik dalganın yayılımının görüntüsü

3. NONLİNEER OPTİĞİN TEMELİ

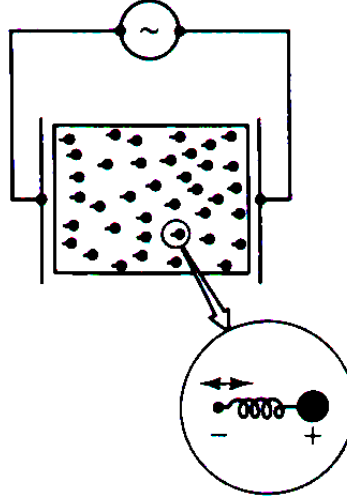
Bu bölümde nonlinear davranışların nasıl meydana geldiğini inceleyeceğiz. Materyaller yüklü parçacıkların toplamı olarak düşünülebilir. Elektrik alan uygulandığında pozitif yükler elektrik alan yönünde, negatif yükler ters yönde hareket ederler. İletkenlerde, yüklü parçacıklar elektrik alan uygulandığı sürece malzeme içinde serbest hareket ederler ve bu elektrik akımına sebep olur. Dielektrik malzemeler de ise yüklü parçacıklar birbirine bağlıdır ve bu bağlar elastikiyete sahiptir. Bu nedenle, alan ilk uygulandığında yüklerin hareketi geçicidir (transitory). Olağan pozisyonlarından çok az yerdeğistirirler. Pozitif yüklerin ve negatif yüklerin birbirine zıt yöndeki bu küçük hareketleri elektrik dipol momentlerin oluşmasına sebep olur. Başka bir deyişle dielektrik ortama uygulanan alanın etkisi polarizasyona neden olur.

Işık dalgaları elektrik ve magnetik alandan oluşur ve bu dalgalar optik frekansta ($\sim 10^{13}$ - $\sim 10^{17}$ Hz) sinüzoidal olarak değişir. Optik elektrik alana karşılık dielektrik ortamdaki yüklü parçacıkların hareketi bu nedenle salınım (oscillatory) şeklindedir. Bu salınımlar dipolleri oluşturur. Işığın manyetik alan etkisi çok zayıftır ve ihmal edilebilir. Yüksek optik frekans için (ultraviyole ve görünür bölge) elektronların hareketi çok önemlidir. Optik alana elektronların tepkisi bir potansiyel içersinde bir parçacığın verdiği tepki olarak düşünülebilir. Kütlesi (m) yükü ($-e$) olan bir elektronun yay gibi ana iyonla bağlı olduğunu farzedelim (şekil 3.1).

$E(t)$ elektrik alanına karşı değişen elektron pozisyonu için hareket denklemi şu şekilde verilir;

$$m \left[\frac{d^2 x}{dt^2} + 2\Gamma \frac{dx}{dt} + \Omega^2 x - (\xi^{(2)} x^2 + \xi^{(3)} x^3 + \dots) \right] = -eE(t) \quad (3.1)$$

x esas pozisyon olan yerdeğistirme miktarı, Ω rezonans frekansı, Γ yavaşlama sabiti (damping constant). Sağ taraftaki terim uygulanan alan tarafından elektrona etkiyen kuvveti gösterir. Moment için $\xi^{(2)} x^2 + \xi^{(3)} x^3 + \dots$ anharmonik terimi ihmal ederek uygulanan elektrik alana olan tepkiyi ele alacağız.



Şekil 3.1 Görünen ışık frekansında değişken bir elektrik alana maruz bırakılan dielektrik ortamdaki bağlı yüklerin hareketini temsil eden şekil. İyonların hareketi elektronlara göre daha yavaş olmaları nedeniyle önemsizdir.

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) = \frac{1}{2} E_0 [\exp(-i\omega t) + \exp(i\omega t)] \quad (3.2)$$

ω optik frekans. (3.2)'yi (3.1)' de yerine koyarsak, yerdeğiştirme miktarı

$$x = \frac{-eE_0}{2m} \frac{\exp(-i\omega t)}{\Omega^2 - 2i\Gamma\omega - \omega^2} + c.c \quad (3.3)$$

şeklinde ifade edilir. c.c kompleks eşlenik.

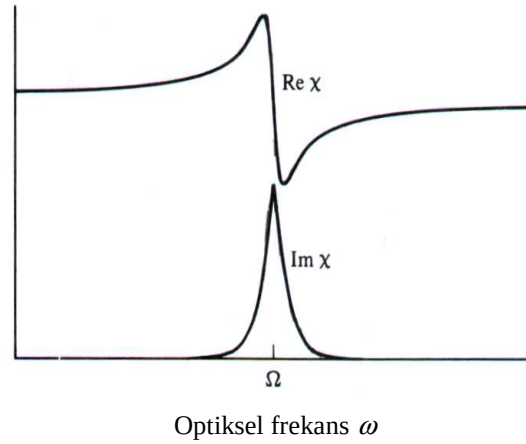
N tane elektrik dipol ortam içinde polarizasyona sebep olur $P = -Nex$. Polarizasyonun elektrik alana lineer bağımlılığı:

$$P = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi E_0 \exp(-i\omega t) + c.c \quad (3.4)$$

ile verilir. Burada, χ duygunluk (susceptibility);

$$\chi = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\Omega^2 - 2i\Gamma\omega - \omega^2} \quad (3.5)$$

ϵ_0 boş uzayın geçirgenliğidir. Elektrik dipoller gelen optiksel alanla aynı frekansta salınır, ortam içinde yayılır ve dalganın yayıldığı yolu değiştirirler. Eş(3.5)'in reel ve imajiner kısımları şekil(3.2)'de belirtilmiştir. Bu tanımlar ortamın lineer özellikleriyle uyumludur.



Şekil 3.2 Rezonans frekansı ω bölgesinde duygunluğun reel ve imajiner kısmının değişimi

Fizik de, fiziksel büyüklüklerden birinin bir diğerine olan bağılılığı çoğu zaman değerlerin belli bir limiti dahilinde bir yaklaşım şeklindedir. Bu durumda dielektrik ortamda yüklü parçacıkların hareketi yerdeğiştirme küçük olduğu sürece uygulanan alanla lineer olduğu düşünülebilir. Büyük yerdeştirmeler için geriçağrıcı kuvvet x 'le nonlineerdir. Mekanik işlemlerden de bilindiği gibi basınç yada çekme çok büyük olduğunda yayın bozulduğu görülür. Bu nonlineerlik anharmonik geriçağrıcı kuvvet ($m(\xi^2 x^2 + \xi^3 x^3 + \dots)$) katkılarını içeren terimlerinde katılmasıyla denk(3.1)'de gösterilmiştir. Burada ξ^2 , ξ^3 sabittir. Şekil(3.3)'de polarizasyona neden olan anharmonik tepkinin nasıl olduğunu gösterebiliriz. Bu polarizasyon uygulanan alanın büyüklüğüne bağlı olarak lineer yada nonlineer olarak ele alınabilir. (b) durumunda polarizasyon dalgalarının spektral analizi girişte ω frekansında salınan büyük bileşene katkı olarak bu dalgaların önemli ölçüde harmonik frekans bileşenlerini de içerdiğini göstermektedir. Bu tepki tamamiyle lineer olmayan elektriksel devrelerde

sinyalin harmonik bozunumu olarak bilinir. Elektromanyetik teoriden bilindiği gibi salınan elektrik dipolleri salınım frekansında bir ışıyım alanı yayarlar. İkinci harmonik frekansı 2ω da salınan polarizasyonun bileşeni 2ω frekansında bir ışıyım alanı yayar. Bu işlem ikinci harmonik üretimdir (second harmonic generation).

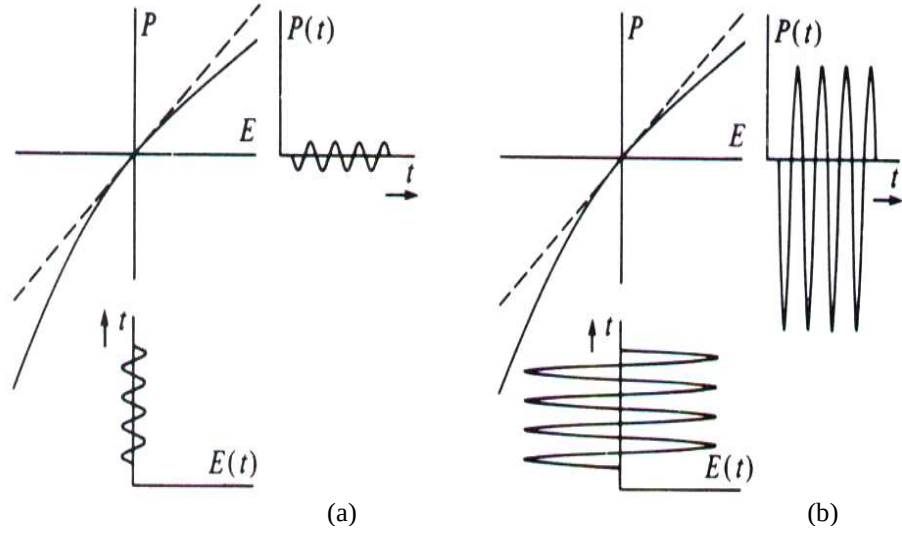
Anharmonik terimler katıldığında Eş(3.1)'deki hareket denklemi için kesin bir çözüm yoktur. Fakat anharmonik tepkiler harmoniklere göre küçük olduğunda E'de x'i kuvvet serisine açarak yaklaşımın mertebelerini bulabiliriz. Aynı şekilde polarizasyonda seriye açabiliriz.

$$P = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots) \quad (3.6)$$

Meydana gelen nonlinear optiksel olaylardan bazılarını ele alacağız. Öncelikle atomların ve moleküllerin nonlinear özelliklerini belirlemek için yüksek bir optiksel alana ihtiyaç vardır. Elektronların anharmonik hareketinden kaynaklanan önemli nonlinearlikler için, elektronlarla iyonları birbirine bağlayan iç alan E_a 'ya oranla ihmal edilemeyecek kadar büyük alana ihtiyacımız vardır. İç alanın yaklaşık değeri $E_a \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ Vm}^{-1}$ 'dir. Bu büyüklükte optiksel alan elde etmek için gelen şiddetin $\sim 10^{14} \text{ Wcm}^{-1}$ olmalıdır. Bu büyüklükteki şiddetler mod-kilitli lazerler tarafından oluşturulabilen güçlü pikosaniye atmaların odaklanmasıyla elde edilebilir. Ancak çoğu nonlinear optik etkinin gözlenebilmesi için bu kadar yüksek şiddetlere gerek yoktur. Sebeplerinden biri indüklenen dipoller eş fazlı salındığından bunların oluşturdukları alan birbirlerinin gücünü arttırdığından toplam şiddetin büyük olmasına neden olurlar. Nonlinear optikte bu yapıcı girişimin şartı faz eşleşmesi olarak bilinir. Örneğin faz eşleşmesi koşulları altında ikinci harmonik üretim için karakteristik uzunluk $L \sim \lambda E_a / E$ dir. burada E gelen optik alandır.

Bazı nonlinear işlemlerin gözlenebilmesi için gerekli olan şiddet, salınan dipollerin rezonans frekansına yakın olan bir veya daha fazla optiksel frekansların seçimiyle büyüklük bakımından azalabilir. Buna rezonans çoğalması denir. Anharmonik salıncı modeli, dielektrik malzemelerde ikinci ve üçüncü mertebeden nonlinear duygunluklar Bloembergen (1965), Garrett ve Robinson (1966) tarafından ortaya konmuştur. Burada ultraviyole ve görünür bölge de bulunan optiksel

frekanslarla ilgileneceğiz. Böylelikle elektron salınım hareketi özellikle önemli olacaktır. Düşük frekanslarda elektronların hareketi daha önemli hale gelir (gazlarda ve sıvılarda moleküllerin titreşimi ve rotasyonu, katılarda iyonik örgü titreşimleri). Bazı sıvılarda ışık demetinin etkisiyle moleküller yeniden düzenlenebilir ve bu nonlinear optikte önemli bir role sahiptir.



Şekil 3.3 E elektrik alan altında nonlinear etkinin polarizasyona bağlılığı. Girişe uygulanan küçük alanlar için (a) P lineerlikten pek fazla ayrılmamaktadır. Büyük alanlarda (b), Polarizasyon bozunmuş bir dalga formu içerir.

3.1. Kuadratic Polarizasyondan Kaynaklanan Etkiler

Kuadratic polarizasyon $P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2$ frekansların toplam veya fark üretimini içeren tüm karışık kavramlara neden olur. Uygulanan optiksel alan yalnızca bir ω içerdiğinde quadratic polarizasyon statik bir terim içerir ve bu terim iki katında salınmaktadır. Statik polarizasyon ortamda dc elektrik alan üretir. Böylece optiksel kırınım etkisine sahip oluruz. Daha önce gördüğümüz gibi uygulanan frekansın iki katında salınan polarizasyon ikinci harmonik üretime neden olarak ortamda yayılır. Uygulanan optiksel alan iki frekans içerdiğinde daha fazla etki meydana gelir. Bunun en basit durumu optiksel bir dalgayı dc bir alan içersinde ortama gönderdiğimizde

frekanslardan birini sıfır yapmakla gerçekleşir. Bu durumda quadratik polarizasyon üretilen optiksel ve dc alanlarla orantılı bir terim içerir. Böylece, polarizasyonun içinde büyüklüğü dc alanla orantılı optiksel alana lineer ekstra bir terim daha meydana gelir. Optiksel dalga üzerine bunun etkisi $\chi^{(1)}$ 'in dc alanla orantılı bir miktar kadar değişmesine eşit olan ekstra bir terimdir. Böylece optiksel frekansta kırınım dc alana bağlıdır. Bu optiksel modülatörlerde kullanılan lineer elektro-optik (yada Pockels) etkisidir. Nonlineer optik çerçevesinde tasvir edilen elektro-optik etkiler bizim nonlineer etkilerimizi gözleyebilmemiz için gerekli olan şiddet aydınlanması dışındadır. Gerçekte 1893'de Pockels etkisinin keşfi 70'li yıllarda lazerin keşfine ön ayak olmuştur.

Kuadratik polarizasyondan kaynaklanan en ilginç kavram parametrik yükseltgenmedir. Bu etki güçlü bir optiksel alanda ortalama ω_s frekanslı küçük bir optiksel sinyal gönderdiğimizde meydana gelir. Burada güçlü alanın (pump alanın) frekansı ω_p dir. Pump ve sinyal, idler alanı adı verilen $\omega_I = \omega_p - \omega_s$ frekanslı bir alan üretirler. Bu alan pump ve sinyal alanların üretimiyle doğru orantılıdır. Daha sonra idler polarizasyonda bir terim meydana getirebilmek için pumpla etkileşir. $\omega_p - \omega_I = \omega_s$, bu frekans farkı alan sinyaline ve pump şiddetine bağlıdır (pump alanın karesine). Böylece bu çift etkinin sonucu olarak alan sinyaline paralel toplam polarizasyonda ekstra bir terim meydana gelir. Bunun sinyal alanı üzerine etkisinde bu ekstra terim pump şiddetiyle orantılı $\chi^{(1)}$ miktarı kadar değişime eşittir. Bu etkiye parametrik etkileşim denir. Çünkü pump alanı pump frekansında $\chi^{(1)}$ parametresinin frekansı modülasyonu olarak ele alınabilir. Parametrik etkileşim faz eşleşmesi gerçekleştiğinde daha güçlü hale gelir ve sırasıyla ω_s , ω_I , ω_p frekanslarındaki dalgalar için yayılım sabitleri k_s , k_I , k_p şu koşulu sağlar; $k_s + k_I = k_p$. Bu durumda güç hem sinyalin hem de idler dalgalarının yükseltilmesi yararına pump dalgadan uzaklaştırılır. Bu etki parametrik yükselteçler, tünelleyebilir kaynaklar ve salıncılar gibi optiksel cihazlar için önemlidir.

$\chi^{(2)}$ ortamda merkezi simetri varsa sıfırdır. Bu ortamlarda zıt doğrultular birbirine tamamiyle eşittir. Bu yüzden optiksel elektrik alan ters çevrildiğinde

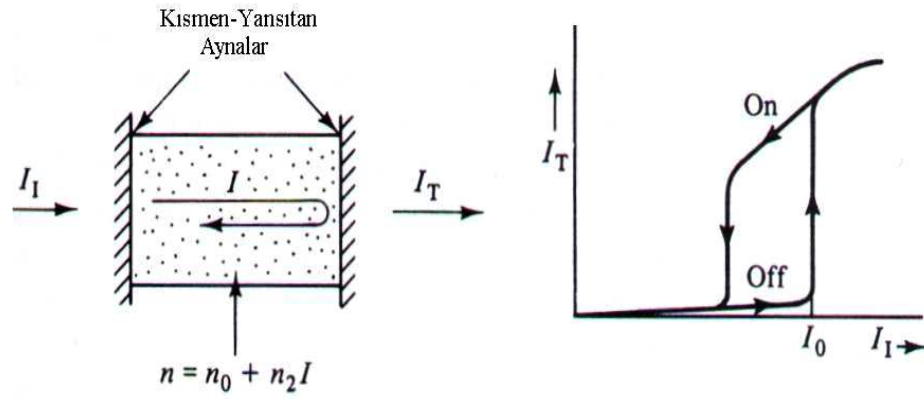
polarizasyonun işaretide değişmelidir. Böylece polarizasyonun seriye açılmış durumunda hiç çift etki kuvvet yoktur.

3.2. Kübik Polarizasyondan Kaynaklanan Etkiler

Merkezi simetriye sahip ortamın ilk nonlinear terimi kübik terimdir.

$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^{(3)}$ kübik polarizasyon üçüncü harmonik üretime ve buna bağlı olaylara sebep olur. En basit durum dc bir alan içersindeki ortama doğru optiksel bir dalga gönderildiğinde gerçekleşir. Bu durumda kübik polarizasyon dc alanın karesiyle orantılı kırılma indisinin değişimine neden olur. Bu birçok hızlı optiksel anahtarlarda kullanılan quadratik elektro-optik (veya dc Kerr etkisi) olarak bilinir. Bu üçüncü mertebeden süreçlerin en önemlisi şiddete bağlı kırılma indisidir. Nonlinear bir ortamı geçen optiksel bir alan, alanın üçüncü kuvvetiyle orantılı kübik bir polarizasyona neden olur. Bu polarizasyonun dalga üzerine etkisi $\chi^{(1)}$ 'in $\chi^{(1)} + \chi^{(3)} E^2$, olacak şekilde değişmesidir. Başka bir deyişle kırılma indisi optiksel şiddete bağlı olarak bir miktar değişir. Çoğu durumda şiddete bağlı kırılma indisi optiksel anahtarlama ve sinyal işlem cihazlarında kullanılan nonlinear etkinen temelidir. Bir anahtar cihazının şematik gösterimi şekil(3.4)'deki gibidir. Lineer optikte Fabry-Perot étalon, ışığın dalga boyu yüksek geçirgenliğe (transmission) sebep olacak şekilde $2nd = p\lambda$ rezonans şartını sağladığı sürece bu étalon gelen monochromatic demeti bloke eder. n iki ayna arasındaki malzemenin kırılma indisi, d aynalar arasındaki mesafe, λ dalgaboyu ve p sabit sayıdır. Fabry-Perot étalonun aynalar arasındaki uzayın nonlinear kırılma indisine sahip bir malzeme tarafından doldurulduğunu ayrıca gelen düşük şiddetler için dalgaboyu λ ve diğer parametrelerin rezonans koşulunu sağladığını düşünelim. Böylece geçen ışık demeti bloke olur. Bu kapalı durumdur. Şiddet yavaşça arttırıldığında kırılma indisi artar ve rezonans şartını sağlayan n değerine ulaşıldığında (şekil 3.4 $I_1 = I_0$) geçen demet açık durumdadır. Nonlinear Fabry-Perot étalonun detaylı analizi bazı durumlarda kararsız mantık devresi gibi çalıştığını gösterir (Gibbs, 1985). Burada cihazın çalışması ışık demeti tarafından kontrol edilir. Şuana kadar ki nonlinear etkilerin tamamı klasiktir. Fakat kübik polarizasyon kuantumsal olan bazı etkilere de neden olur. Bu durum güçlü bir ω_p pump dalgası içersinde bulunan ortama doğru ω_s frekanslı küçük bir

sinyal dalgası gönderildiğinde gerçekleşir. Frekanslar, $\omega_p \pm \omega_s = \Omega$ olacak şekilde seçilmelidir. Ω ortamın geçiş frekansıdır. $\omega_p + \omega_s = \Omega$ olduğunda geçiş eş zamanlı olarak bir pump fotonunun ve bir sinyal fotonunun soğurulması sırasında gerçekleşir. Her ne kadar sinyal frekansı ortamın geçiş frekansına eşit olmasada bu durumda iki-foton soğurulması (two-photon absorption) gerçekleşir (lineer soğurmayı tasvir eden $\chi^{(1)}$ 'in imajiner kısmı bir foton soğurma sürecinden kaynaklanır ve şekil(3.2)'de gösterildiği gibi sinyal frekansı ortamın geçiş frekansına yakın olduğu sürece bu değer sıfırdır). İki-foton soğurulması keşfedilen en yeni nonlinear optiksel etkilerden birisidir (Kaiser and Garrett, 1961).



Şekil 3.4 Optiksel anahtar davranışı kırılma indisi optiksel şiddete bağlı olan bir malzeme içeren Fabry-Perot etalonu tarafından gösterilmektedir. Geçen şiddet I_T nin girişteki şiddet I_1 göre değişim grafiği bir histeris göstermektedir. Bu histerisin anlamı I_1 nin bazı değerleri için açma ve kapama durumlarının kararsız olduğudur.

$\omega_p - \omega_s = \Omega$ olduğu diğer durumda geçiş bir pump fotonun soğurulması ve bir sinyal fotonun yayılımı ile eş zamanlı gerçekleşir. Bu giriş sinyalinin yükseltgenmesine neden olan Raman etkisidir. İki-foton soğurulması ve Raman etkisi kübik polarizasyondan kaynaklanır. İkinci ve üçüncü mertebeden nonlinear etkiler en çok ve en önemli kullanım alanlarına sahipken beşinci, yedinci ve diğer yüksek mertebeden etkileşimleri içeren işlemler de (process) gözlenmiştir (Reintjes, 1984).

3.3. Nonlinear Duygunluklar

Nonlinear polarizasyon şu şekilde yazabiliriz;

$$\mathbf{P}_{NL} = \mathbf{P}^{(2)} + \mathbf{P}^{(3)} + \dots \quad (3.7)$$

Burada

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 \quad (3.8)$$

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \quad (3.9)$$

·
·
·

Bu ifadeler SI birim sistemindedir, cgs birim sistemi için $\epsilon_0 = 1$ alınmalıdır. Yukardaki eşitliklerde alanın, farklı frekanstaki birçok alanın süperpozisyonu olan toplam uygulanan alan olduğuna dikkat edilmelidir. $\chi^{(n)}$ n . mertebeden dielektrik tepkidir ve rankı $(n+1)$ olan tensördür. Toplam alan Fourier açılımı ile bileşenlerine ayrıldığında nonlinear polarizasyon çeşitli frekansların kombinasyonunda salınan terimleri içerir. Örneğin, eğer toplam alan ω_1 ve ω_2 frekanslarında salınan iki dalgaya sahipse ikinci mertebeden nonlinear polarizasyonda $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 + \omega_2$, $\omega_1 - \omega_2$ ve sıfır frekansta dc terimler ile salınan bileşenlere sahip olacaktır. Benzer olarak ω_1 , ω_2 ve ω_3 frekanslarında salınan üç alanla üçüncü mertebeden polarizasyon $3\omega_1$, $3\omega_2$, $3\omega_3$, $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3$, $\omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ frekanslarla salınacaktır.

ω_1 , ω_2 , $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ frekanslarında salınan alanların varlığından dolayı ω_3 frekansında salınan ikinci mertebeden bir polarizasyon düşünelim. Kompleks polarizasyon genliğinin i . polarizasyon genliğinin i . kartezyen bileşeni şu şekilde ifade edilir;

$$P_i^{(2)}(\omega_3) = \varepsilon_0 D^{(2)} \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (3.10)$$

$D^{(2)}$ ayırdedilebilir alan için iki, ayırdedilemez alan için bir alınır. $\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ ikinci mertebeden (kompleks) dielektrik tepki yada ikinci mertebeden duygunluk Fourier transformudur. Eş(3.10)'nin formu ω_1 ve ω_2 frekanslarının eşit olmasını veya eşit büyüklükte ve zıt işaretle olmasını sağlayabilir. Bu durumda yalnızca bir alan vardır ve dejenerasyon faktörü hesaba katılmalıdır. Dejenerasyon faktörünün belirlenmesi alanların fiziksel olarak ayırdedilebilir olup olmamasına bağlıdır. Aynı frekanslı iki alan eğer farklı yönlerde hareket ediyorsa fiziksel olarak birbirlerinden ayılabilmektedirler. Ayrıca farklı frekansa sahip olup da reel alanın negatif frekanslı kısmı pozitif frekanslı kısmından ayrılabilir olduğu düşünülebilir. Negatif frekanslar için çok hızlı değişen alanlar gerçek matematiksel büyüklükler olduğundan $E(-\omega) = E^*(\omega)$ 'dir. Böylece, eğer $\omega_1 = \omega$ ve $\omega_2 = -\omega$ ise ikinci mertebeden polarizasyon şu şekilde yazılır;

$$P_i^{(2)}(0) = 2\varepsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(0; \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k^*(\omega) \quad (3.11)$$

Bu polarizasyon optiksel yansıma olarak bilinen ve optiksel dalga şiddetinin nonlineer ortamda dc bir polarizasyon meydana getirdiği durumdur. Bu eşitliklerde alan büyüklüğünün çok hızlı değişen uzay bileşenlerine sahip olduğu unutulmamalıdır. $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ gibi üç frekans varsa $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ frekansında üçüncü mertebeden polarizasyon

$$P_i^{(3)}(\omega_4) = \varepsilon_0 D^{(3)} \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) \quad (3.12)$$

ile verilir. Burada dejenere faktörü, alanlar ayırdedilemiyorsa 1, iki alan ayırdediliyorsa 3, bütün alanlar ayırdediliyorsa 6 alınır. Üçüncü mertebeden polarizasyonun bu formu $\omega_1+2\omega_2$ yada $2\omega_1-\omega_2$ gibi iki alanın varlığında bile çeşitli frekans kombinasyonları içinde geçerlidir. Dejenere faktörü, toplam alanın seriye

açılırken görünen Fourier bileşenlerine ulaşmak için farklı sayıda yolların bulunmasından kaynaklanır. Örneğin $3\omega_1$ frekansının üretimi için yalnızca bir yol vardır ($E(\omega_1)E(\omega_1)E(\omega_1)$). Fakat $2\omega_1 - \omega_2$ frekansını üretmek için üç farklı yol vardır ($E(\omega_1)E(\omega_1)E^*(\omega_2)$, $E(\omega_1)E^*(\omega_2)E(\omega_1)$ ve $E^*(\omega_2)E(\omega_1)E(\omega_1)$). Bu nedenle dejenere faktörü cebirdeki pascal üçgeninin katsayılarına bağlıdır. Eşitliklerde, dejenere faktörünün kullanımı duygunluk tensörünün katkısız simetrisine bağlıdır.

3.3.1. Nonlinear Duygunluğun Simetri İlişkisi

Simetri, eş(3.10) ve eş(3.12)'deki alan genliklerinin ($E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)$) üretim sıralarının arasında fiziksel bir farkının olmayışından kaynaklanır ($E_j(\omega_1)E_k(\omega_2) \leftrightarrow E_k(\omega_2)E_j(\omega_1)$). Bu alanların üretim sırasını değiştirmek nonlinear polarizasyonun i .bileşenin işaretini ve büyüklüğünü etkilemeyecektir. Nonlinear duygunluk bu simetriyi yansıtır. Fakat bu yerdeğiştirmede frekansın ve kartezyen koordinatlarının alt indislerinin eş zamanlı değiştiğine dikkat edilmelidir. $E_x(\omega_1)E_y(\omega_2)$ üretimini $E_x(\omega_2)E_y(\omega_1)$ ile değiştirmek nonlinear polarizasyonu değiştireceğinden yukarıdaki ifade özellikle önemlidir (eğer iki alanda ortogonal bir şekilde polarize ise). Simetri özelliği şu şekilde ifade edilir (üçüncü mertebeden duygunluk);

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi_{ikjl}^{(3)}(-\omega_4; \omega_2, \omega_1, \omega_3) = \chi_{ilkj}^{(3)}(-\omega_4; \omega_3, \omega_2, \omega_1) \quad (3.13)$$

Başka bir deyişle eğer alt indisler $\{jkl\}$ permütasyonu yapıldığında bunlara karşılık gelen alt indisler de $\{123\}$ pertürbe edildiğinde duygunluk değişmeden kalacaktır. Bu frekanslardan herhangi biri negatif olsada geçerlidir. Aynı ilişki ikinci mertebeden ve diğer mertebeler içinde geçerlidir. Buna katkısız pemütasyon simetrisi denir.

Duygunluk **d**-katsayısı adı verilen bir tensörle ifade edilebilir.

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (3.14)$$

Ayrıca katkısız permütasyon simetrisi son iki alt indisi bağlamak için kullanılır ve şu şekilde yazılır; $d_{ijk} \rightarrow d_{il}$. Hatta aşağıda gösterildiği gibi harfler yerine sayılar yazılarak alt indisler yazılır.

i: x 1	jk: xx	l: 1	(3.15)
y 2	yy	2	
z 3	zz	3	
	yz = zy	4	
	xz = zx	5	
	xy = yx	6	

Örneğin $d_{xyz} = d_{xzy} = d_{14}$ ve $d_{zxx} = d_{31}$ gibi. Bu notasyon sayesinde d katsayıları 3x3x3 lük bir tensörden çok 3x6 lık bir matris şeklinde ifade edilebilir. Eş(3.10)'deki nonlinear polarizasyonda bu katsayıları kullanmak için yalnızca χ_{ijk} yerine $2d_{il}$ yazılır.

Permütasyon simetrisinin diğer bir formu nonlinear duygunluğun kuantum mekaniksel olarak hesaplandığında görülebilir. Bu genellikle yoğunluk matris (density matrix) metodu ile yapılır [R. W. Boyd, 1992]. Genellikle üçüncü mertebeden duygunluk şu şekilde gösterilir;

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi_{jikl}^{(3)*}(-\omega_1; \omega_4, -\omega_2, -\omega_3) = etc \quad (3.16)$$

öncelikle duygunluğun kompleks eşleniği alındığında tüm frekansların yalnızca işareti değişir. Bu, hızla değişen nonlinear polarizasyonun reel matematiksel büyüklük olmasından kaynaklanır. Kartezyen alt indislerinin herhangi bir permütasyonu için bunlara karşılık gelen frekans alt indisleri de pertürbe edilirse duygunluk değişmez. Frekansların tümü (-1) ile çarpılıp duygunluğun kompleks eşleniği de alınırsa yine duygunluk değişmez. Bu sonuç farklı fiziksel işlemlerden kaynaklanan duygunlukların birbirine bağlı olduğunu gösterir. Eş(3.16)'de üçüncü mertebeden duygunluk için, toplam-frekans üretimi (sum-frequency generation) $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ ile fark-frekans üretimi (difference-frequency generation)

$\omega_1 = \omega_4 - \omega_2 - \omega_3$ arasında bir ilişki vardır. Eş(3.16) herhangi bir permütasyon için geçerli olup tüm mertebelere genelleştirilebilir.

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) = \chi_{kjl}^{(2)*}(-\omega_2; -\omega_1, \omega_3) = etc. \quad (3.17)$$

Yukardaki eşitlikler duygunluklar kompleks olduğu sürece genellikle geçerlidir. Bu herhangi bir tek frekans veya frekansların kombinasyonu malzemenin doğal rezonans frekansına yakın olduğunda önemlidir. Fakat çoğu uygulamalarda bütün frekanslar ve bu frekansların kombinasyonu malzemenin doğal frekansından uzaktır. Bu nedenle duygunluklar reel büyüklükler olarak ele alınır ve herhangi bir duygunluk kendi kompleksine eşittir. Bu durumda eş(3.16) şu şekilde yazılır;

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi_{jikl}^{(3)}(-\omega_1; \omega_4, -\omega_2, -\omega_3) = \chi_{kjil}^{(3)}(-\omega_2; -\omega_1, \omega_4, -\omega_3) = etc \quad (3.18)$$

Böylece duygunlukların reel olması koşulu altında (tüm frekanslar rezonans frekansından uzak) kartezyen setinde $\{ijkl\}$ alt indislerin ve bunlara karşılık gelen frekans setinde $\{4123\}$ alt indislerin eş zamanlı olarak pertübe edilmesi duygunlukları değiştirmez. Yukarda açıklandığı gibi $-\omega_4 + \omega_3 + \omega_2 + \omega_1 = 0$, $-\omega_2 - \omega_1 + \omega_4 - \omega_3 = 0$ buna tam permütasyon simetrisi denir. Bu simetri tüm mertebelerde geneldir.

Diğer bir simetri ise duygunluklar ilgilenilen frekans bölgesinin üstünde ihmal edilebilir bir dispersiyon gösterdiğinde ortaya çıkar. Böylece malzeme frekansından uzakta bulunan tüm frekanslara ilaveten bu simetri bu frekansların arasında hiçbir rezonansın olmamasını gerekli kılar. Bu $\omega_2 > \omega_3$ olduğunda ve malzemede ω_1 ile ω_2 arasında bir soğurma olduğunda geçerli değildir. Dispersiyon ihmal edildiğinde frekanslara karşılık gelen kartezyen alt indisleri permute edilmeden bu frekanslar serbestçe permute edilebilir veya tam terside yapılabilir. Duygunluk değişmez. Bu Kleinman simetrisi olarak bilinir.

Nonlinear duygunluklar malzemenin yapısal simetrisini de yansıtır. Bu ortamı tasvir etmek için kullanılan tensörlerin sıfırdan farklı bileşenlerin sayısını azalttığı için oldukça önemlidir. Bunun önemli sonuçlarından biri ters (inversion) simetri merkezine sahip tüm malzemelerde görülür (izotropik sıvılar ve 432 simetri sınıfına dahil kristaller). Çift mertebeden duygunluk tensörüne sahip tüm elemanlar sıfıra eşittir. Böylece çift mertebeden nonlinear işlemlerin hiçbiri bu tip malzemelerde görülmez.

Üçüncü mertebeden duygunlukların yapısı her bir simetri sınıfı içinde belirtilmiştir [Y. R. Shen, 1984]. Merkezi simetriye sahip malzemeler için üçüncü mertebeden duygunluğun sıfırdan farklı elemanları Tablo(3.1)'de verilmiştir.

Duygunluk tensörlerinin diğer basitleştirme özellikleri malzemenin simetri özelliklerine bağlıdır (rotasyon eksen, ayna-düzlem simetrisi vb.). Tablo 3.2'de çeşitli simetri sınıfına dahil **d** matrisleri verilmiştir. Çoğu durumda elemanlar sıfırdır yada ± 1 katlarına eşittir. Kleinman simetrisinin geçerli olduğu matris yapısında bu tabloda verilmiştir [R. L. Sutherland, 1996].

Tablo 3.1 Merkezi simetrik ortamlar için üçüncü mertebeden duygunluğun formu

$$\begin{aligned} \chi_{xxyy}^{(3)} &= \chi_{yyxx}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{yyzz}^{(3)} = \chi_{zzyy}^{(3)} \\ \chi_{xyxy}^{(3)} &= \chi_{yxyx}^{(3)} = \chi_{xzzz}^{(3)} = \chi_{zzzx}^{(3)} = \chi_{yzyz}^{(3)} = \chi_{zyzy}^{(3)} \\ \chi_{xyyx}^{(3)} &= \chi_{yxxy}^{(3)} = \chi_{xzzz}^{(3)} = \chi_{zzxz}^{(3)} = \chi_{yzzz}^{(3)} = \chi_{zyyz}^{(3)} \\ \chi_{xxxx}^{(3)} &= \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} \end{aligned}$$

Diğer tüm bileşenler sıfıra eşittir. Sadece üç tane sıfıra eşit olmayan bağımsız bileşen vardır ve

$$\chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$$

Tablo 3.2. Farklı simetri sınıfları için $\mathbf{d}$ matrisinin formu

Simetri sınıfı	Genel Durum	Kleinman Simetrisi
Biaxial kristaller		
1	$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{pmatrix}$
2	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{34} & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & d_{23} & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{23} & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$
M	$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & d_{35} & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & 0 & d_{13} & 0 \end{pmatrix}$
222	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$
$mm2$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
Uniaxial kristaller		
3	$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & -d_{14} & -d_{11} \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & -d_{11} \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
$3m$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
$\bar{6}$	$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$

Tablo 3.2. Devamı

Uniaxial Kristaller											
$\bar{6}m2$		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				
6,4		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{14} & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				
6mm,4mm		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				
622,422		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				
$\bar{4}$		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -d_{15} & d_{14} & 0 \\ d_{31} & -d_{31} & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -d_{15} & d_{14} & 0 \\ d_{15} & -d_{15} & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$				
32		$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				
$\bar{4}2m$		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$				
Isotropik Kristaller											
$\bar{4}3m,23$		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix}$				
432		$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$					$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$				

3.4. Nonlinear Kırılma İndisi

Nonlinear optiğin en önemli kavramlarının çoğu nonlinear kırılma indisinden kaynaklanır. Bu durum birçok uygulamanın doğmasına neden olur. Ayrıca bu kavram chaus teorisi ve quantum optiği gibi temel bilimsel araştırmaların temeli haline gelmiştir. Çeşitli fiziksel etkiler nonlinear kırılma indisine katkıda bulunurlar. Genellikle optiksel dalgalardan kaynaklanan, ortamın kırılma indisinin uzaysal dağılımının veya kırılma indisinin değişimi olarak bu kavram tanımlanabilir. Bu genel tanımın altına giren birçok etki vardır.

3.4.1. Optiksel Kerr Etkisi

Bu etki üçüncü mertebeden nonlinear polarizasyonla direk ilişkilidir. İndisteki değişim optiksel elektrik alan karesinin zaman ortalamasıyla orantılıdır, $\langle \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \rangle$. Yani indisteki değişim optiksel şiddete lineer olarak bağlıdır.

3.4.2. Lokal Olmayan Etkiler (Nonlocal Effects)

Bu durumda yine indis değişimi alanın veya şiddetin zaman ortalamasına bağlıdır. Fakat sebebi, ortamda bulunan uzun mesafeli dizilme veya alandaki eğimdir (gradient). Gradient, örneğin odaklanmış bir demet veya girişim deseni oluşturan eş fazlı (coherent) demetlerin süperpozisyonuyla oluşturulabilir. Uzun mesafeli dizilme sıvı kristallerde görülür [I. C Khoo and S. T. Wu, 1993]. Eğer bir molekül elektromanyetik dalgadan kaynaklanan bir kuvvetle karşılaşırsa bu malzemede iç molekül etkileşimleri moleküllerin bu kuvvetten etkilenmesine sebep olur.

3.4.3. Doyum (Saturation) Etkisi

Bu tip bir etki de indisteki değişim optiksel enerjinin ortam tarafından soğurulmasıyla ilgilidir. Bu durumda optiksel kayıplar söz konusudur. Yeterince küçük şiddetler için indis değişimi yaklaşık şiddetle orantılıdır.

3.4.4. Ortamın Fiziksel Etkilerindeki Değişiklikler

Bazı durumlarda yoğun bir optiksel dalga ortamın fiziksel özelliklerine bağlı değişikliklere neden olur. Örneğin sıcaklık veya konsantrasyon gibi. İndis yoğunlukla şiddetle orantılı değişirken akıya (fluence) da bağlıdır.

3.4.5. Çoklu Etkiler (Cascading Effects)

Kırılma indisindeki etkin bir değişim ikinci mertebeden etkiler veya lineer ve ikinci mertebeden etkilerin kombinasyonundan meydana gelebilir. İlk söylediğimize örnek, genel ikinci harmonik üretimde veya frekans karıştırma işleminde (frequency mixing process) gelen dalganın optiksel fazındaki değişimdir. Foto kırıcı etki ise ikinci söylediğimize örnektir. Bu etkileri ortaya çıkaran işlemler de indisteki değişimin şiddetin büyüklüğünden çok şiddetin uzaysal modülasyonuna bağlıdır. Nonlinear kırılma indisi teknolojik ve bilimsel yönden çok önemlidir. Aşağıda belirtilen uygulamalar en önemlileridir [R. L. Sutherland, 1996].

- Nonlinear spektroskopi
- Optiksel bozuklukların düzeltilmesi
- Optiksel anahtarlama
- Optiksel mantık kapıları
- Optiksel veri işleme
- Optiksel iletişim
- Optiksel köreltme
- Pasif lazer mod kitlemesi
- Dalga kılavuzu anahtarları ve modülatörleri

Bu uygulamalar nonlinear kırılma indisine bağlı birçok yeni kavramın ortaya çıkmasına sebep olmuştur.

Nonlinear kırılma indisi istenmeyen faz kaymaları ve optiksel hasar gibi zararlı etkilere neden olabilir. Bu deneysel veya uygulamalarda önemlidir.

3.5. Tanımlamalar ve Notasyonlar

Nonlinear kırılma indisinin şiddete bağıllığı şu denklemlerle verilir;

$$n(\mathbf{r}, t) = n_0(\mathbf{r}, t) + \Delta n[I(\mathbf{r}, t)] \quad (3.19)$$

Bu eşitlik düşük şiddetlerde kırılma indis değişiminin şiddete bağıllığını göstermektedir. Bu olayın çoğu izotropik malzemelerde görülür.

3.5.1. Kerr Tipi Ortam

Bu durumda nonlinear kırılma indis değişimi

$$\Delta n = n_2 \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle \quad (3.20)$$

Burada n_2 nonlinear indis katsayısı, $\langle \rangle$ parantesi ise en az bir optiksel döngü üzerinden zaman ortalamasını göstermektedir. Elektrik alanın ($\mathbf{E}$) hızlı değişen osilatör davranışını içerdiği ve toplam real optiksel alan olduğu hatırlanmalıdır. Optiksel frekanslarda bu salınımlar gözlenemeyecek kadar hızlıdır. Yalnızca zaman ortalamalı etki gözlenebilir. Böylece nonlinear kırılma indisi zamanla yavaş değişen $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ kompleks genliğe bağlıdır. Bu noktada eş(3.20) kompleks notasyonda reel alanı tasvir etmek için kullanılan yaklaşıma bağlı olacaktır. Elektrik alanda nonlinear polarizasyonun kuvvet serisine açılmasının ardından sonuç $\Delta n = 2n_2 |\mathbf{E}|^2$ olacaktır. Bazı kitaplarda alan şu şekilde de ifade edilir;

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{-i\omega t} + c.c$$

Bu notasyonla eş(3.20)'nin sonucu $\Delta n = (1/2)n_2|\mathbf{E}|^2$ dir. Alan için ve şiddet için yazılan eşitlikler uyumlu olduğu sürece her iki ifadede geçerlidir.

Örneğin ilk durum için $I = 2\varepsilon_0 n_0 c |\mathbf{E}|^2$ iken ikinci durum için $I = (1/2)\varepsilon_0 n_0 c |\mathbf{E}|^2$ dir. $I \propto |\mathbf{E}|^2$ olduğundan nonlinear indisi şiddet yardımıyla ifade etmek uygundur. Bu durumda indisteki değişim;

$$\Delta n = n'_2 I \quad (3.21)$$

şeklini alır. Burada n'_2 nonlinear şiddet indis katsayısıdır. n_2 şeklinde de ifade edilir. Nonlinear indis katsayısı nonlinear polarizasyonun üçüncü mertebeden açılımında görülen üçüncü mertebeden nonlinear uygunluğa bağlıdır. Üçüncü mertebeden polarizasyonun i . bileşeni ω frekanslı tek dalga için şu şekilde verilir.

$$P_i^{(3)}(\omega) = 3\varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l^*(\omega) \quad (3.22)$$

Bu nonlinear polarizasyon Eş(3.20)'de tasvir edilen self-induce (kendi kendine indüklenme) indis değişimine neden olur. Bu durumun diğer bir önemi ise ω' frekansında zayıf demet için ω frekanslı güçlü bir dalga için indis değişimine neden olmasıdır. Bu durumda üçüncü mertebeden polarizasyon şu şekli alır;

$$P_i^{(3)}(\omega') = 6\varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega'; \omega', \omega, -\omega) E_j(\omega') E_k(\omega) E_l^*(\omega) \quad (3.23)$$

Eş(3.23)'de tartışılan uygunlukların bütün frekansları farklı olduğundan dejenerasyon faktöründe farklıdır. Boyd tarafından belirtildiği gibi fiziksel olarak birbirinden ayırt edilebilen iki alan olduğu ve $\omega' = \omega$ olduğu sürece dejenerasyon faktörü 6 olacaktır [R. W. Boyd, 1992]. İki farklı fiziksel alan meydana getirebilmek için zayıf probe alanın pump alandan farklı yönde yayılması gerekir. İzotropik ortamın simetri özelliğinden üçüncü mertebeden uygunluğun sıfırdan farklı bağımsız bileşenleri tüm i ve j ler için χ_{iij} , χ_{ijj} , χ_{iji} şekildedir ve burada

$\chi_{iiii} = \chi_{iijj} + \chi_{ijij} + \chi_{ijji}$ dir. Tek lineer polarize demet veya iki paralel lineer polarize demet için n_2 ile χ_{iiii} orantılıdır.

Üçüncü mertebeden duygunlukda, off-diagonal (köşegen dışında) elemanların bulunması üçüncü mertebeden polarizasyon boyunca izotropik malzemelerde nonlinear olarak indüklenmiş çift kırıcılık (birefringence) olasılığını gösterir. Paralel olmayan lineer polarize iki demet için gerçekleşecektir. n_2 'yi üçüncü mertebeden duygunluğa bağlılığı [P. N. Butcher and D. Cotter, 1990] tablo(3.3)'de verilmiştir [R. L. Sutherland, 1996].

Tablo 3.3. n_2 ile $\chi^{(3)}$ arasındaki ilişki

	SI	cgs
Self-action Lineer Polarizasyon $\Delta n = 2n_2 E ^2$	$n_2 = \frac{3}{4n_0} \chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)$ $= \frac{3}{4n_0} (2\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)})$	$n_2 = \frac{3\pi}{n_0} \chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)$ $= \frac{3\pi}{n_0} (2\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)})$
Dairesel Polarizasyon $\Delta n_{\pm} = 2n_2^{cir} E_{\pm} ^2$	$n_2^{cir} = \frac{3}{2n_0} \chi_{xxyy}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)$	$n_2^{cir} = \frac{6\pi}{n_0} \chi_{xxyy}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)$

Lineer polarizasyon n_2 ve χ_{xxxx} terimleri yardımıyla yazıldığı gibi benzer şekilde n_2 , χ_{yyyy} veya χ_{zzzz} terimlerinin yardımıyla da yazılabilir. Bu ifadelerin hem nonlinear indis hemde üçüncü mertebeden polarizasyon için reel alanın kompleks notasyonda ifade edilme düşüncesiyle uyum içinde olduğu belirtilmelidir.

Dairesel polarize demet için nonlinear indis değişimi lineer polarize demetten daha zayıftır. Çünkü dairesel polarize demette nonlinear kırılma indisini duygunluk tensörünün yalnızca bir bileşenine bağlıdır. Bu indis değişimi hem sağa hemde sola polarize ışık için aynıdır.

3.5.2. Kerr Tipi Olmayan Ortam

Kerr tipi ortamda nonlinear kırılma indisindeki değişim optiksel şiddete lineer bağıllık gösterir. Bazı malzemeler de bu bağıllık basit değildir. Genellikle indis değişimi şiddetin fonksiyonudur.

$$\Delta n = f(I) \quad (3.24)$$

Yeterince küçük şiddetler için ortamın özelliklerine bağlı olarak eş(3.24) I 'nın kuvvet serisine açılabilir. İlk terimler I 'ya lineer olarak bağlı olacaktır. Böylece yeterince küçük şiddetler için ortam Kerr tipi olacak ve böylece indis değişimi n_2 terimi yardımıyla ifade edilebilecektir. Büyük şiddetler için bu mümkün değildir. Bunun bir örneği doyurulabilir soğurma gösteren ortamdır (ortamın soğurma katsayısı artan şiddetle azalmaktadır).

3.5.3. Bazı Şartlar Altında (Quasi) Kerr Tipi Ortam

Bu malzemelerde lineer indis değişimini şiddetin lineer bir fonksiyonu olarak belirtmek mümkündür. Yukarda düşük şiddetlerde Kerr tipi olmayan malzemeler için bunun örneği verilmişti. Diğer örnekler ise ortamda fiziksel değişikliklerin meydana geldiği durumlarda meydana gelebilir (enerjinin veya akının artması gibi). Ortama gönderilen optiksel dalganın enerjisinin artması kırılma indisinde değişime neden olur. Bazı durumlarda bu indis değişimini şiddetin lineer fonksiyonu olarak belirtmek mümkündür. Bu da ortamın Kerr tipi olduğunu gösterir. Bunun bir örneği termal nonlinearliktir. Başka bir örnek şiddetin, dalganın optiksel faz kaymasına bağlı olduğu ikinci mertebeden etkilerin arttığı durumdur. Bu ancak faz uyumlu olmayan ikinci mertebeden üretim için mümkündür. Faz kayması ortamın Kerr tipi olduğunu ifade eden şiddetle orantılı efektif indis değişimi yardımıyla ifade edilir.

3.5.4. Şiddet Modülasyon Etkileri

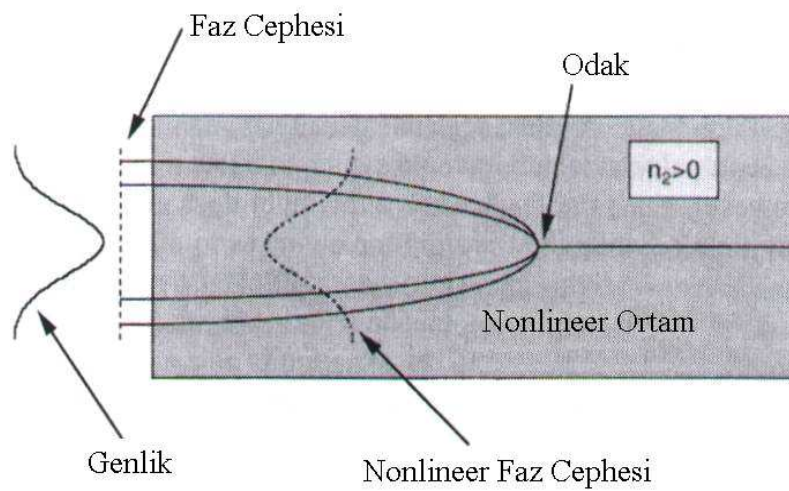
Bu durumda indis değişimi mutlak şiddete direk bağlı olmaktan çok şiddetin bağlı modülasyonuna bağlıdır. Bu nonlinear indis değişimi şu şekilde ifade edilir;

$$\Delta n(\mathbf{r}) \propto \frac{\delta I(\mathbf{r})}{I_0} \quad (3.25)$$

Burada I_0 şiddetin toplam uzaysal ortalaması ve δI ise şiddetin uzaysal olarak module edilmiş kısmıdır $I(\mathbf{r}) = I_0 + \delta I(\mathbf{r})$ dir. Bu tip bir etkinin örneği, foto kırıcı ortamdır.

3.6. Self- Focusing (Kendini-Odaklama)

Düzensiz şiddete sahip bir ışık demeti nonlinear kırılma indisli bir ortama girdiğinde self-focusing meydana gelir. Şekil(3.5)'de gösterildiği gibi nonlinear indis demetin şeklini takip ettiğinden, bir indis değişimi ortamda meydana gelir. Pozitif bir nonlinearlık için bu büyük bir indis anlamına gelir ve eksende, demetin kenarlarında gerçekleşen faz gecikmesinden çok daha büyük faz gecikmesi meydana gelir. Bu demetin odaklanmasını sağlayan pozitif bir merceğin oluşmasına sebep olur.



Şekil 3.5 Nonlinear ortamda demetin kendi kendine odaklanması

3.6.1. İnce Ortam

İnce ortamda, Gaussian bir genlik dağılımına ve düzlemsel faz cephesine sahip olan bir dalga şu şekilde bir indis değişimi meydana getirir:

$$n = n_0 + n_2^I I_0 \exp\left(\frac{-2r^2}{w^2}\right) \quad (3.26)$$

Burada I_0 eksendeki şiddettir. Eksenden çok uzak olmayan mesafeler için (paraxial yaklaşım) eksponansiyel kısım seriye açılabilir:

$$n \cong n_0 \left(1 - \frac{2n_2^I I_0 r^2}{n_0 w^2}\right) \quad (3.27)$$

Bu eşitlikteki gibi parabolik indisli bir ortamın odağa gelecek düzlemsel bir dalgaya neden olacağı gösterilebilir [A.Yariv, 1989]. İnce merceklerde ince bir ortamın varsayılması uygundur. Bu ortamın nonlineer odak uzaklığı

$$f = \frac{n_0 w^2}{4n_2^I I_0 L} \quad (3.28)$$

eşitliğiyle ifade edilir. Eksendeki şiddet arttıkça odak uzaklığının azaldığına dikkat edilmelidir. Ayrıca $n_2^I > 0$ ise mercek yakınsaklaşır, $n_2^I < 0$ ise ıraksaklaşır.

Eğer gelen demet sonlu bir faz eğrisine sahipse yukardaki formüller kesin değildir. Genellikle faz kayması demetle belirlir. TEM₀₀ Gaussian demet için

$$\Delta\varphi(z, r, t) = \frac{(2\pi/\lambda)n_2^I I_0(t)L}{1 + (z/z_R)^2} \exp\left[\frac{-2r^2}{w^2(z)}\right] \equiv \Delta\varphi(z, t) \exp\left[\frac{-2r^2}{w^2(z)}\right] \quad (3.29)$$

ile verilir. $w(z)$ z 'ye bağılı demet yarıçapı, $I_0(t)$ eksenindeki zamana bağılı şiddet, z_R Rayleight uzaklığıdır. z' gibi yeni bir konuma yayılan alan ($\Delta z = z' - z$) için eşitlikler

$$E(z', r, t) = E(z, 0, t) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi(z, t)]^m}{m!} \frac{w_{m0}}{w_m} \exp\left(-\frac{r^2}{w_m^2} + i\frac{kr^2}{2R_m} + i\theta_m\right) \quad (3.30)$$

$$\Delta\phi(z, t) = \frac{(2\pi/\lambda)n_2^I I_0(t)}{1 + (z/z_R)^2} \quad (3.31)$$

$$w_{m0}^2 = \frac{w^2(z)}{2m+1} \quad w_m^2 = w_{m0}^2 \left[g^2 + \left(\frac{\Delta z}{\Delta z_m} \right)^2 \right] \quad (3.32)$$

$$g = 1 + \frac{\Delta z}{z[1 + (z_R/z)^2]} \quad , \quad \Delta z_m = kw_{m0}^2/2 \quad (3.33)$$

$$R_m = \Delta z \left[1 - \frac{g}{g^2 + (\Delta z/\Delta z_m)^2} \right]^{-1} \quad \theta_m = \tan^{-1} \left[\frac{(\Delta z/\Delta z_m)}{g} \right] \quad (3.34)$$

şeklinde verilir. Eğer faz bozunumu zayıfsa sonsuz toplamda yalnızca birkaç terim ele alınmalıdır. Böylece son alan genliği ve bozunumu bulunabilir. n_2^I 'yı karakterize etmek için z-scan analizi yapılır.

3.6.2. Kalın Ortam ($n_2 > 0$)

Kalın ortamda demet, numune içinde odağa gelir. Bu durum hem malzeme üzerinde hem de demet üzerinde önemli etkiye sahiptir. Top-hat profilli cw demet üzerinde basit bir analiz yapılabilir. Demet kritik güç de bir dalga cephesi meydana getirir. $\wp_{cr2}$ adı verilen bu güç ifadesi

$$\wp_{cr2} = \frac{(1.22\lambda)^2 \pi \epsilon_0 c}{32n_2} \quad (SI) \qquad \wp_{cr2} = \frac{(1.22\lambda)^2 c}{128n_2} \quad (cgs) \quad (3.35)$$

ile verilir. Buna self-trapping (kendini-tuzaklama) adı da verilir. Verilen bir demet gücü için hem kırınım hem de self focusing demet alanına bağlı olduğundan ve $n_2^I > 0$ olduğunda biri diğerini ofsetleme eğilimi gösterdiğinden self-trapping şiddetten daha çok güce bağlıdır. Demet Gaussian bir profile sahip olduğunda analiz daha zordur. Fakat eksenden uzakta bulunmayan noktalar için yine paraxial yaklaşım yapılabilir ve self-trapping için kritik güç bulunabilir ($\wp_{cr1}$):

$$\wp_{cr1} = \frac{\epsilon_0 c \lambda^2}{8\pi n_2} \quad (SI) \qquad \wp_{cr1} = \frac{c \lambda^2}{32\pi^2 n_2} \quad (cgs) \quad (3.36)$$

ile ifade edilebilir. İki kritik güç arasında benzerlik vardır ancak $\wp_{cr1} < \wp_{cr2}$ 'dir.

$\wp > \wp_{cr2}$ için demet, eğer ortam yeterince kalınsa ortam içinde yıkıcı bir şekilde odaklanır. Paraxial yaklaşımla bu odak uzaklığı ($z_{f\infty}$) gelen düzlemsel bir dalga için

$$z_{f\infty} = \frac{\pi w_0^2 / \lambda}{[(\wp / \wp_{cr2}) - 1]^{1/2}} \quad (3.37)$$

ile hesaplanabilir (sonsuz alt indisi ortama gelen dalganın sonsuz bir eğrilik yarıçapına sahip olduğunu gösterir). $\wp \rightarrow \wp_{cr2}$ 'ye gittikçe odak uzunluğu self-trapping koşuluna uygun olarak sonsuza yaklaşır.

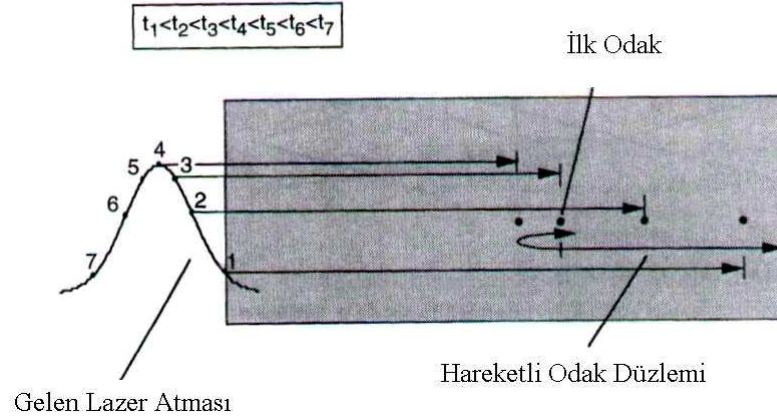
Eğer gelen dalganın fazı sonlu bir eğrilik yarıçapına (R) sahipse buna karşılık gelen odak mesafesi paraxiel yaklaşım altında z_f ifadesiyle belirlenir:

$$z_f = \frac{R}{(R/z_{f\infty}) - 1} \quad (3.38)$$

$R < 0$ gelen dalganın yakınsadığını $R > 0$ ise ıraksadığını gösterir. Böylece ıraksayan (yakınsayan) dalgada $z < z_{f\infty}$ ($z > z_{f\infty}$) odağa toplanacaktır.

Dawes ve Marburger [E. L. Dawes and J. H. Marburger, 1969] Gaussian demetler için tüm self-focusing demetlerin nümerik analizini yapmıştır. Bu kavramın iki kritik güçle karakterize edildiğini gösterdiler. $\wp_1$ paraxial yaklaşımda belirlenen $\wp_{cr1}$ 'dir. $\wp_2$ denilen ikincisi top-hat demet self-trapping analizinden elde edilen $\wp_{cr2}$ 'den nümerik olarak yalnızca %1 farklıdır. $\wp_1 < \wp < \wp_2$ bu aralıkta gelen optiksel güç için eksendeki şiddet, demet odağa geldikçe artar ve demet kırıldıkça azalır. $\wp > \wp_2$ olduğunda demet yıkıcı olarak çöker. Sıfır boyutta demetin çökmesi matematiksel sonuçtur. Fiziksel olarak bu gerçekleşmez. Bunun yerine demet çöktükçe şiddet o kadar büyür ki değer nonlinear olayların oluşmasına neden olur. Bu Raman saçılması, dielektrik kırınımı, plazma oluşumu ve lazer hasarı gibi kavramları içine alır. Böylece demetin daha fazla çökmesi engellenir.

Self-focusing iki seviyeli bir sistemde gerçekleştiğinde cw demet sonlu bir çapa çöker ve self-trapped demet gibi yayılır. Bu durumda demet şiddeti artsa bile nonlinear indis artmayacaktır. Bu iç sürünümlü bir mekanizma gibi davranır. Demet sabit bir yarıçapla kararlı bir seviyeye gelir. Shen [Y. R. Shen, 1984] tarafından da ortaya konulduğu gibi gerçekte self-trapping olarak görülen şey self-focusingin yarı kararlı seviyesinden dolayı ortamda hareket eden odağın geometrik yerinden başka birşey değildir. Şekil(3.6)'de gösterildiği gibi gelen atmada bazı noktalar odağa ilk gelirler. Atmadaki bu ilk noktalar daha uzun self-focusing mesafelerine sahiptirler. Bu yüzden odağa daha geç gelirler. Atmanın pikine daha yakın noktalar daha kısa self focusing mesafesine sahiptirler fakat orjinal noktadan daha geç varırlar. Böylece orjinal odak ikiye bölünmüş gibi görünür. Bir kısmı demete doğru hareket eder. Sonuçta geri hareket eden odak tur atar ve atmadaki geciken noktalar odağa yaklaştıkça geri hareket eden odak ileri doğru hareket eder. Odağın bu şekilde hareketi göze sürekli bir çizgi gibi veya self-trapped demet gibi görünür. Shen'nin belirttiği gibi geri dönen odağın hareket yönünü değiştirdiği dönüm noktasında, odak zamanın büyük bir çoğunluğunu harcar. Bu nokta lazer hasarının görüldüğü noktadır.



Şekil 3.6 Hareketli odağın izlediği yolun şematik gösterimi

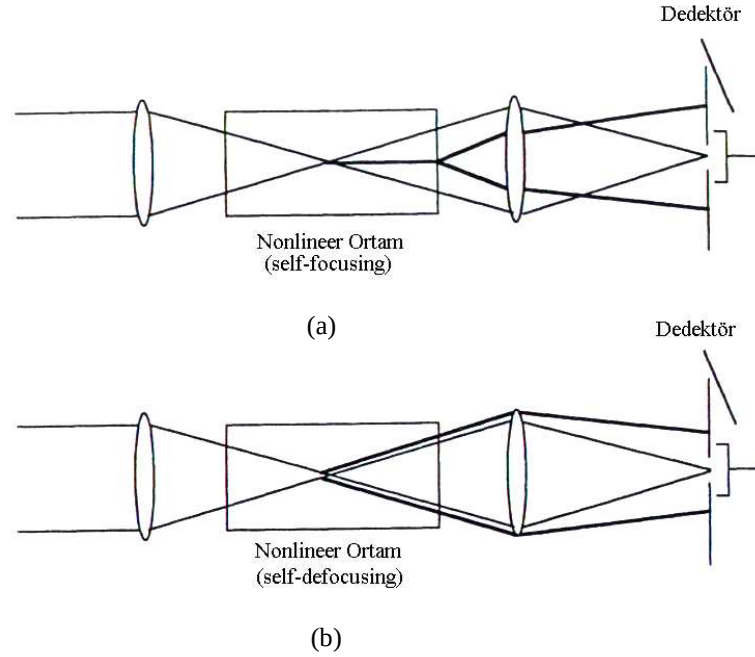
3.6.3. Kalın Ortam ($n_2 < 0$)

Negatif nonlinear kalın ortamlar için demet çökmekten çok negatif merceketkisinden dolayı ıraksar. Çoğu durum için sıcaklık arttıkça indis azalır. Böylece Gaussian demetin bir kısmı soğuran ortamda eksendeki indis, demetin kenarlarında daha küçük olur. Bundan dolayı demet ıraksar. Buna termal gelişim denir.

Negatif nonlinearlik rezonans sistemlerinde de görülür. Örneğin iki seviyeli bir sistemde frekans rezonansın altına ayarlandığında doyumdan dolayı kırılma indisi azalır. Böylece iki seviyeli bir gazda demet çökmesi ancak frekansın rezonans frekansından daha büyük bir frekansa ayarlanmasıyla görülebilir. Yarı iletkenlerde bant bükümü civarındaki soğurma için veya bazı durumlarda iki-foton soğurma için indis katsayısı çoğunlukla negatiftir. Bu durumlar termal gelişime benzer olarak kendini-ıraksamaya neden olurlar (odak bozunması).

3.6.4. Uygulamalar

Genellikle self-focusing lazer hasarına neden olduğundan istenmeyen bir durumdur. Fakat bunun bazı cihaz uygulamaları mevcuttur. Bunlardan en önemlisi optiksel sınırlamadır. Bu hem pozitif hemde negatif nonlineerlikler için şekil(3.7)'da gösterilmiştir. nonlineer ortam iki mercek arasında bulunur. Düşük yoğunluklu ışık ikinci mercek tarafından toplanır ve yarık yardımıyla dedekte edilir. yüksek şiddette ışık self-focusing meydana getirir. $n_2 > 0$ için bu demetin çökmesiyle sonuçlanır ve öyle bir faz bozunmasına neden olur ki ışık ikinci odak tarafından odaklanamazken yarık düzleminde defocuse olur. Böylece yarıktan dedektöre gelen güç sınırlanır ve dedektör yüksek ışıma şiddetinden korunur. Böyle optiksel sınırlayıcı CS_2 gibi malzemeler kullanılarak yapılmıştır. [W. E. Williams et al, 1984].



Şekil 3.7 Optiksel sınırlayıcılar kendi kendine odaklanma üzerine dayanır (a) $n_2 > 0$, (b) $n_2 < 0$

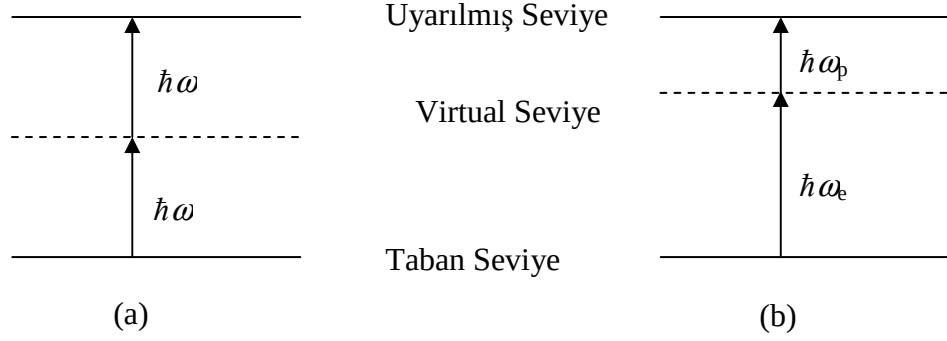
Negatif n_2 durumunda demet ara odakta hızla ıraksar. Sonuç olarak yarık düzleminde de-focus olmuş demet meydana gelir. Bu tip bir sınırlayıcının daha önceki örneklerle olan üstünlüğü koruma sağlamasıdır. Işık ortamın içerisinde daha az lazer hasarının ortaya çıkmasını sağlayacak şekilde düşük şiddetin oluşmasına neden olur. Bunu yaparken de ışık de-focus olur. Ortam katı ve hasar sürekli olduğunda bu önemli bir durumdur. Böyle bir sınırlayıcı nonlinear ortam olarak ZnSe'nin kullanıldığı pikosaniyelik atmalar için gösterilmiştir.

3.7. İki-Foton Soğurması

İki foton soğurma, güçlü lazer kaynaklarının gelişiminden kısa bir süre sonra, deneysel çalışmalar da ilk nonlinear optiksel olaylardan biri olarak gözlendi. İki-foton soğurması telekomünikasyon uygulamaları ve optiksel hesaplar için cihazların performansında çok önemlidir. Bütün optiksel anahtarlar, iki-foton soğurma ve nonlinear indis değişimlerine bağlı olarak minimize edilmelidir. İki-foton işlemlerini içeren nonlinear optik soğurmalar, yüksek hızlı optiksel sınırlayıcılar için özellikle önemlidir [M. G. Kuzyk and C. W. Dirk, 1998] Örneğin lazer atma koruma cihazları. Ayrıca iki-foton soğurma işleminin en geniş kullanım alanı kalıntıları tarihlemektir.

İki-foton soğurumu (TPA) iki fotonun eş zamanlı soğurulmasıyla taban seviyeden bir üst seviyeye geçişi ifade eder. Bu soğurma gelen bir ışığa veya alan sayesinde gerçekleşir. Bu sürecin gerçekleşmesinde tek foton soğurumundaki seçim kurallarından farklı kurallar geçerlidir. Böylece TPA spektroskopisi sistemlerin uyarılmış seviyelerini çalışmada lineer soğurma spektroskopisinin tamamlayıcısıdır. Şekil(1)'de iki farklı durumda gösterilmiştir. Birincisinde ω frekansında salınan iki foton yaklaşık 2ω frekansında geçiş yapmak için soğurulur. İkinci durumda ise ω_e ve ω_p frekanslarında ki optiksel alanlar yaklaşık $\omega_e + \omega_p$ rezonans frekansında her bir alandan bir foton soğurulur. Bu durumda ilk alan e alt indisiyle gösterilen uyarıcı demet olarak düşünülebilir. İkincisi ise p alt indisiyle gösterilip probe demet olarak ele alınabilir. Her iki durumda da ara seviye reel değildir (sistemin reel kararlı bir durumunu içermez). Böylece sistem eş zamanlı olarak iki foton soğurmalıdır. Bu durum süreci, optiksel şiddete hassas hale getirir. Her ne kadar geçiş reel bir ara

seviye içermese de çoğunlukla küçük bir miktar lineer soğurma meydana getirebilecek safsızlıklar bulunur. Bu soğurmanın son seviyeye geçişe katkıda bulunmadığı yalnızca ek bir kayıp mekanizması olarak hareket ettiği iyi anlaşılmalıdır. Ara duruma pompalanan tek bir fotonu içeren iki basamaklı soğurma uyarılmış seviye soğurması olarak tasvir edilir.



Şekil 3.8 İki-Foton Soğurumunun (TPA) sistematik şekli (a) Kendi kendine TPA (b) Pump-probe TPA

3.7.1. Tek Demetle İki-Foton Soğurması

Bu durumda ki nonlinear soğurma şiddetin karesiyle doğru orantılıdır. Optiksel kayıpları tasvir eden diferansiyel eşitlik aşağıda verilmiştir:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2 \quad (3.39)$$

Burada α lineer soğurma katsayısı, β iki-foton soğurma katsayısıdır.

TFA (β) katsayısı malzemenin karakteristiğini ifade eden makroskopik parametredir. Bazen TPA tesir kesiti σ_2 ile ifade edilen tek moleküler TPA özellikleride ilgi alanı olmuştur. β ile σ_2 arasında ki ilişki

$$\sigma_2 = \frac{\hbar \omega \beta}{N} \quad (3.40)$$

şeklinde verilir. N moleküllerin yoğunluğu, $\hbar \omega$ ise gelen optiksel alanda ki fotonların enerjisidir. TPA katsayısı ayrıca üçüncü mertebeden duygunluğa aşağıdaki gibi bağlıdır:

$$\beta = \frac{3\pi}{\epsilon_0 n^2 c \lambda} \text{Im}[\chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)] \quad (SI) \quad (3.41)$$

$$\beta = \frac{48\pi^3}{n^2 c \lambda} \text{Im}[\chi_{xxxx}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega)] \quad (cgs) \quad (3.42)$$

Burada β 'nin nonlinear soğurmanın gücünü belirleyen $\chi^{(3)}$ 'ün imajiner kısmı olduğuna dikkat edilmelidir. Bu yüzden duygunluk kompleks olup paydada ki rezonans frekanslarından biri yaklaşık sıfır ve geçiş frekansının imajiner kısmı ihmal edilemez. (burada γ_{ge} geçişin bant genişliğidir). Bu frekans paydası sistemin geçiş enerjisine karşılık gelir ve rezonans frekansı yaklaşık $2\hbar\omega$ 'dır. Ayrıca gelen ışığın lineer olarak polarize olduğu ve ortamın duygunluğun yalnızca xxxx bileşenin ilişkili olacak şekilde merkezi simetrik olduğu varsayılır. Ölçümde ilgilenilen ana büyüklük ω frekansında malzemenin geçirgenliğidir. Gaussian demet için bu büyüklük şu şekilde tanımlanır:

$$T = \frac{(1-R)^2 \exp(-\alpha L)}{\sqrt{\pi} q_0} \int_{-\infty}^{\infty} \ln[1 + q_0 \exp(-x^2)] dx \quad (3.43)$$

Genellikle ölçülen fiziksel büyüklük enerji seviyelerinin spektrumudur. Böylece geçirgenlik T gelen ve yansıyan enerjilerin oranı olarak tanımlanır. R parametresi malzemenin yüzeyinde Fresnel yansımasıdır [R. L. Sutherland, 1996].

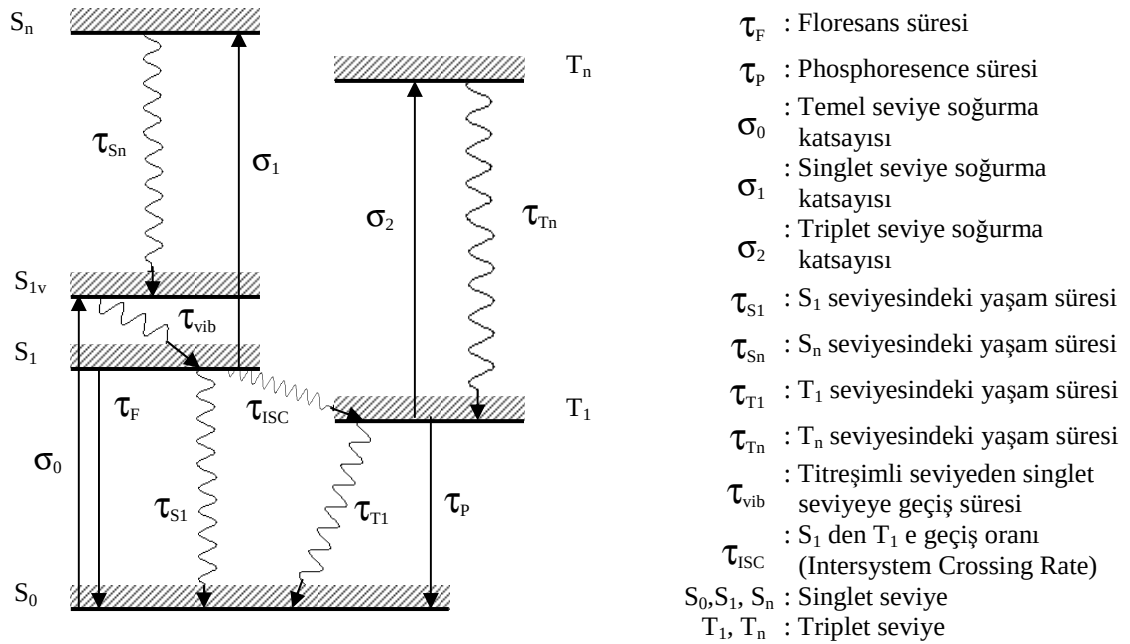
3.8. Tipik Organik Moleküllerin Foto-Fiziği

Moleküllerde elektromagnetik dalganın soğurulması bir elektronun düşük bir seviyeden daha yüksek bir kuantum seviyesine uyarılmasına sebep olur. Elektronik olarak uyarılmış molekül taban seviyesine göre kararsızdır. Eğer molekül yeniden düzenlenmezse bu uyarılma enerjisini kaybetmek için yeni bir yol bulacaktır. Taban seviyesine dönmek için farklı birçok yol vardır. Bunlardan hangisinin tercih edileceği molekülün tipine ve elektronik seviyeye bağlıdır. Bu dönüş yolları oldukça hızlı oranlarla karakterize edilir. Elektronik olarak uyarılmış molekülün en ilginç özelliklerinden biri taban seviyeye dönmek için yeniden ışıınım yaymasıdır. Ultraviyole ışığın veya görünür ışığın bir organik molekül tarafından soğurulması düşük enerji seviyeli bir yörüngeden yüksek enerjili boş bir seviyeye bir elektronun soğurulmasına neden olur. Işığın soğurulması sonucunda ortaya çıkan elektronik yörünge konfigürasyonundan uyarılmış iki elektronik seviye meydana gelir. Seviyenin birinde elektron spinleri anti paralel olarak çiftlenmiş durumdayken diğer seviyede paraleldir. Çiftlenmiş spinlerin bulunduğu seviye spin magnetik momente sahip olmayacaktır. Çiftlenmiş spinli seviye bir dış magnetik alan varken tek bir seviye singlet state olarak nitelendirilir. Çiftlenmemiş spinlerin bulunduğu seviye dış magnetik alanla etkileşerek kuantize üç seviyeye yarılır ve triplet state adını alır.

Uyarılmış singlet seviye ile triplet seviyenin enerji diyagramı sabit nükleer geometrinin bir göstergesidir. Tipik bir organik boya molekülünün enerji seviye diyagramı şekil(3.9) da gösterilmiştir.

Molekülün elektronik taban seviyesi S_0 olarak nitelendirilen bir singlet seviyedir. Bu S_0 seviyesi kuantize titreşim ve rotasyon enerjilerine yakın bulunmaktadır. Salınım seviyelerine uzaklığı yaklaşık 100 cm^{-1} dir. Rotasyonal seviyelere ise titreşim seviyeleri arasında birbirine yakın sürekli seviyeler halindedir. Daha yüksek mertebede bulunan singlet seviyeler $S_1.. S_n$ olarak nitelendirilir. Her bir elektronik seviye bir süreklilik gösterir ve bu süreklilikler arasındaki optiksel geçişler sınırsız soğurma ve yayma spektrumuna sebep olur. Tek seviyeler arasındaki geçişler güçlü soğurma bantlarına neden olan spin izinli geçişlerdir. Bir lazer atması gönderildiğinde moleküller S_1 den yüksek titreşimli seviyeler S_{1v} 'ye uyarılır. S_{1v} 'den

S_{10} 'a bozunum ışımsızdır ve birkaç pikosaniyede gerçekleşir. Moleküller S_{10} 'dan taban seviyesine ışımlı veya ışımsız olarak bozunabilir. Yada triplet seviyeye geçiş yapar. S_{10} 'dan S_0 'a olan bozunum floresans olarak bilinir ve S_1 seviyesinin yaşam süresiyle ilgilidir. Organik moleküller için bu süre birkaç nanosaniye mertebesinde. Soğurma ve yayma işlemleri arasındaki enerji farkı S_1 ve S_0 'daki ışımsız bozunmalar tarafından harcanır ve moleküllerin S_{10} dan düşük triplet seviye T_1 'e relaksasyonu (sönümü) iç sistem atlama oranı ile belirlenir. Bu iç sistem oranı 10^{11} ile 10^7 sn^{-1} dir ve spin sınırlama faktöründen dolayı bu kadar uzundur. Diğer bir işlem ise iç akım (konversiyon) hareketidir. Bu da S_{10} 'ın S_0 'a ışımsız olarak bozunmasıdır. T_1 den S_0 'a bozunum ışımlı yada ışımsız olabilir, eğer ışımlı bir geçiş ise phosphorence adını alır. Tipik phosphorence yaşam süresi milisaniye ile mikrosaniye arasındadır. T_1 triplet seviyenin yaşam süresi genellikle daha büyüktür. Çünkü triplet-singlet geçişleri mümkün değildir.



Şekil 3.9 Organik boya molekülünün enerji seviye diyagramı

Birinci uyarılmış singlet veya triplet seviyelerde bazı özel deneysel koşullar altında (yüksek şiddet) molekül sırasıyla daha yüksek seviyeler olan S_n ve T_n 'e atlayabilir. Bu yüksek seviyeler S_1 ve T_1 'e çok hızlı bir şekilde geri döner (birkaç

femtosaniye). Bu işlemde yüksek mertebeden seviyeler titreşimli uyarılmış seviye meydana getirirler (Kasha kuralı).

Yüksek triplet seviyeler iç geçişlerden dolayı popüle edilebilir. Ancak bu oran sabitleri birbirine uygun olduğunda geçerlidir. Taban singlet seviyeden triplet seviyeye direk soğurma seçim kuralından dolayı yasaktır. Bu yüzden ancak indirek olarak bu seviye popüle edilebilir [<http://www.st-andrews.ac.uk/~scnlo/pdfs/chapter2.pdf>].

4. Z-SCAN TEKNİĞİ

Yüksek derecede nonlineariteye sahip önemli materyallere büyük ilgi vardır. Üçüncü dereceden nonlinearer duygunluğun tepkisi ve büyüklüğü herhangi bir malzemenin nonlinear optiksel cihazda karakteristiklerini belirlemek için önemli parametrelerdir. Optik anahtarlama (switching) ve sensör uygulamaları için materyellerin karakterizasyonu oldukça önemli hale gelmiştir. Bu da nonlinear soğurma (NLA) ve nonlinear kırılmayı (NLR) ilgilendirir. Materyallerin bu parametrelerini ölçmek için çeşitli teknikler geliştirilmiştir.

(a) Dejenere Dört Dalga Karışımı (Degenerate Four Wave Mixing, DFWM):

Üçüncü mertebeden nonlinearer tepkiyi ve bu tepkinin büyüklüğünü ölçmek için kullanılır.

(b) Üçüncü Harmonik Üretim (Third Harmonic Generation):

Yalnızca üçüncü mertebeden nonlineariteyi ölçmek için kullanılır.

(c) Z-Scan: Üçüncü mertebeden nonlinearliğin büyüklüğünü ve işaretini ölçmek için kullanılır.

(d) Electro-Soğurma Tekniği: Bu teknikle üçüncü mertebeden nonlinearliğin dağılım (dispersion) çalışmaları yapılır.

(e) Zaman-Çözünürlüklü Optiksel Kerr Etki ve Geçiş Soğurma Teknikleri (Time-Resolved Optical Kerr Effect and Transient Absorption Technique): Nonlinearliği belirleyen foto-fiziksel süreçleri ortaya koymak için kullanılır.

Biz uygulanabilirliğinin kolay ve iyi sonuç vermesinden dolayı Z-scan teknik üzerinde duracağız. Z-scan teknik katıların, sıvıların ve sıvı çözeltilerin NLA ve NLR katsayılarını hızla ölçebilen bir metottur. Bu metod, ayrı ayrı hesaplanan nonlinear soğurma katsayısı ve kırılma indisi değişimleri için nonlinear optikte standart bir teknik olarak kabul edilmiştir. Malzemenin kırılma indisinin ve soğurma katsayılarının değişimine neden olan tüm optiksel mekanizmanın ortaya çıkmasına çok duyarlı bir metottur.

4.1. Tekniğin Avantaj ve Dezavantajları

Avantajlar:

- Demeti yarık üzerine odaklama dışında komplike bir durum yoktur.
- Nonlineerliğin büyüklüğü ve işareti eş zamanlı olarak ölçülebilir.
- Nonlineerliğin kırıcılık ve soğuruculuk kısımları izole edilebilir. Ancak bu DFWM tekniği ile yapılamaz.
- Data analizi çabuk ve bazı koşullar dışında basittir.
- Yüksek derecede hassasiyete sahiptir. Eğer numune yüksek optiksel kaliteye sahipse $\lambda/300$ 'lük bir faz bozunumu bile kolayca çözülebilir.
- Z-scan'le optiksel gücü limitleyen geometri arasında yakın bir benzerlik vardır.

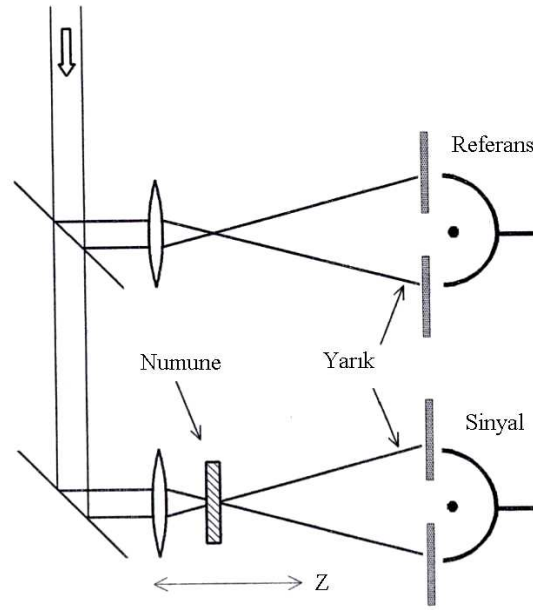
Dezavantajlar:

- Bazı ölçümler için yüksek kalitede Gaussian TEM₀₀ demetinin gerekliliği bir dezavantajdır. Çünkü bunu elde etmek zordur.
- Gaussian olmayan demetler için analiz tamamen farklıdır.
- Numunedeki düzensizliklerden dolayı demet bozulabilir.

4.2. Teori ve Deney Düzenegi

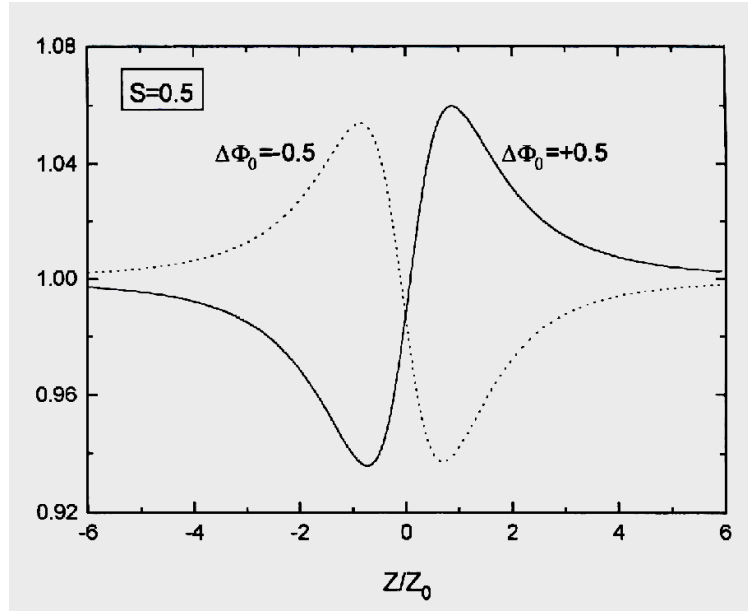
Nonlinear kırılma indisinin hesaplanması için standart z-scan düzenegi şekil(4.1)'de gösterilmiştir. Numunenin geçirgenliği (transmittance), demet yarıktan geçtikten sonra uzak alanda dedekte edilir. Deneyde gerekli tarama (scan) numunenin kalınlığına L ve ışın parametrelerine bağlıdır. Bu parametrelerden biri ışık demetinin kırınım uzunluğudur z_0 (diffraction length). Gaussian demet için bu uzunluk $\frac{\pi\omega_0^2}{\lambda}$ ile tanımlanır. Burada ω_0 demetin merkezdeki boyutudur (focal spot size). İnce (thin) numune için ($L \leq n_0 z_0$, n_0 lineer kırılma indisi) bütün bilgiler $\pm z_0$ 'ın tarama aralığı içinde teorik olarak hesaplanabilir. Örneğin ince numune için en

$\pm 5z_0$ aralığında tarama yapmak uygundur. Bu aralık numunenin yüzey pürüzlülüğü yada ölçüm sisteminde optik ışının kusurlarının gürültü oluşturduğunda data yorumları için kolaylık sağlar. Birçok uygulamada tarama esnasında lazer gücünde dalgalanmalar oluşabilir. Bu nedenle referans dedektör kullanmak ölçümlerin doğru alınabilmesi açısından faydalıdır.



Şekil 4.1. Dedektörün çıkışındaki sinyal oranlarını görüntüleyerek gürültüyü azaltmak için z-scan yarığı kullanılır. Açık yarığ z-scande yarıklar şeklinde gösterildiği gibi işaretin ön tarafında hareket ettirilerek elde edilir. Referans dedektör ise geçen ışığın tamamını dikkatlice toplar.

Yarığın (aperture) pozisyonu tercihen odaktan mesafesi oldukça uzak olmalı $d_0 \gg z_0$. Yaklaşık $20z_0$ ile $100z_0$ aralığında değerler olabilir. Yarığın boyutu S , geçirgenlik tarafından belirlenir. Deneylerde nonlinear kırılma indisinin tespiti için yarığın boyutu $0.1 < S < 0.5$ aralığında kullanılmıştır. $S = 1$ durumu için dedektörde ölçülen değer ışığın toplamını içerir. Bundan dolayı nonlinear kırılma indisi için ışının bozukluğuna duyarsızdır. Bu düzen “açık yarığ” olarak nitelendirilir ve nonlinear soğurma için uygundur.



Şekil 4.2. Pozitif (düz çizgi) ve negatif (noktalı çizgi) üçüncü mertebeden nonlinear kırılma için elde edilmiş tipik bir z-scan grafiği

Şekil(4.2)'de ince numune için kapalı yarık kullanılarak elde edilen tipik z-scan geçirgenlik (transmittance) grafiği görülmektedir. Örnek olarak, kendikendine-odaklanma (self-focusing $\Delta n > 0$ şekil(4.2)'de düz çizgi), numune mercekten uzağa doğru hareket ettirildiğinde, normalize geçirgenlikteki azalma (valley) ardından artma (peak) ile sonuçlanır. Şiddet (intensity) normalize edilmiş ve geçirgenlik odakdan uzakda numune için birimseldir. Burada nonlinearite önemsizdir ($|z| \gg z_0$). Numune odaktan önce yerleştirildiğinde pozitif odaklanmadan dolayı alandaki ıraksama artarken yarıktaki geçirgenlik azalır. Öte yandan numune odaktan sonra yerleştirilirse aynı pozitif odaklanma alan ıraksamasını azaltırken yarık geçirgenliğini artırır.

Z-scan tekniğinin ilginç yönlerinden biride kolay ve sade oluşudur. Nonlinear optiksel katsayılar kesin hesaplanabilir. Nonlinear katsayıların kesin belirlenmesi (n_2 ve β gibi) lazer kaynağının belli bir süre uzaysal olarak güç ve enerji içeriğinin, kararlılığının nasıl belirlendiğine bağlıdır. Hatta farklı zaman skalalarında mekanizmalar farklı cevap verdiği için, zaman ortalama değerler karşılaştırmalı

değerler aldığından sonuçlar lazer atmasının o anlık profiline güçlü bir şekilde bağlıdır.

Tek bir çeşit nonlinearite alındığında z-scan, herhangi bir demet şekli ve uygun Maxwell eşitlikleriyle çözülebilen numune kalınlığı yardımıyla modellenenir. Fakat birkaç geçerli yaklaşım ve varsayım bu basit analitiksel ifadeleri, alınan data analizini kolay ve kesin yapar. Bilinen SVEA'dan (yavaş değişen dalga cephesi yaklaşımı) farklı olarak çok büyük bir basitleştirme ancak numunenin içinde meydana gelen kırınım yada kırılmanın demet profilinde herhangi bir değişmeye neden olmayacak kadar numunenin ince olduğu varsayılırsa mümkün olur. Bu demektir ki $L \ll n_0 z_0$ ve $L \ll z_0 / \Delta\Phi_0$, burada $\Delta\Phi_0$ maksimum nonlineariteye sebep olan faz değişimi. Başka bir durum ise “external self-action” dur. Bu durum numunede meydana gelen nonlinear odaklarının etkin odak uzunluğunun numune kalınlığından daha büyük olması gerektiğini söyler [Mark G. Kuzyk and Carl W. Dirk 1998]. Z-scan tekniği kullanılan birçok deneyde bu ikinci kriterin, $\Delta\Phi_0$ çok küçük olduğundan otomatikman sağlandığı söylenebilir. Z-scan geçirgenliği için fazda basit yaklaşımlar türetilebilir. Ayrıca ince olduğu düşünülen numunede lineer kırınım için ilk kriter olması gerektiğinden daha sınırlayıcıdır. Yani $L < n_0 z_0$ olması yeterlidir.

External self-action limiti SVEA yönteminde problemin basitleştirilmesi için gereklidir. $\sqrt{I}$ genlik ve E elektrik alanının fazı $\Delta\phi$ ise basit eşitlik çifti:

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n(I) \quad (4.1)$$

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha(I)I \quad (4.2)$$

Burada z' numunedeki yayılma derinliği, $\alpha(I)$ lineer ve nonlinear terimleri içine alan genel bir ifade. z' numunenin pozisyonu z ile karıştırılmamalı.

Üçüncü mertebeden nonlinearite için;

$$\Delta n = \left\{ \frac{n_2}{2} |E|^2 \right\}_{gaussian} = \{n_2 I\}_{MKS} \quad (4.3)$$

$$\Delta \alpha = \beta I \quad (4.4)$$

olarak verilir. Burada n_2 nonlinear kırılma indisi, E maksimum elektrik alan (Gaussian biriminde), I numune içindeki lazer ışınının şiddeti (irradiance, MKS biriminde), β üçüncü mertebeden nonlinear soğurma katsayısı, ki bu yüksek hızlı NLA için iki-foton soğurma (two-photon absorption, 2PA) katsayısına eşittir. n_2 (Gaussian) ve n_2 (MKS) arasındaki dönüşüm formülü şu şekilde verilir:

$$n_2(esu) = \left(\frac{cn_0}{40\pi} \right) n_2(MKS) \quad (4.5)$$

c (m/s) ışığın boşluktaki hızıdır. Herhangi bir üçüncü mertebeden nonlinearite için burada n_2 kullanıyoruz. Fakat gittikçe artan nonlineariteler için n_2 kullanılmamalı. Örneğin ters doyurulmuş soğuran (reverse saturable absorbing, RSA) boyalar . Bu boyalarda, uyarılmış durum tesir kesitinin (excited state cross-section) temel durum tesir kesitinden (ground state cross-section) büyük olduğundan uyarılmış durum soğurması lineer soğurma sonucu oluşur. Soğurmada meydana gelen değişimler tesir kesiti katsayısı ile tanımlanır, iki-foton soğurma katsayısı ile tanımlanmaz. Bu değişim, nüfusun yeniden dağılımından dolayı n_2 'den daha çok yansıtıcı tesir kesiti ile belirlenir. Bu tip bir n_2 yada β lazerin atma genişliği (pulsewidth) ile değişebilir [E. Van Stryland et al, 1993].

4.2.1. Nonlinear Kırılma ($\Delta\alpha = 0$)

Z-scan tekniğinde geçirgenlik değişimi minimum (valley) ve maksimum (peak) noktalar arasındaki fark $\Delta T_{pv} = T_p - T_v$ ile tanımlanır. T_p , T_v şekil(4.2) de görülen normalize peak ve valley geçirgenliklerdir. Deneysel hesaplanan bu fark arasındaki ilişki faz değişimini içerir ($\Delta\Phi_0$). Üçüncü mertebeden nonlinear kırılmam için ΔT_{pv} ve $\Delta\Phi_0$ arasındaki ilişki [M. Sheik-Bahae, 1989],

$$\Delta T_{pv} \cong 0.406(1-S)^{0.27} |\Delta\Phi_0| \quad (4.6)$$

ile verilir. Burada $\Delta\Phi_0$;

$$\Delta\Phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L_{eff} \quad (4.7)$$

$$L_{eff} = \frac{(1 - e^{-\alpha L})}{\alpha} \quad (4.8)$$

S yarığın geçirgenliğidir. $\Delta\Phi_0$ ve I_0 eksen üzerinde ($r = 0$) nonlinear faz değişimi ve odakda ($z = 0$) numune ışınlam (irradiance) şiddetidir. $\Delta\Phi_0$ 'ın işareti ve bundan dolayı n_2 z-scandeki maksimum ve minimum noktalarının oranlarından tespit edilir.

Z-scan tekniğinin belirleyici bir özelliği, uygulanan ışının kırınım uzunluğu (diffraction length) maksimum ve minimum arasındaki z-mesafesi ile direk ölçülmesidir. Z-scan'de (Gaussian demet ve yarıklı kullanılarak) üçüncü mertebeden nonlinearite için bu ilişki;

$$|\Delta z_{pv}| = 1.71 z_0 \quad (4.9)$$

ile verilir. $\Delta\Phi_0$ arttığında, maksimum ve minimum pozisyonları simetrik kalmaz; minimum odağa doğru maksimum zıt yöne doğru hareket eder. Fakat Δz_{pv} hemen

hemen sabit kalır. Eşitlik(4.9)'un ışımaya şiddetinden bağımsız olması z_0 'ın hesaplanmasında oldukça yardımcıdır. Burada Eş(4.9) sadece kapalı yarık z-scan, ince nonlinear numune ve Gaussian demet için geçerlidir. Bu şartlar altında herhangi bir yarık kullanımı farklı karakteristik Δz_{pv} 'lerin ortaya çıkmasına neden olur.

Eş(4.6) ve Eş(4.7)'de bulunmayan girişteki atmalar için ortalama bir zaman faktörü almak ΔT_{pv} ve $\Delta \Phi_0$ arasındaki lineer ilişkiden dolayı mümkündür. Bu geçici ortalamanın denkleme ilave edilmesi ölçülen ΔT_{pv} 'nin genellikle atmanın şekline ve nonlinear tepki süresine bağlı olan A_τ faktörü kadar azalmasına neden olur [M. Sheik-Bahae et al, 1990].

$$A_\tau = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} f^2(t)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} f(t)dt} \quad (4.10)$$

$f(t)$ uygulanan lazer atmasının boyutsuz geçici profilini tanımlar. Gaussian demet için $A_\tau = 1/\sqrt{2}$, sech^2 için $A_\tau = 2/3$ verilir. Diğer sınırlarda nonlinear tepki süresi atma genişliğinden daha fazladır. Bu durumda yaklaşımlar altında $n_2 I_0$ yerine $(2\pi/\lambda)\alpha\sigma_r F(t)/\hbar\omega$ yazılır. σ_r uyarılmış seviyenin kırılgenlik tesir kesiti, $F(t)$ atmadaki ışımaya zaman aralığı t 'nin zaman integrali. Yüksek mertebeden nonlinearlık içeren durumlarda ve atma genişliğine oranlanabilir büyüklükteki tepki sürelerinde eş(4.10)'na göre $\Delta \Phi_0$ 'nın ortalamasının alınması gerekir.

4.2.2. Nonlinear Soğurma

NLA kapalı yarık z-scanı uyan iki parametre kullanılarak belirlenebilirken açık yarık z-scanı ile belirlenmesi daha kesin sonuç verir. Üçüncü mertebeden küçük nonlinear kayıplar için ($\Delta\alpha L = \beta I L_{\text{eff}} \ll 1$) tepki süresi atma genişliğinden daha

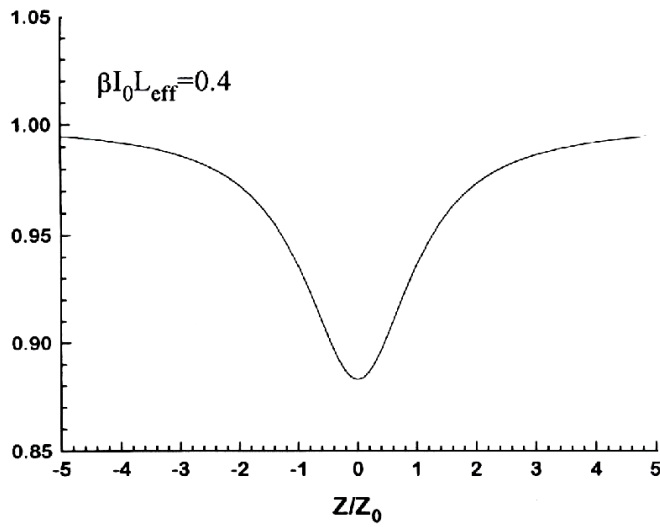
azdır (örneğin iki-foton soğurma) ve geçici Gaussian şekilli atmalar için geçen enerjideki normalize değişim $\Delta T (=T(z)-1)$ şu şekilde ifade edilir:

$$\Delta T(z) \cong -\frac{q_0}{2\sqrt{2}} \frac{1}{\left[1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right]} \quad (4.11)$$

Burada q_0 ;

$$q_0 = \beta I_0 L_{eff} \quad (|q_0| < 1) \quad (4.12)$$

Şekil(4.3)'de Gaussian demet için ışımanın z ile Lorentz dağılımı şeklinde olduğu görülür. Eğer tepki süresi lazerin anlık atma genişliğinden daha uzunsa $2\sqrt{2}$ ifadesi 2'ye dönüşür. Bu anlık atma şeklinden bağımsızdır. Tabiki bu durumda β ifadesi de değişir. Örneğin ters doyurulabilen soğurucular durumunda tartışılan yaklaşımlar altında βI_0 ifadesi $\alpha \sigma F / 2 \hbar \omega$ ile yer değiştirir. σ uyarılmış seviyelerin soğurma tesir kesitidir.



Şekil 4.3. Üçüncü mertebeden nonlinear soğurma için tipik bir açık yarı z-scan sinyalinin grafiği

4.3. İnce ve Kalın Nonlinear Ortamlar İçin Z-Scan Analizi

4.3.1. İnce Nonlinear Ortam

Buraya kadar numunenin nonlinear soğurma ve nonlinear kırınımı için yapılan analiz ΔT_{pv} ile kısıtlanmıştır. Şimdi nonlinear kırınım için z bağımlılığının nümerik teknikle nasıl belirlendiğini ele alacağız.

Üçüncü mertebeden nonlinear kırılma indisine sahip numunenin yüzey çıkışında demetteki faz kayması ve ışınlam dağılımı eş(4.1) ve eş(4.2)'den elde edilir:

$$I_e = \frac{I(z, r, t)e^{-\alpha L}}{1 + q(z, r, t)} \quad (4.13)$$

ve

$$\Delta\phi(z, r, t) = \frac{kn_2}{\beta} \ln[1 + q(z, r, t)] \quad (4.14)$$

Burada $q(z, r, t) = \beta I(z, r, t)L_{eff}$ ve $I(z, r, t)$ numunenin giriş yüzeyindeki ışıma şiddeti. Denklem (4.13) ve (4.14)'ün bileşimi bize numunenin çıkışındaki E_e kompleks alanın verir:

$$E_e = E(z, r, t)e^{-\alpha L/2} (1 + q)^{(ikn_2 / \beta - 1/2)} \quad (4.15)$$

$E(z, r, t)$ uygulanan elektrik alan. Işınsal simetrik sistemler için genel olarak Eş(4.15)'in sıfıncı mertebeden Hankel Transformu yarıktaki alan dağılımını (E_a) verir.

Odak düzleminden d mesafesine yerleştirilmiş yarıktaki elektrik alan dağılımı;

$$E_a = \frac{2\pi}{i\lambda d'} \exp\left(\frac{i\pi r'^2}{\lambda d'}\right) \int_0^\infty r' dr' E_e(z, r', t - d'/c) \exp\left(\frac{i\pi r'^2}{\lambda d'}\right) J_0\left(\frac{2\pi r r'}{\lambda d'}\right) \quad (4.16)$$

ile verilir. $d' = d - z$ yarık yüzeyinin numuneden olan uzaklığıdır. Ölçülen değerler yarığı yarıçapından (r_a) geçen atma enerjisi yada ortalama güçtür. Normalize geçirgenlik;

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt \int_0^{r_a} |E_a(z, r, t, d)|^2 r dr}{U} \quad (4.17)$$

$I \approx 0$ için U payın aynısıdır. Gaussian dağılımını ele alırsak;

$$E(z, r, t) = E_0(t) \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)} + i \frac{\pi r^2}{\lambda R(z)} + i\phi\right) \quad (4.18)$$

şeklinde ifade edilir. $w(z) = w_0(1 + z^2/z_0^2)$ ve $R(z) = z + z_0^2/z$. Radyal değişmeyen faz terimleri ϕ içerir, bizim hesaplarımızda önemsiz olduğundan ihmal edilecektir. Eğer eş(4.15)'de $|q| < 1$ olduğunu varsayarsak ve E_e 'yi q 'nun binom serisine açarsak eş(4.16)'daki integral analitik olarak hesaplanabilir. Bu açılım Gaussian demetin değişen parametrelerine bağlı olarak E_e 'yi etkin bir şekilde ayrıştırır (decompose). Bu metot Gaussian decomposition olarak bilinir [Wearie et al, 1974].

$$E_e = E(z, r, t) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{\infty} F_m \exp(2mr^2/w^2(z)) \quad (4.19)$$

F_m nonlineer optiksel katsayıları kapsayan faktördür ve şu şekilde verilir:

$$F_m = \frac{(i\Delta\phi_0(z, t))^m}{m!} \prod_{j=1}^m \left[1 + i \left(j - \frac{1}{2} \right) \frac{\lambda\beta}{2m_2} \right] \quad (4.20)$$

$F_0 = 1$ ve $\Delta\phi_0(z, t) = \Delta\phi(z, r=0, t)$ eksen üzerindeki nonlinear faz değişimini belirtir. E_e 'nin Hankel transformu yarık yüzeyindeki alan, Gaussian demetin toplamı olarak;

$$E_a(r, t) = E(z, r=0, t) e^{-\alpha_L/2} \sum_{m=0}^{\infty} F_m \frac{w_{m0}}{w_m} \exp\left[-\frac{r^2}{w_m^2} + \frac{i\pi r^2}{\lambda R_m} + i\theta_m\right] \quad (4.21)$$

şeklinde verilir. Herbir Gaussian demetin parametreleri:

$$w_{m0}^2 = \frac{w^2(z)}{2m+1}, \quad d_m = \frac{kw_{m0}^2}{2}, \quad w_m^2 = w_{m0}^2 \left[g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right] \quad (4.22)$$

$$R_m = d \left[1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right]^{-1}, \quad \theta_m = \tan^{-1} \left[\frac{g}{d/d_m} \right] \quad (4.23)$$

Burada $g = 1 + d/R(z)$ 'dir. Sonuçta normalize geçirgenlik eş(4.17) ile hesaplanabilir.

Yarık geçirgenliği $S = 1 - \exp(-2r_a^2/w_a^2)$ ile tanımlanır. $w_a = w_0(1 + d^2/z_0^2)^{1/2}$ yarıktaki lineer ışının yarıçapıdır.

Birtakım yaklaşımlar yaparak yukarıdaki sonuçların ne anlama geldiğini anlayabiliriz. Nonlinear soğurma olmadığı durumda ($\beta = 0$), $F_m = (i\Delta\phi_0(z, t)^m / m!)$ olur ve çok uzak alanlarda demet bozunması dış etkilere kaynaklanır. Bu durumda $\Delta\phi_0$ şu şekilde yazılır:

$$\Delta\phi_0(z, t) = \frac{2\pi}{\lambda} L_{eff} n_2 I(z, t) = \Delta\Phi_0 \frac{f(t)}{1 + z^2/z_0^2} \quad (4.24)$$

Burada $\Delta\Phi_0 = \Delta\phi_0(0, 0)$ ise nonlinear faz kayma eksenindeki piktir ve $f(t)$ gelen atmanın anlık profilindeki ışınmayı gösterir. Bu Gaussian decomposition metodu z-

scan tekniğiyle algılanan küçük faz salınımları için faydalıdır. Şekil(2) $\Delta\Phi_0 = \pm 0.5$ için hesaplanan z-scan değerlerini göstermektedir. Daha önce hesaplanan eş(4.6) bu kısımda eşitlikler kullanılarak hesaplanan sonuçların yarı deneysel birbirine uydurulması sonucu elde edilmiştir. Bu tip yarı deneysel ilişkiler eş(4.21)'in açılımında yalnızca bir nonlinear terimin olduğu $\Delta\Phi_0$ 'ın küçük olduğu limit durumlar için kesindir.

Nonlinear soğurma durumunda ($\beta \neq 0$) $\Delta\Phi_0$ 'ın büyüklüğünde hiçbir sınırlama olmamasına rağmen yukardaki formalizm yalnızca, $q_0 = |\beta I_0 L_{eff}| < 1$ durum olduğunda geçerlidir. Eş(4.20)'deki çiftlenme faktörü $\lambda\beta/2\pi m_2 = q_0/\Delta\Phi_0$, üçüncü dereceden nonlinear alınganlığın $\chi^{(3)}$ imajiner kısmının reel kısmına oranının iki katı olduğu unutulmamalıdır ($\frac{q_0}{2\Delta\Phi_0} = \text{Im } \chi^{(3)} / \text{Re } \chi^{(3)}$).

Yarı kaldırıldığında z-scan geçirgenliği demet bozulmalarına duyarlıdır ve yalnızca nonlinear soğurmanın bir fonksiyonudur. Bu durumdaki toplam geçirgenlik $S = 1$ için eş(4.13)'ü integre ederek elde edilebilir. Anlık profil $f(t)$ olan son durumdaki normalize geçirgenlik;

$$T(z, S = 1) = \frac{1 + z^2/z_0^2}{q_0} \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \ln \left[1 + q_0 \frac{f(\tau)}{1 + z^2/z_0^2} \right] d\tau}{\int_{-\infty}^{\infty} f(\tau) d\tau} \quad (4.25)$$

ile verilir[M. Sheik-Bahae et al]. $|q_0| < 1$ için bu geçirgenlik nümerik hesaplamalar için bir toplam halinde pik ışımalarının yardımıyla bulunabilir. Anlık bir Gaussian profil için

$$(f(\tau) = \exp(-\tau^2));$$

$$T(z, S = 1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-q_0)^m}{(1 + z^2/z_0^2)^m (m+1)^{3/2}} \quad (4.26)$$

denklemleriyle ifade edilir. Böylece açık bir yarıklı kullanıldığında ($S = 1$) β hesaplanabilir. β 'nin bilinmesiyle $S < 1$ durumu için z-scan n_2 katsayısının bulunması için kullanılabilir. Eş(4.11)'deki ΔT eş(4.26)'de $m = 1$ alınan durumdur.

4.3.2. Kalın Numune İçin Z-Scan

Bu kısımda, numune kalınlığında sınırlama yapmadan genel durum analizi yaparak problemi çözeceğiz. Bu problemin çözümü nonlinear dalga denklemlerinde nümerik çözümler içerir ve burada ele almayacağız. Nümerik hesaplara ilave, yaklaşık çözümlerin iki tipi basitçe verilmiştir. Bir tanesi nonlinear dalga denkleminin doğal bozulma yaklaşımını içerirken, diğeri nonlinear faz kaymasındaki birinci mertebeden dalga yayılımını ele alır. Daha sonraki yaklaşım numune içinde nonlinear demet bozunumuna izin vermeyecek kadar faz kaymasının $\Delta\phi$ küçük olmasını gerektirir.

Hermann ve Tian eksen üzerinde ($S \approx 0$) kalın nonlinear numunenin z-scan geçirgenliğini şu şekilde vermiştir[M. G. Kuzyk and C. W. Dirk, 1998]:

$$T(x) \approx 1 + \Delta\Phi_{z_0} F(x, l) \quad (4.27)$$

Burada $\Delta\Phi_{z_0} = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right) n_2 I_0 z_0$, z_0 mesafesi üzerinde meydana gelen nonlinear faz değişimi, $x = z / z_0$ ve $l = L / (n_0 z_0)$ numunenin normalize kalınlığı. $F(x, l)$ [J. A. Hermann et al, 1993];

$$F(x, l) = \frac{1}{4} \ln \left(\frac{\left[\frac{(x + l/2)^2 + 1}{(x - l/2)^2 + 1} \right] \left[\frac{(x - l/2)^2 + 9}{(x + l/2)^2 + 9} \right]}{\left[\frac{(x - l/2)^2 + 1}{(x + l/2)^2 + 1} \right] \left[\frac{(x + l/2)^2 + 9}{(x - l/2)^2 + 9} \right]} \right) \quad (4.28)$$

$F(x, l)$, $l = 1, 2, 5, 8, 10$ için grafiği şekil(4.4)'de verilmiştir. Geçirgenliğin maksimum ve minimum konumlar $dF / dx = 0$ şartıyla hesaplanabilir.

$$X_{p,v} = \pm \sqrt{\frac{(l^2/2 - 10) + \sqrt{(l^2 + 10)^2 + 108}}{6}} \quad (4.29)$$

Maksimum-minimum ayrımı $\Delta z_{pv} = 2|X_{p,v}|z_0$ şeklinde verilir. $L_{eff} / (n_0 z_0)$, $L / (n_0 z_0)$ 'ın bir fonksiyonu olarak gösteren şekil(4.5)'de açıkça görüldüğü gibi bu ayrım $L \gg n_0 z_0$ için L / n_0 a yaklaşır. $l = 0$ olduğunda yukardaki eşitliklerin hepsi ince numunenin sonuçlarına indirgenmiş olur. Hatta numunenin kalınlığı yaklaşık $2 n_0 z_0$ 'a kadar arttırıldığında sinyal (ΔT_{pv}) yavaş yavaş düşer ve sonunda bir sabit haline gelir. Bu durum şekil(4.5)'de görülmektedir. Bu etkiyi gösteren faydalı bir değer kalın nonlinear ortamın etkin uzunluğudur ve bu uzunluk eğer numune data analizlerinde ince olarak alınsaydı bu değer sadece uzunluk olarak tanımlanırdı. Böyle bir etkin uzunluk tanımladığımızda üçüncü mertebeden nonlinearlikler için eş(4.6) ile verilen ince numune formülünü kullanabiliriz. Bu durumda:

$$l_{eff} = L_{eff} / (n_0 z_0) = \Delta T_{pv} (kalın) / (0.406 \Delta \Phi_{z_0}) \quad (4.30)$$

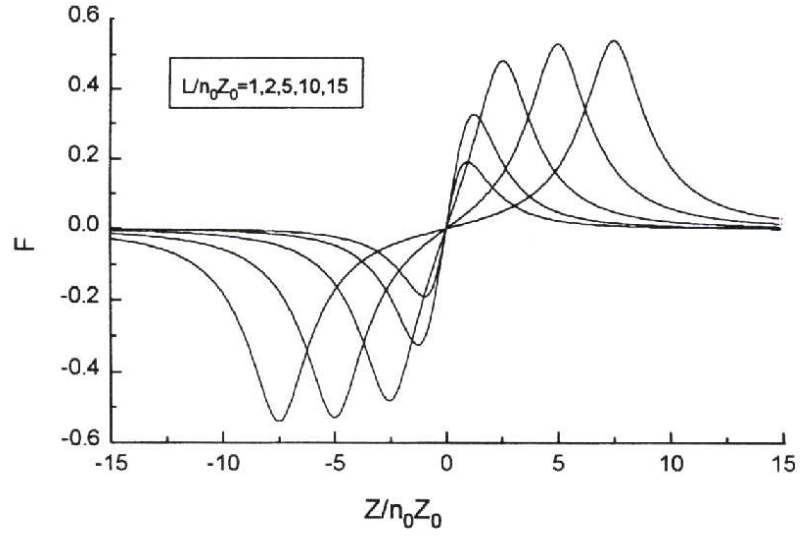
şeklinde yazılabilir. Burdan da l_{eff} :

$$l_{eff} = \frac{F(|X_{p,v}|, l)}{2 \times 0.406} \quad (4.31)$$

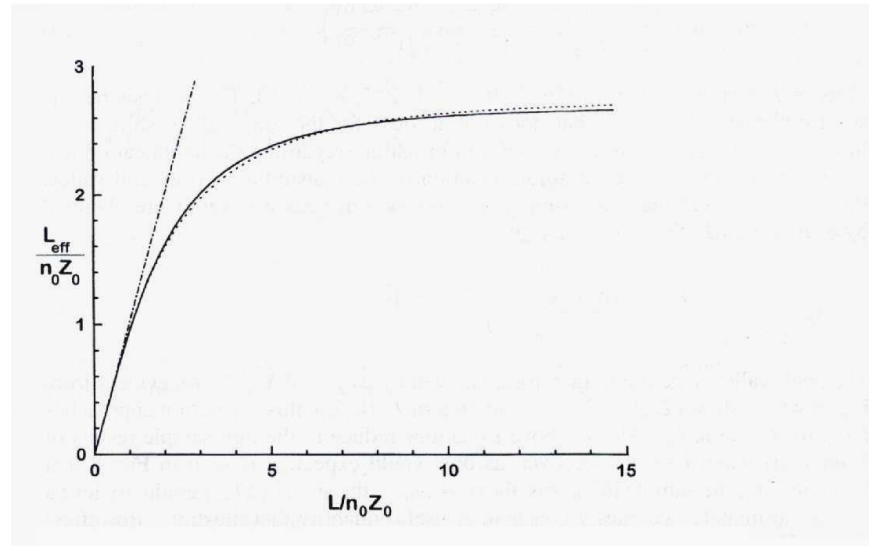
ifade edilip [M. Sheik-Bahae et al, 1990] ve şekil(4.5)'de basit deneysel düzeltmeler yapılarak l_{eff} :

$$l_{eff} = \frac{2.706[(l+1)^{1.44} - 1]}{l^{1.44} + 3.924} \quad (4.32)$$

şekilde elde edilir.



Şekil 4.4. Geçişteki normalize değişim. Kalın numuneler için $\Delta\Phi_{z_0}=0.01$ için $L/n_0 z_0=1, 2, 5, 8, 10$ şeklinde $z/n_0 z_0$ ’ın bir fonksiyonu olarak F verilmektedir.



Şekil 4.5. $l=L/n_0 z_0$ (düz çizgi)’nin bir fonksiyonu olarak efektif numune kalınlığı l_{eff} gösterilmektedir ve bu çizgiye deney sonuçlarıyla fit edilmiştir (noktalı çizgi). Noktalı çizgi eğimi 1’dir.

4.4. Yorumlar

Üçüncü meriteden nonlinearliklerin ortaya çıkmasına neden olan çok sayıda fiziksel işlemler (girişdeki ışımaya (irradiance), akı (fluence) yada enerji ile orantılı etkiler) vardır. Çok hızlı nonlinear soğurma çoklu-foton (multiphoton) soğurumunu içerir [Mark G. Kuzyk and Carl W. Dirk, 1998].

Z-scan teknik yüksek derecede etkiler içeren nonlinearitelerin hesaplanmasında hassastır. Fakat nonlinear işlemleri birbirinden ayırmak veya hızlı olan nonlinearlikleri yavaş olanlardan ayırmak için tek başına kullanılamaz. Bu işlemleri ayırmanın bir yolu anlık tepkilere dikkat etmektir. Ultra hızlı nonlinearlikler kolaylıkla analiz edilebilir. Atma genişliğini uyarılmış seviyenin bozulma zamanından daha kısa tutulması bu tip gittikçe artan nonlinearliklerin kolayca analizine olanak sağlar. Uyarılmış seviye nonlinearlikleri etkin olarak akıya bağlıdır (fluence). Oysa ultra hızlı etkiler ışımaya (irradiance) bağlıdır. Nonlinearliklerin anlık bağımlılıkları zaman çözünürlüklü z-scan deneyleriyle elde edilebilir.

Bu zaman çözünürlüklü deneyler yavaş ve hızlı nonlinear tepkileri birbirinden ayırabilir. Nonlinear ölçümlerin yorumu sırasında ortaya çıkan potansiyel problemleri çözebilmek için basitçe uyarılmış seviye soğurumunu ve iki-foton soğurumunu (2PA) sinyallerini karşılaştırarak gösterebiliriz. Lineer soğurmanın varlığında 2PA' tasvir eden eşitlik:

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha I - \beta I^2 \quad (4.33)$$

Moleküllerde lineer soğurmadan dolayı olan uyarılmış seviyeler [15, 16] :

$$\Delta\alpha \approx \frac{\alpha\sigma}{\eta\omega \int_{-\infty}^t I(t')dt'} \quad (4.34)$$

ile karakterize edilir. dI / dz' eşitliğini zamana bağlı integre ettiğimizde F akısını buluruz [E. Van Stryland, 1993];

$$\frac{dF}{dz'} = -\alpha F - \frac{\alpha\sigma}{2\hbar\omega} F^2 \quad (4.35)$$

Bu denkleme dikkat edilirse eş(4.33)'e benzemektedir. Işımaya akı, β 'ya $\frac{\alpha\sigma}{2\hbar\omega}$ karşılık gelmektedir. Bu nedenle, birçok deneyde atma enerjisi dedekte edildiğinden lineer soğurma ve 2PA ile başlatılan uyarılmış seviye soğurması giriş enerjisinin bir fonksiyonu olan kayıplar için benzer sonuçlar verecektir.

Eş(4.35) geçirgenlikteki değişimlerin yeterince az olduğu küçük akılar için geçerlidir. Daha yüksek akılar için taban seviye soğurumunda bir doyum meydana gelir (hatta bu durum uyarılmış seviye soğurumundada gerçekleşebilir). Bu gibi durumlarda en iyi yaklaşım seviyelerin popülasyonunu belirlemek için eşitlikler sistemini çözmek ve daha sonra bunları kayıp eşitliklerinde kullanmaktır. Bu kayıp eşitliği eş(4.36), faz eşitliği eş(4.37)'dir. Ayrıca, σ_{ij} , soğurma tesir kesiti ve $(\sigma_r)_{ij}$, kırımın tesir kesitidir.

$$\frac{dI}{dz'} = - \sum_{i=1, j>i}^N \sigma_{ij} \Delta N_{ij} I \quad (4.36)$$

ve

$$\frac{d\phi}{dz'} = \sum_{i=1, j>i}^N (\sigma_r)_{ij} \Delta N_{ij} \quad (4.37)$$

ΔN_{ij} , soğurma tesir kesiti (σ_{ij}) ile çiftlenmiş iki seviye arasındaki ($N_i - N_j$) popülasyon farkıdır. Seviye popülasyonunun yeniden dağılımından kaynaklanan nonlineer yansıma ve sinyal, gelen ışığın bağlı rezonans frekansına, kayıplardaki artışa ve doyumlara bağlıdır. Birçok malzeme için (ters olarak doyuma ulaşabilen organik

soğurucular) ΔN_{ij} en düşük seviye, N_i 'nin popülasyonu ile yer değiştirebilir. Çünkü, üst seviye hızlı bir şekilde bir ara duruma bozulur.

Lazer modunu ve atma parametrelerini ölçmek önemlidir. Örneğin 2PA ışıma ile bağlantılıdır. Böylece atma enerjisi verildiğinde hem demet alanını hem de anlık atma genişliğini ışımayı belirleyebilmek için bilmek zorundayız. Işımanın ölçülmesinde yapılan herhangi bir hata β ve diğer nonlineer katsayıların yanlış belirlenmesine neden olur.

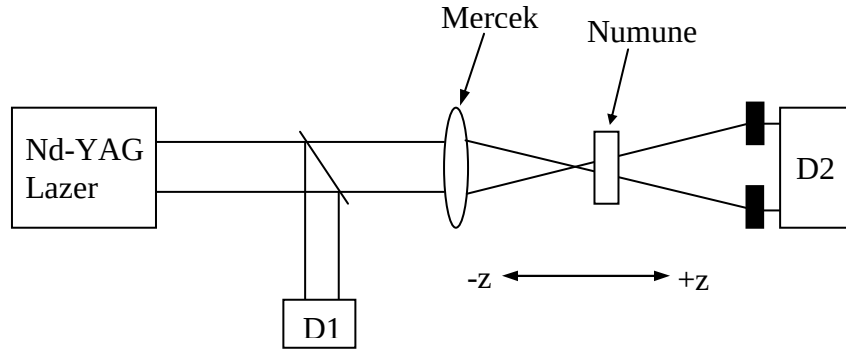
Bazı malzemeler için ışık optiksel özellikleri geçici veya sürekli olarak öyle değiştirir ki numunenin özellikleri z-scan boyunca değişir. Oliveria et al. Bu tip bir numune çalışmış, Petrov et al. Z-scan'ın yansıma modunda kullanımını yüzeylerdeki kompleks dielektrik fonksiyonunun değişimini belirlemiştir [M. G. Kuzyk and C. W. Dirk, 1998].

5. YAPILAN DENEYSEL ÇALIŞMA

Bu bölümde, kapalı yarık z-scan tekniğinin kalibrasyonu için literatürde kabul edilmiş materyal olan karbon disülfürün (CS_2) nonlinear kırılma indisinin belirlenmesi için yapılan deneysel çalışma ve elde edilen sonuçlar verilecektir.

5.1. Deneysel Düzenek

Karbon disülfürün (CS_2) nonlinear optiksel özelliklerinin belirlenmesi için kurulan deneysel düzenek şekil 5.1.'de gösterilmiştir.



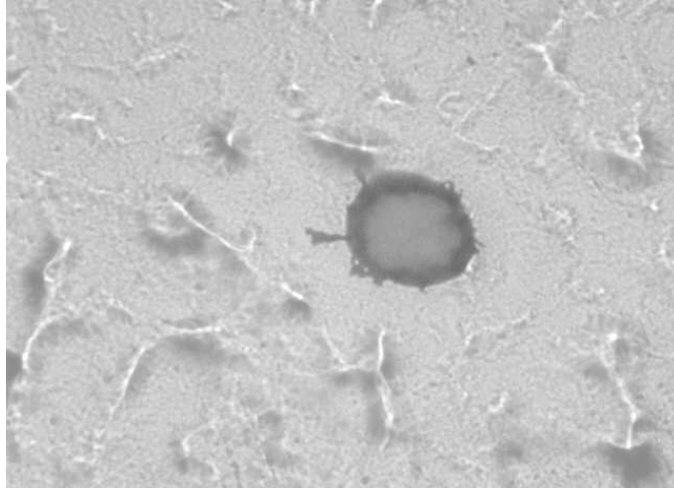
Şekil 5.1. CS_2 'nin nonlinear optiksel özelliklerinin belirlenmesi için kurulan deneysel düzenek.

Ölçümde 532 nm dalga boyunda Nd-YAG lazer, odak uzaklığı 10 cm olan bir mercek, iki dedektör ve 0.75 cm yarıçaplı yarık kullanılmıştır. Işığın şiddetini ölçmek için kullandığımız dedektörler Ophir marka pyroelektriktir. Daha öncede belirttiğimiz gibi lazerin gücünde dalgalanmalar olabilir. Bu nedenle referans dedektör (D1) kullanılması daha sağlıklı ölçüm alınmasını sağlar. Her iki dedektörün bağlı olduğu Ophir güç-metre aracılığıyla okuduğumuz şiddet oranı geçirgenliği vermektedir ($D2 / D1$). 1 cm'lik kuartz hücre içine 0.2 μm 'lik bir filtreden süzülerek konulan sıvı CS_2 , odağın negatif z konumundan pozitif z konumuna doğru 2 mm aralıkla hareket ettirilerek konuma bağlı geçirgenlik ($D2 / D1$) grafiği elde edildi.

5.2. Demet Belinin (Beam waist) Belirlenmesi

Lazer demeti, mercekten sonra şekil 2.1.’deki gibi odaklanır. Odak noktasında demetin yarıçapının (w_0) bilinmesi z-scan deneyi sonucunda elde ettiğimiz geçirgenlik spektrumunun yorumu için önemli bir parametredir. Bunun için ısıya duyarlı fakat ısı iletimi zayıf olan özel bir kağıt kullanıldı. Bu kağıt odak noktasında sabit bir şekilde tutularak demetin şeklinin görüntülenmesi sağlandı. Ardından Instron Wolpert Testor 2100 mikrosertlik cihazının mikroskop özelliği kullanılarak yarıçap hesaplandı.

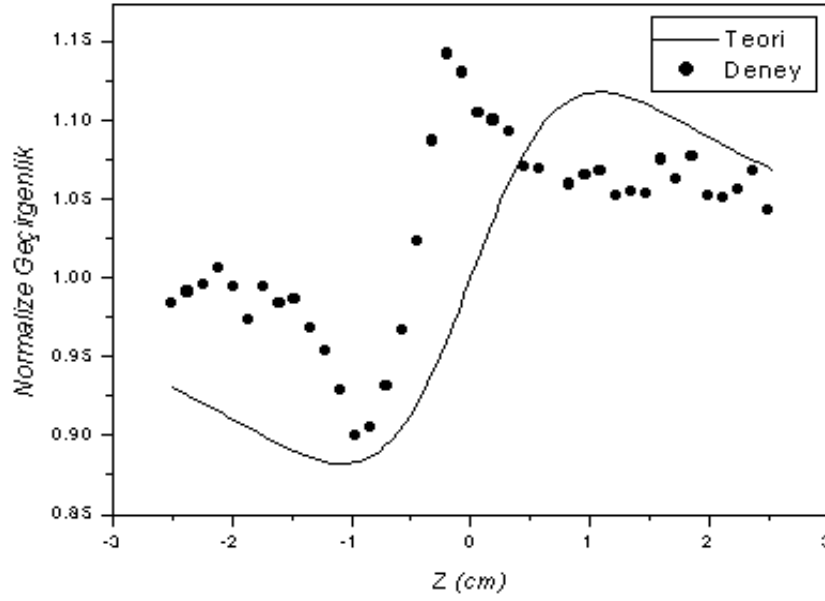
Şekil 5.2’de demetin odak noktasındaki şekli görülmektedir. Demet belinin yarıçapı $w_0 \cong 45 \mu\text{m}$ hesaplanmıştır.



Şekil 5.2. Odak noktasındaki demetin kağıt üzerindeki görüntüsü

5.3. CS₂'nin Geçirgenlik Spektrumu

CS₂'nin -z'den (-2.5 cm) +z'ye (+2.5 cm) yönüne doğru 2 mm adım aralığında hareketi sonucu elde edilen deneysel ve teorik sonuç şekil 5.3.'de gösterilmiştir. Bu çalışmada odak noktasındaki ışığın şiddeti 1.3 GW/cm² olarak hesaplandı.

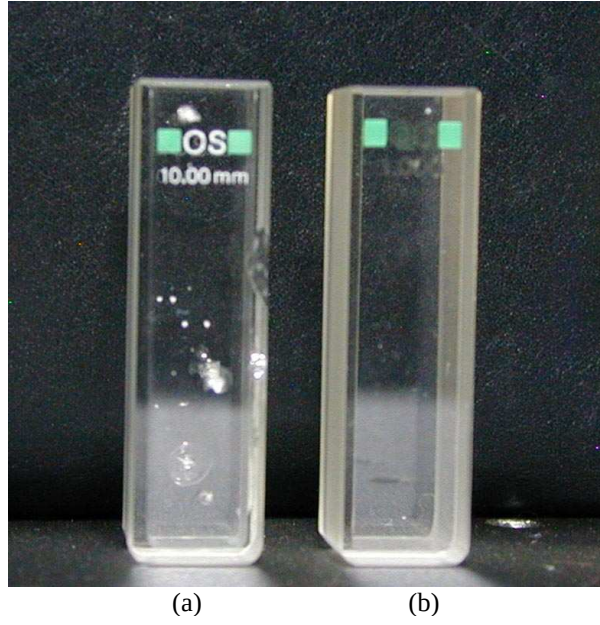


Şekil 5.3. Z-scan ölçümü sonucu CS₂'nin geçirgenlik değişimi (nokta) ve teorik simülasyonu (düz çizgi).

Elde ettiğimiz geçirgenlik değişiminde odak noktasından önce minimum çukur ve odak noktasından sonra maksimum tepe görülmektedir. Bu grafikten CS₂'nin pozitif nonlinear kırılma indisine sahip olduğu söylenebilir (kısım 4.2.). Nonlinear kırılma indisinin bulunması için maksimum ve minimum geçirgenlikler arasındaki fark deneysel olarak grafikten (şekil 5.3.) $\Delta T_{pv} = 0.19$ olarak hesaplandı. Z-scan tekniğinde daha öncede belirttiğimiz gibi numune kalınlığı oldukça önemli bir parametredir. Çalışmamızda kullandığımız numune 1 cm olduğundan kalın z-scan tekniği yaklaşımı altında incelendi. Deneysel çalışmamız sonucunda, $I_0 = 1.3$ GW/cm² şiddeti için CS₂'nin nonlinear kırılma indis değişimi $\Delta n = 3.01 \times 10^{-5}$

bulundu. CS_2 'nin literatür de bulunmuş değeri $I_0 = 2.6 \text{ GW/cm}^2$ şiddeti için $\Delta n = 5.6 \times 10^{-5}$ 'dir [M. Sheik-Bahae et al, 1990].

Pozitif nonlineer kırılma indisine sahip kalın ortam da self-focusingden dolayı (kısım 3.6.3) hasar meydana gelebilir. CS_2 pozitif nonlineer kırılma indisine sahiptir ve kalın bir hücre içine yerleştirilmiştir. Şekil 5.4.'de kullandığımız hücrede self-focusingden olduğunu düşündüğümüz hasar görülmektedir.

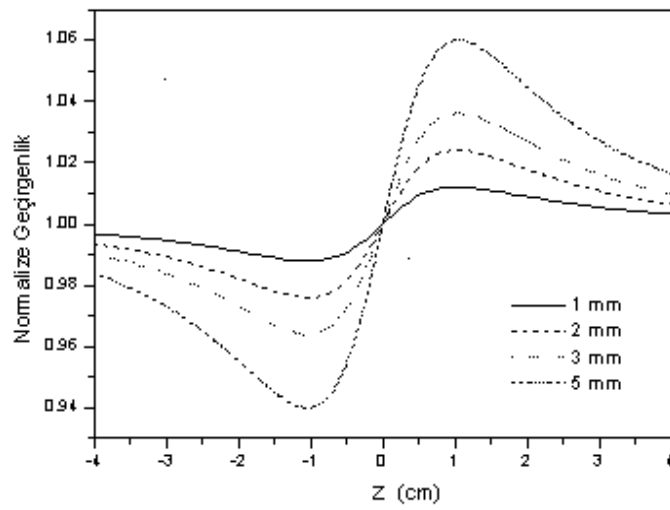


Şekil 5.4. Self-focusingden dolayı hücrede meydana gelen hasar. (a) şiddetli lazer ışını uygulanan hasarlı hücre, (b) lazer ışını uygulanmamış sağlam hücre.

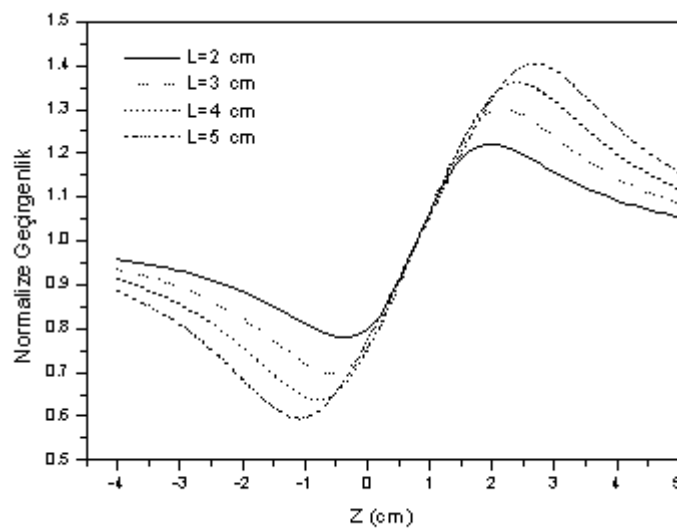
5.4. Numune Kalınlığının Geçirgenliğe Etkisi

Daha öncede sık sık bahsettiğimiz gibi numune kalınlığı z-scan tekniğinde son derece önemlidir. Çünkü numune kalınlığı direk olarak geçirgenliği etkilemektedir. Bunu teorik simulasyondan kolayca görebiliriz. Şekil 5.5'de ince ve kalın numune için geçirgenlik grafiği görülmektedir. Şekil 5.5.(a)'da 1, 2, 3, 5 mm kalınlığında numuneler için geçirgenliğin genliği artarken minimum ve maksimum noktalarının pozisyonlarında bir değişiklik görülmemektedir. Bu kalınlıklar z- scan tekniğinde önemli koşullardan biri olan $L \ll n_0 z_0$ şartını sağlamaktadır. Şekil 5.5.(b)'de bu şartı

sağlamayan kalın numuneler (2, 3, 4, 5 cm) için geçirgenlik verilmiştir. Grafikte genlik daha az artarken maksimum ve minimum noktaların pozisyonları şekil 5.6'da görüldüğü gibi değişmektedir. 1 cm kalınlığa kadar pozisyonda bir değişim olmamakta fakat kalınlık arttıkça min-mak noktalarının pozisyonları değişerek bu iki nokta arasındaki açıklık büyümektedir. Simulasyondan da görüldüğü gibi z-scan tekniğinde numunenin ince yada kalın olması geçirgenliği etkilemektedir. Dolayısıyla ince numune ve kalın numune için yapılacak analiz farklı olacaktır. Bu farka Bölüm IV'de ayrıntılı değinilmiştir.

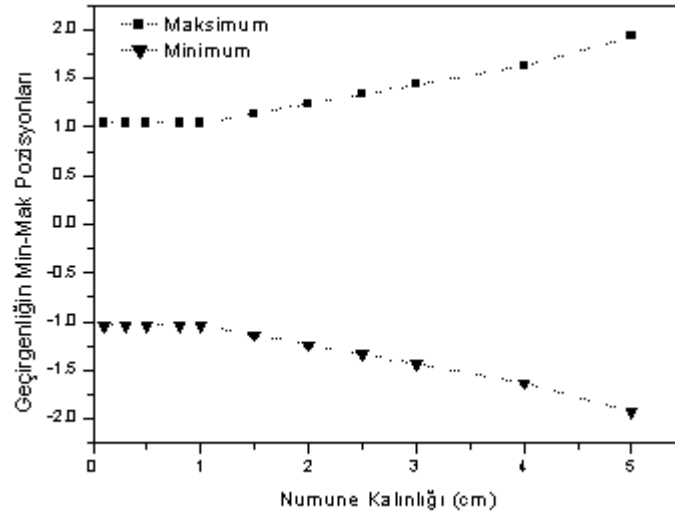


(a)



(b)

Şekil 5.5. Geçirgenliğin kalınlığa göre değişimi. (a) mm mertebesinde kalınlıklar için, (b) cm mertebesinde kalınlıklar için.



Şekil 5.6. Kalınlığa göre geçirgenliğin mak-min pozisyonlarının değişimi.

6. SONUÇ

Bu tez çalışmasında z-scan tekniğinin deney düzeneği kurulmuş, karbon disülfürün (CS_2) nonlinear kırılma indisi hesaplanarak literatürdeki değerle karşılaştırılmıştır.

1 cm kalınlığında hücre içine konulan CS_2 'nin kapalı yarık z-scan deneyi sonucu nonlinear kırılma indisinin değişimi $I_0 = 1.3 \text{ GW/cm}^2$ lazer şiddeti için $\Delta n = 3.01 \times 10^{-5}$ olarak bulundu. Bu değişimin literatürde ki değeri ise, 1 mm kalınlığında hücre kullanılarak, $I_0 = 2.6 \text{ GW/cm}^2$ lazer şiddeti için $\Delta n = 5.6 \times 10^{-5}$ verilmiştir [M. Sheik-Bahae et al, 1990]. Bu iki değer arasında farklılık gözlenmiştir. Bilindiği gibi malzemenin nonlinear optiksel özellikleri uygulanan ışığın şiddetine bağlıdır (şiddet değişimi nonlinear özellikleri değiştirir). Yapılan deneyde numuneye uygulanan ışık şiddeti literatürde verilenden farklı olduğu için nonlinear kırılma indiside buna bağlı olarak farklı bir değerde hesaplanmıştır. Bu çalışmamızda lazer şiddeti 2.6 GW/cm^2 değerine yükseltilemedi. Bunun sebebinin Bölüm V'de bahsedilen self-focusingden dolayı kalın hücrede meydana gelen lazer hasarı olduğu düşünülmektedir.

Bu tez, G.Y.T.E Fizik Bölümü Lazer ve Optik Laboratuvarında, materyallerin nonlinear optik karakterizasyonu konusunda ileriye dönük yeni çalışmalar için bir alt yapı oluşturmuştur.

KAYNAKLAR

- 1- J.T. Verdeyen, Laser Electronics, Prentice-Hall, Inc., New Jersey, sect 3, 1989.
- 2- M. Born and E Wolfe, Principles of Optics, 5th ed., Pergamon Press, New York, 1975.
- 3- R. W. Boyd, Nonlinear Optics, Academic Press, New York, 1992.
- 4- R. L. Sutherland, Handbook of Nonlinear Optics, Marcel Dekker, Inc., New York, 1996.
- 5- Y. R. Shen, The Principles of Nonlinear Optics, John Wiley, New York, 1984.
- 6- I. C. Khoo and S. T. Wu, Optics and Nonlinear Optics of Liquid Crystals, World Scientific, 1993.
- 7- P. N. Butcher and D. Cotter, The Elements of Nonlinear Optics, Cambridge University Press, 1990.
- 8- A. Yariv, Quantum Electronics, John Wiley, New York, 1989.
- 9- E. L. Dawes and J. H. Marburger, Phys. Rev. 179:862, 1969.
- 10- W. E. Williams, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, Optical switching and n_2 measurements in CS₂, Opt. Commun. 50:256, 1984.
- 11- M. G. Kuzyk and C. W. Dirk, Characterization Techniques and Tabulations for Organic Nonlinear Optical Materials, Marcel Dekker, Inc., 1998.
- 12- <http://www.st-andrews.ac.uk/~scnlo/pdfs/chapter2.pdf> .
- 13- E. Van Stryland, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, and D. J. Hagan, Characterization of Nonlinear Optical Absorption and Refraction, Prog. Crystal Growth and Charact., 27, 279-311, 1993.
- 14- M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, E. Van Stryland, Sensitive Measurement of Optical Nonlinearities Using a Single Beam, JQE, QE26, 760-769, 1990.
- 15- D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, Effect of Low Power Nonlinear Refraction on Laser Beam Propagation in InSb, Opt. Lett., 4, 331-333, 1974.
- 16- M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, M. J. Soileau, and E. Van Stryland, Nonlinear Refraction and Optical Limiting in "Thick" Media, Opt. Eng., 30, 1228-1235, 1990.

ÖZGEÇMİŞ

Duygu Önal, 1976 yılında İzmit'te doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini İzmit'te tamamladıktan sonra 1995 yılında girdiği Çanakkale Onsekiz Mart Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümünden 1999 yılında mezun oldu. 1999 yılı güz döneminde, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü, Fizik Bölümü'nde yüksek lisans eğitimine başladı. 1999 yılında Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsünde başlamış olduğu Araştırma Görevliliğine Fizik Bölümü, Optik-Lazer Laboratuvarında devam etmektedir.