Benemérita Universidad Autónoma de Puebla

Facultad de Ciencias Físico-Matemáticas

Propuesta de un modelo de Z-scan con dos respuestas no lineales, no locales, a tercero y quinto orden

Tesis presentada al

Posgrado en Ciencias Física Aplicada

como requisito parcial para la obtención del grado de

Maestro en Ciencias
(Física Aplicada)

por

José Juan Méndez Rodríguez

asesorado por

Dr. Maximino Luis Arroyo Carrasco

Puebla Pue.
Julio de 2020

Título: ***Propuesta de un modelo de Z-scan con dos respuestas no lineales, no locales, a tercero y quinto orden***

Estudiante: José Juan Méndez Rodríguez

COMITÉ

Dra. Marcela Maribel Méndez Otero (FCFM-BUAP)
Presidente

Dra. Emma Vianey García Ramírez (FCFM-BUAP)
Secretario

Dr. Edmundo Reynoso Lara (FCE-BUAP)
Vocal

Dra. María del Rosario Pastrana Sánchez (FCFM-BUAP)
Suplente

Dr. Maximino Luis Arroyo Carrasco
Asesor

Índice general

Agradecimientos v

Resumen vii

Introducción ix

1. Teoría óptica no lineal 1
1.1. Óptica No Lineal . . . 1
1.1.1. Polarización Eléctrica en Óptica No Lineal . . . 1
1.1.2. Ecuación de Onda No Lineal . . . 2
1.1.3. Ecuación de onda con una no linealidad a tercer orden . . . 2
1.1.4. Refracción no lineal de tercer orden . . . 4
1.1.5. Absorción no lineal de tercer orden . . . 5
1.2. Teoría de la absorción multifotónica . . . 5
1.2.1. Absorción Lineal . . . 9
1.2.2. Absorción de dos fotones . . . 12
1.2.3. Absorción Multifotónica . . . 14
1.3. La no localidad en efectos ópticos . . . 15

2. Técnica de Z-scan 17
2.1. Modelo de la interacción local . . . 17

3. Modelo propuesto 21
3.1. Modelo de la interacción no local . . . 21
3.2. Modelo propuesto . . . 22

4. Resultados numéricos 25
4.1. Curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto considerando la técnica de Z-scan con abertura . . . 25
4.2. Curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto considerando la técnica de Z-scan sin abertura . . . 31
4.3. Comparación de curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto con curvas de Z-scan utilizando los modelos que consideran una interacción local . . . 34

5. Conclusiones 39

Bibliografía 41

Agradecimientos

A mi familia, por su inmenso apoyo, porque, aunque muchas veces estuve ausente, ellos siempre estuvieron allí incondicionalmente.

A todos los profesores con los que conviví a lo largo de la carrera. Principalmente le agradezco al Dr. Maximino Luis Arroyo Carrasco por su tiempo y paciencia, gracias.

A Conacyt por la beca que me otorgo.

Resumen

En este proyecto de tesis se propone un modelo de la interacción luz-materia con dos respuestas no lineales simultáneas a tercero y quinto orden para medios delgados, considerando la interacción no local. El modelo determina los coeficientes refractivos y de absorción no lineales, al igual que la no localidad considerando un medio delgado. Se analiza la interacción de un haz Gaussiano al propagarse en una muestra delgada donde se presentan dos respuestas no lineales no locales a tercero y quinto orden, refractivas y absortivas simultáneamente, ambas con su respectiva no localidad, obteniendo una expresión del campo eléctrico a la salida de la superficie del medio, el cual se propaga a campo lejano y se calcula la Transmitancia normalizada. Considerando lo anterior, se hace un programa computacional realizado en MatLab, donde se obtiene el resultado final de este proceso para poder obtener las curvas de Z-scan. Se fundamenta el modelo propuesto de la interacción no local. Se presentan curvas de Z-scan donde se emplea el modelo propuesto y se comparan con las curvas de Z-scan donde se considera el modelo de la interacción local de luz-materia refractiva no lineal a tercero y quinto orden. También las curvas de Z-scan utilizando el modelo propuesto, se comparan con las curvas de Z-scan donde se considera el modelo de la interacción local con absorción multifotónica. Se presentan curvas numéricas de Z-scan, donde se modifican los valores de la no localidad en ambas respuestas no lineales, bajo la condición de que alguna de las dos respuestas dominara con respecto a la otra, con el objetivo de analizar la influencia de la no localidad en las respuestas a tercero y quinto orden.

Introducción

La óptica es la rama de la física que estudia los orígenes, la propagación y la detección de la luz, tal vez esto pueda explicar por qué la óptica es una de las ramas más antigua, ya que el contacto más inmediato con el mundo exterior es a través de la vista. El área de la óptica no lineal considera el estudio de los fenómenos producidos por la interacción de luz láser con la materia, estos fenómenos ocurren cuando la respuesta del material a un campo óptico aplicado depende de potencias mayores a uno de la amplitud del campo aplicado [1]. En 1961 se observa el primer fenómeno óptico no lineal con el experimento de la generación del segundo armónico [2]. Otros fenómenos estudiados son la generación del tercer armónico, la absorción de dos fotones, el índice de refracción dependiente de la intensidad [3], entre otros.

El estudio realizado por J. P. Gordon et al. [4], llevo a la observación de variaciones de la potencia cuando se colocaron celdas líquidas dentro del resonador de un láser de helio-neón, el movimiento transversal de una muestra alrededor de un ancho de haz causó nuevas variaciones de potencia similares a los iniciales y se creyó que los efectos son causados por la absorción de la luz roja en el material, produciendo un calentamiento local en la proximidad del haz y un efecto de lente que surge del gradiente transversal del índice de refracción. En 1979 D. Weaire et al. [5], mediante una expansión en serie de potencias de la función exponencial, resolvieron el problema de la propagación del perfil de cambio de fase Gaussiano que ha pasado a través de una muestra delgada de un material que presenta refracción no lineal. El cálculo numérico de la intensidad sobre eje a campo lejano, también puede ser tratado utilizando la teoría de difracción de Fresnel–Kirchhoff [6], el método FFT (por sus siglas en ingles Fast Fourier Transform) [7], entre otros.

Los materiales que han sido objeto de estudio para su caracterización óptica no lineal, son tanto líquidos, sólidos como gases [8, 9, 10, 11, 12, 13, 14], estos materiales al presentar una respuesta no lineal óptica, la caracterización resulta relevante debido a las posibles aplicaciones en el área de la fabricación de guías de onda óptica [15], en limitadores ópticos [16, 17], en grabado holográfico [18], entre otros. Por lo tanto, el método experimental que permite caracterizar la respuesta no lineal óptica de los materiales toma un papel importante.
En 1990, basándose en los estudios reportados en [4] y [5], Sheik-Bahae et al. [19], propusieron una técnica sensible a cambios de fase, denominada Z-scan, la cual permite medir tanto el coeficiente de refracción no lineal como el coeficiente de absorción no lineal, para muestras delgadas, en la que el signo y magnitud de la refracción y de la absorción no lineales se deduce de una curva de transmitancia. Los estudios con la técnica de Z-scan se han llevado a cabo en varias muestras desde el régimen de muestras casi delgadas hasta gruesas [20].

En materiales isótropos, algunos estudios han limitado su atención a la no linealidad de tercer orden [19, 21], considerando que la contribución de efectos de más alto orden suele ser débil o ignorable, sin embargo la posibilidad de contar con láseres de mayor potencia y sobre todo con pulsos de luz ultracortos de una fuente láser hacen necesario el estudio de efectos no lineales de mayor orden [22]. Existen estudios de materiales que presentan una interacción con un haz de luz láser como una respuesta no lineal de alto orden [23, 24]. La respuesta no lineal depende del tipo de fuente de luz

y del material a estudiar, en los materiales no centrosimétricos, la primera respuesta no lineal es de segundo orden y en el caso de materiales centrosimétricos, la primera respuesta no lineal es de tercer orden. Con respecto a la fuente de luz, la intensidad es relevante, ya que si no se tiene la intensidad necesaria, la respuesta no lineal no se presentará, al tener una respuesta de tercer orden, si se aumenta la intensidad, la respuesta será más fuerte y podría aparecer una respuesta de más alto orden, entonces se espera que la respuesta de tercer orden predomine. Hay evidencia de la interferencia entre procesos ópticos no lineales de tercer y quinto orden, donde se mostró que a alta intensidad, la influencia de quinto orden lleva a la variación del signo del índice de refracción no lineal [25]. Bing Gu et al. [26], propusieron una interacción del haz de luz láser con un medio como un efecto refractivo a tercero y quinto orden simultáneamente y la presencia de la absorción de dos fotones, en medios locales.

El estudio del proceso de la excitación de dos fotones fue posible con el desarrollo del láser, W. Kaiser y C. G. B. Garrett [27] investigaron la generación de luz fluorescente azul λ=425 nm, iluminando cristales con luz roja λ=694.3 nm. W. Denk et al. [28] reportaron la aplicación de la excitación de la fluorescencia de dos fotones. Los efectos absortivos de mayor orden también resultan de gran interés [29, 30]. F. E. Hernández et al. [31], reportaron la emisión de fluorescencia debido a la conversión ascendente de la absorción de tres fotones de algunos materiales y obtuvieron una expresión para la transmitancia normalizada de la energía que permite determinar el coeficiente de absorción de tres fotones. I. Cohanoschi y F. E. Hernández [32] demostraron el mejoramiento de la absorción de dos y tres fotones en solución acuosa usando la resonancia del plasmón de superficie y determinaron los coeficientes de absorción de dos y tres fotones, ajustando la curva de la transmitancia normalizada experimental con la ecuación reportada en [31]. D. S. Correa et al. [33], reportaron un modelo de la interacción del haz de luz láser con el medio como un proceso de absorción de tres, cuatro y cinco fotones, restringiéndose a efectos locales, utilizando la técnica de Z-scan sin abertura.

Varios trabajos modelan la interacción luz-materia como una respuesta Kerr [34, 35, 36], es decir como una interacción local, sin embargo la interacción puede ser espacialmente no local [37]. La no localidad espacial es un concepto establecido en física de plasmas [38] y significa que la respuesta del medio en un punto particular no está determinada únicamente por la intensidad del campo eléctrico en ese punto, también depende de la intensidad de la onda en la vecindad de ese punto. La naturaleza de la no localidad a menudo resulta de un proceso de transporte como la difusión atómica [39], la transferencia de calor [4, 40] o los portadores de carga [41]. Królikowski et al. [42] discutieron el papel de la no localidad en fenómenos asociados con propagación de un haz láser en un medio no lineal. Cuppo et al. [43] compararon el modelo de lente térmica [4] con el formalismo de Sheik-Bahae et al. [19] y encontraron que el modelo de lente térmica ofrece importantes ideas valiosas sobre la respuesta óptica dependiente de la intensidad de fluidos complejos tales como los cristales líquidos, debido a que el modelo de lente térmica es no local en el espacio y tiempo, mientras que el otro es estrictamente local. E. V. García Ramírez et al. [44], consideraron una interacción no local que modifica el ancho del perfil de cambio de fase. B. A. Martínez Irivas et al. [45], incorporaron la interacción no local a más de una respuesta no lineal, refractiva y absortiva, a tercer orden, donde el medio se toma como un arreglo en cascada [46].

En este trabajo se presenta un modelo de la interacción no local con dos respuestas no lineales, con diferente orden no lineal, ambas con efectos refractivos y abortivos, al igual que su respectiva respuesta no local, considerando una muestra delgada ($L < z_o$). Se presentan curvas de Z-scan teóricas donde se observa la influencia de la interacción no local en las respuestas no lineales a tercer y quinto orden.

La estructura del trabajo de tesis está establecida de la siguiente manera. En el Capítulo 1 se encuentra la teoría óptica no lineal comenzando con la ecuación de onda no lineal y su relación con la refracción y absorción no lineal. También se analiza la absorción multifotónica, la no localidad en los efectos ópticos. En el Capítulo 2 se examina la técnica de Z-scan y el modelo de la interacción luz-materia

como una respuesta local [19, 26, 33]. En el Capítulo 3 se describe el modelo propuesto considerando una interacción no local con dos respuestas no lineales. En el Capítulo 4 se presentan los resultados numéricos utilizando el modelo propuesto para curvas de Z-scan, considerando la técnica de Z-scan con y sin abertura, para respuestas con diferentes no localidades y diferentes cambios de fase máximos sobre eje. Se hace la comparación del modelo de la interacción propuesto con los modelos descritos en [26] y [33]. El Capítulo 6 contiene las conclusiones del trabajo.

Capítulo 1

Teoría óptica no lineal

1.1. Óptica No Lineal

La óptica no lineal estudia los fenómenos que ocurren como una consecuencia de la modificación de las propiedades ópticas del material de estudio por la presencia de la luz. La luz láser es lo suficientemente intensa para modificar las propiedades del material de estudio. Cuando la respuesta de un material a un campo óptico aplicado depende de potencias en valores mayores a uno de la amplitud del campo aplicado, surgen los fenómenos ópticos no lineales. En este capítulo se abordaran los temas relacionados con el estudio de la óptica no lineal, para poder entender la respuesta no lineal refractiva y absortiva, al igual que la importancia de la no localidad para describir estas respuestas ópticas no lineales.

1.1.1. Polarización Eléctrica en Óptica No Lineal

La polarización $\vec{P}$ o el momento dipolar por unidad de volumen y el grado de polarización de un medio dieléctrico dependen de la amplitud del campo eléctrico aplicado y de las propiedades de las moléculas que constituyen al medio. La polarización está definida a partir de la permitividad eléctrica en el vacío ϵ_0, de la susceptibilidad eléctrica del medio χ y del campo eléctrico que interacciona con el medio $\vec{E}$, razón por la cual, la polarización caracteriza la interacción luz-materia. $\vec{P}$ y $\vec{E}$ son proporcionales en un medio lineal, en general si hay pérdidas y dispersión, la susceptibilidad eléctrica del medio $\chi^{(1)}$ se convierte en tensor de variable compleja, entonces la respuesta óptica no lineal del medio se puede describir expresando a la polarización $\vec{P}$ como [1]:

$$\vec{P} = \varepsilon_0\chi^{(1)}\vec{E} + \varepsilon_0\chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \varepsilon_0\chi^{(3)} \vdots \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \cdots, \tag{1.1}$$

donde los puntos verticales representan contracciones vectoriales. Si el material es homogéneo e isótropo, la polarización $\tilde{P}$, el campo eléctrico $\tilde{E}$ y la susceptibilidad eléctrica del medio χ son cantidades escalares, entonces $\tilde{P}$ es:

$$\begin{aligned} \tilde{P} &= \varepsilon_0\chi^{(1)}\tilde{E} + \varepsilon_0\chi^{(2)}\tilde{E}^2 + \varepsilon_0\chi^{(3)}\tilde{E}^3 + \cdots \\ &= \tilde{P}^{(1)}(\tilde{E}) + \tilde{P}^{(2)}(\tilde{E}) + \tilde{P}^{(3)}(\tilde{E}) + \cdots \\ &= \tilde{P}_L(\tilde{E}) + \tilde{P}_{NL}(\tilde{E}), \end{aligned} \tag{1.2}$$

con $\tilde{P}_L(\tilde{E})=\tilde{P}^{(1)}(\tilde{E})=\varepsilon_0\chi^{(1)}\tilde{E}$ el termino lineal y $\tilde{P}_{NL}(\tilde{E})=\tilde{P}^{(2)}(\tilde{E}) + \tilde{P}^{(3)}(\tilde{E}) + \cdots$ el termino no lineal y la virgulilla " ˜ "denota una cantidad que varía rápidamente en el tiempo.

1.1.2. Ecuación de Onda No Lineal

Para entender la interacción de la luz con la materia, se analizan las soluciones de la ecuación que describe a un campo eléctrico tanto espacial como temporalmente, interactuando con un material que presenta una respuesta óptica no lineal.

Para un material isotrópico, no magnético, no conductor, dieléctrico homogéneo, se tiene que, la conductividad σ=0, la magnetización $\vec{M}$=0 , la densidad de carga ρ_{total}=0 y $\nabla \cdot \vec{E}$=0. Por lo tanto, las ecuaciones de Maxwell son [1]:

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0, \tag{1.3}$$
$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \tag{1.4}$$
$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \tag{1.5}$$
$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}, \tag{1.6}$$

donde $\vec{D}$ es el vector de desplazamiento eléctrico definido como $\vec{D}$=$\varepsilon_0\vec{E} + \vec{P}$, $\vec{B}$ el flujo magnético definido como $\vec{B}$=$\mu_0\vec{H}$, μ_0 la susceptibilidad magnética en el vacío, $\vec{H}$ el campo magnético.

Utilizando las ec.(1.2), (1.5) y (1.6), se obtiene la ecuación de onda no lineal [1]:

$$\nabla^2\vec{E} - \frac{n_0^2}{c_0^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\vec{P}_{NL}}{\partial t^2}, \tag{1.7}$$

donde ∇^2=$\partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2 + \partial^2/\partial z^2$ es el operador Laplaciano transversal, n_0 es el índice de refracción lineal y c_0 la velocidad de la luz en el vacío. En la ec. (1.7) se observa que del lado izquierdo se tiene el comportamiento espacial y temporal del campo eléctrico $\vec{E}$ y del lado derecho una polarización $\vec{P}_{NL}$ variable en el tiempo, lo que permite generar nuevas componentes del campo electromagnético, siendo la razón por la que la polarización juega un papel fundamental en la descripción de los fenómenos ópticos no lineales.

1.1.3. Ecuación de onda con una no linealidad a tercer orden

Se considera un campo eléctrico real que viaja en dirección z que depende de $\vec{r}$ y del tiempo t, teniendo así el caso unidimensional. El campo eléctrico es de la forma:

$$\tilde{E}(z,t) = \frac{1}{2}E(\vec{r},t)e^{-i(\omega t - kz)} + c.c., \tag{1.8}$$

donde $\tilde{E}(z,t)$ está representado en términos de las amplitudes complejas. Los factores de $\frac{1}{2}$ en la amplitud aparecen debido a que la amplitud del campo físico $\tilde{E}(z,t)$ se divide en partes iguales entre las componentes de frecuencia positiva y negativa.

La respuesta no lineal se relaciona con la simetría en la estructura atómica de los materiales. Para este análisis se estudian materiales centrosimétricos, homogéneos e isótropos, en donde la primera respuesta no lineal que aparece es la de tercer orden. Por lo tanto, en la polarización podemos considerar el término lineal y el de tercer orden de la ec. (1.2) como sigue:

$$\tilde{P}(z,t) = \frac{1}{2}\varepsilon_0\chi^{(1)}Re(E(\vec{r},t)e^{-i(\omega t-kz)}) + \frac{1}{2}\varepsilon_0\chi^{(3)}|E|^2Re(E(\vec{r},t)e^{-i(\omega t-kz)}), \tag{1.9}$$

donde la polarización no lineal de tercer orden es:

$$\tilde{P}^{(3)}(z,t) = \frac{1}{2}\varepsilon_0\chi^{(3)}|E|^2Re(E(\vec{r},t)e^{-i(\omega t-kz)}), \tag{1.10}$$

y la susceptibilidad eléctrica del medio $\chi^{(3)}$ se considera compleja:

$$\chi^{(3)} = \chi_r^{(3)} + i\chi_i^{(3)}, \tag{1.11}$$

donde $\chi^{(3)}$ es la susceptibilidad de tercer orden que resulta de la polarización a tercer orden a la misma frecuencia que la de la onda entrante. Dependiendo de la fase relativa del campo externo $\tilde{E}(z,t)$ y del campo que se genera dentro de la muestra debido a la polarización $\tilde{P}^{(3)}(z,t)$, la respuesta no lineal óptica es el cambio de fase no lineal, la amplitud, o ambos del haz transmitido. Entonces, el material exhibe la refracción o absorción no lineal, o ambos. Por lo tanto, la ecuación de onda no lineal a resolver se reduce al caso unidimensional, tomando la forma:

$$\nabla^2\tilde{E}(\vec{r},t) - \frac{n_0^2}{c_0^2}\frac{\partial^2\tilde{E}(\vec{r},t)}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\tilde{P}^{(3)}(\vec{r},t)}{\partial t^2}. \tag{1.12}$$

Usando la aproximación de la envolvente lentamente variable en z, es decir, $\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial z^2} \ll k^2E$ [47] y suponiendo que $\omega\frac{\partial\tilde{E}}{\partial t} \ll \omega^2|E|$ [47], entonces, se considera una envolvente compleja $\tilde{E}(\vec{r},t)$ armónica en el tiempo, que varíe lentamente en la dirección de propagación z, cuyas normales a los frentes de onda son rayos paraxiales. Así la envolvente compleja $\tilde{E}(\vec{r},t)$ satisface la ecuación siguiente:

$$\nabla_T^2E - 2in_0k_0(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_0}{c}\frac{\partial}{\partial t})E = -\frac{\mu_0\omega^2}{2c^2}\chi^{(3)}|E|^2E, \tag{1.13}$$

donde $\nabla_T^2{=}\partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ es el operador Laplaciano transversal. Suponiendo que la envolvente compleja $\tilde{E}(\vec{r},t)$ es un campo estacionario, transformándola a un tiempo de retardo, es decir a un cambio de origen temporal, se puede simplificar la ec. (1.13). Se tiene el cambio de variable $t'{=}t - \frac{n_0}{c}z$ y la envolvente compleja $\tilde{E}(\vec{r},t') = \tilde{E}(\vec{r},t)$, permitiendo obtener:

$$\nabla_T^2E + 2in_0k_0\frac{\partial E}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{2c^2}\chi^{(3)}|E|^2E. \tag{1.14}$$

Si se considera un medio delgado con una longitud $L < z_0$, donde z_0 es la distancia de Rayleigh [47], bajo la iluminación de un haz Gaussiano [47], los cambión en la dirección de propagación z del haz serán pequeños, por lo que el ancho del haz Gaussiano no varía, permitiendo aproximar $\nabla_T^2E \ll \frac{\partial E}{\partial z}$. Entonces el haz Gaussiano se puede separar en una amplitud compleja que varía lentamente y con un término de cambio de fase, como sigue:

$$E(z) = A(z)e^{i\Delta\phi(z)}. \tag{1.15}$$

Por lo tanto, la ecuación que describe cómo se propaga el haz Gaussiano dentro del medio delgado es:

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i\omega}{4n_0c}\chi^{(3)}|E|^2E. \tag{1.16}$$

Con las ec. (1.11) y (1.15) sustituidas en la ec. (1.16) y separando la parte real y la imaginaria, se obtienen las siguientes ecuaciones:

$$\frac{\partial \Delta\phi}{\partial z} = \frac{\omega}{4n_0c}\chi_r^{(3)}A^2, \tag{1.17}$$

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -\frac{\omega}{4n_0c}\chi_i^{(3)}A^3, \tag{1.18}$$

La intensidad esta definida como sigue:

$$I = \frac{n_0\varepsilon_0c}{2}A^2. \tag{1.19}$$

1.1.4. Refracción no lineal de tercer orden

Al sustituir la ec. (1.19) en (1.17) se llega a la ecuación que describe la variación del cambio de fase dentro de la muestra:

$$\frac{\partial \Delta\phi}{\partial z} = k\Delta n(I), \tag{1.20}$$

con $\Delta n(I)$ es el cambio de índice de refracción dependiente de la intensidad:

$$\Delta n(I) = k\gamma_1 I, \tag{1.21}$$

$$\tag{1.22}$$

con γ el coeficiente de refracción no lineal de tercer orden:

$$\gamma_1 = \frac{\chi_r^{(3)}}{2n_0^2\varepsilon_0c}. \tag{1.23}$$

donde γ puede ser positivo o negativo, teniendo de esa forma un cambio de índice de refracción no lineal positivo o negativo. Las unidades de γ son $[\gamma]=[\frac{m^2}{W}]$, en el sistema (MKS). El índice de refracción no lineal de tercer orden está representado por la expresión que sigue:

$$n = n_0 + \Delta n(I), \tag{1.24}$$

donde n_0 es el coeficiente de refracción lineal y $\Delta n(I)$ es el cambio de índice de refracción no lineal. Algunos de los mecanismos que pueden producir un cambio no lineal en el índice de refracción son la orientación molecular [48], efectos térmicos [47], entre otros. Cuando $\Delta n(I)$ es proporcional a la intensidad I y considerando γ una constante, este tipo de cambio en el índice es llamado efecto Kerr por analogía con el efecto electro-óptico Kerr [48].

Uno de los procesos que puede ocurrir como resultado de la dependencia de la intensidad del índice de refracción es el auto-enfocamiento. Este proceso sucede cuando un haz de luz tiene una distribución de intensidad transversal no uniforme propagándose a través de un material que tiene un cambio de índice de refracción no lineal positivo. Bajo esta condición, el material actúa como una lente positiva. De forma similar el auto-desenfocamiento ocurre cuando el material tiene un cambio de índice de refracción no lineal negativo. Estos efectos se pueden observar en la figura 1.1.

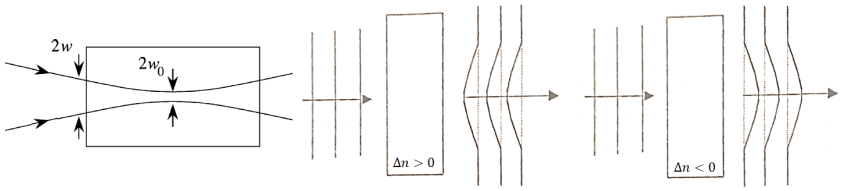

Figura 1.1: Índice de refracción dependiente de la intensidad: Auto-enfocamiento ($\Delta n > 0$) y Auto-desenfocamiento ($\Delta n < 0$) [1].

1.1.5. Absorción no lineal de tercer orden

Al sustituir la ec. (1.19) en (1.18) se llega a la ecuación que describe la variación de la intensidad dentro de la muestra:

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha(I)I, \tag{1.25}$$

con $\alpha(I)$ es la absorción no lineal, ya que depende de la intensidad:

$$\alpha(I) = \alpha_2 I, \tag{1.26}$$

con α_2 el coeficiente de absorción de dos fotones:

$$\alpha_2 = \frac{\omega}{n_0^2 \varepsilon_0 c^2} \chi_i^{(3)}. \tag{1.27}$$

donde α_2 puede ser positivo o negativo, teniendo de esa forma una absorción no lineal positiva o negativa. Las unidades de β son $[\alpha_2]=[\frac{m}{W}]$, en el sistema (MKS). En la siguiente subsección se analizara la manera de obtener la forma general de la absorción dependiente de la intensidad $\alpha(I)$ cuando se consideran respuestas no lineales absortivas de más alto orden.

1.2. Teoría de la absorción multifotónica

El proceso de absorción multifotónica toma lugar cuando se enfoca una fuente de luz con alta intensidad y dos o más fotones son absorbidos por el material. Algunos ejemplos de procesos de absorción multifotónica son mostrados esquemáticamente en la figura 1.2:

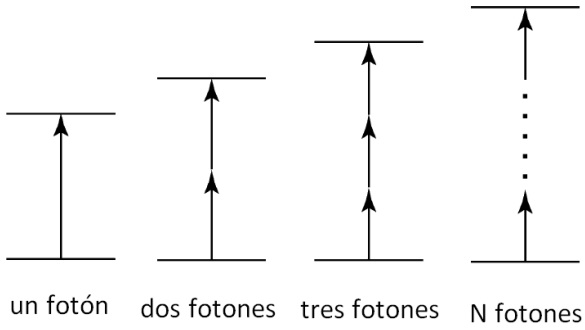

Figura 1.2: Ejemplos de procesos de absorción multifotónica

La microscopia de dos fotones es usada para eliminar mucho del ruido de fondo asociado a la formación de imágenes de materiales que presentan una alta dispersión, porque la mayoría de los materiales dispersan menos en longitudes de onda más largas, en la microscopia de dos se emplea un fluoróforo con alta eficiencia de absorción de dos fotones para dopar la muestra y un láser que emita en el infrarrojo cercano (700-900 nm) como fuente de exploración microscópica para así obtener una imagen y porque la excitación de dos fotones está altamente localizada en el punto focal en el cual la intensidad es la más alta, por lo tanto proporciona sensibilidad solamente en el volumen focal del haz láser incidente [49]. La absorción multifotónica puede conducir al daño por láser de materiales ópticos [50]. También, la absorción multifotónica constituye un mecanismo de pérdida del efecto de la respuesta no lineal que puede limitar la eficiencia de los dispositivos ópticos no lineales, como los interruptores ópticos [51].

Por simplicidad, consideremos el proceso elemental de absorción de dos fotones (TPA por sus siglas en inglés) inducido por un haz láser de frecuencia ω pasando a través de un medio absorbente no lineal. El diagrama esquemático para este proceso en el régimen de la teoría cuántica es mostrado en la figura 1.3 en donde un estado virtual puede ser esquemáticamente representado por una línea punteada entre dos eigenestados reales de la molécula. En este caso, el efecto de TPA induce una transición molecular entre sus dos estados reales que puede ser visualizada como un acontecimiento "de dos pasos". (i) En el primer paso, un fotón es absorbido mientras la molécula deja su estado inicial E_g para ser excitado a un estado intermedio virtual. (ii) En el segundo paso otro fotón podría ser absorbido mientras la misma molécula completa su transición del estado intermedio al estado final real E_n. El tiempo que la molécula permanece en el estado virtual debe ser muy corto, por lo que se asume que estos dos pasos de TPA ocurren simultáneamente.

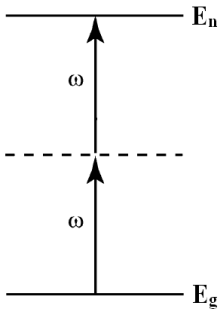

Figura 1.3: Esquema de absorción de dos fotones [1].

Las expresiones que se derivan usando el formalismo de la teoría de perturbaciones de la mecánica

cuántica pueden ser usadas para hacer predicciones precisas de la respuesta no resonante de los átomos y moléculas de un sistema.

Se asume que la función de onda atómica $\psi(\vec{r},t)$ obedece la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo:

$$i\hbar\frac{\partial\psi(\vec{r},t)}{\partial t} = \hat{H}\psi(\vec{r},t), \tag{1.28}$$

donde el operador Hamiltoniano $\hat{H}$ es representado como:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t), \tag{1.29}$$

$\hat{H}_0$ es el Hamiltoniano para el átomo libre y $\hat{V}(t)$ es el potencial de interacción de los átomos con el campo eléctrico:

$$\hat{V}(t) = -\hat{\mu}\vec{E}(t), \tag{1.30}$$

donde $\hat{\mu}$=$-e\vec{r}$ es el operador del momento dipolar y representa la energía de interacción con el campo óptico aplicado. Para simplificar, tomamos este campo como una onda monocromática de la forma:

$$\vec{E}(t) = Ee^{-i\omega t} + c.c., \tag{1.31}$$

para definir el estado inicial, es encendido al tiempo t=0.

Asumimos que la solución de la ecuación de Schrödinger para un átomo libre es conocida y que las funciones de onda asociadas con los eigenestados de energía pueden ser representados como:

$$\psi_n(\vec{r},t) = u_n(\vec{r})e^{-i\omega_n t}, \quad donde \;\; \omega_n = E_n/\hbar. \tag{1.32}$$

La ec. (1.32) satisface la ec. (1.28) (con $\hat{H}$ igualándolo a $\hat{H}_0$) si $u_n(\vec{r})$ satisface la ecuación de eigenvalores siguiente:

$$\hat{H}_0 u_n(\vec{r}) = E_n u_n(\vec{r}). \tag{1.33}$$

Se asume que estas soluciones se escogen de tal manera que constituyen un conjunto completo, por lo tanto ortogonal y ortonormal, por tanto son una base. Así, satisfacen la condición de ortonormalidad:

$$\int u_m^*(\vec{r})u_l(\vec{r})d^3r = \delta_{ml}. \tag{1.34}$$

Ahora regresando al problema general de resolver la ecuación de Schrödinger en presencia de un potencial de interacción dependiente del tiempo $\hat{V}(t)$:

$$i\hbar\frac{\partial\psi(\vec{r},t)}{\partial t} = (\hat{H}_0 + \hat{V}(t))\psi(\vec{r},t). \tag{1.35}$$

Usando la teoría de perturbación:

$$\hat{H}_0 + \lambda \hat{V}(t), \tag{1.36}$$

donde λ es un parámetro que varía continuamente entre 0 y 1 que caracteriza la magnitud de interacción, el valor $\lambda = 0$ corresponde al caso en donde no se considera el potencial de interacción $\hat{V}(t)$ y el valor $\lambda = 1$ corresponde a la situación física en cuestión. Ahora se busca una solución de la ecuación de Schrödinger en forma de series de potencia en λ:

$$\psi(\vec{r},t) \quad = \quad \psi^{(0)}(\vec{r},t) + \lambda\psi^{(1)}(\vec{r},t) + \lambda^2\psi^{(2)}(\vec{r},t) + \cdots . \tag{1.37}$$

Sustituyendo las ecuaciones (1.36) y (1.37) en (1.35), se observa que los términos proporcionales a λ^N satisfacen la igualdad por separado. Por lo tanto, se obtienen el conjunto de ecuaciones:

$$i\hbar\frac{\partial\psi^{(0)}}{\partial t} \quad = \quad \hat{H}_0\psi^{(0)}, \tag{1.38}$$

$$i\hbar\frac{\partial\psi^{(N)}}{\partial t} \quad = \quad \hat{H}_0\psi^{(N)} + \hat{V}\psi^{(N-1)}, \quad N = 1, 2, 3..., \tag{1.39}$$

la solución de la ec. (1.38) es:

$$\psi^{(0)}(\vec{r},t) \quad = \quad u_g(\vec{r})e^{-iE_gt/\hbar}, \tag{1.40}$$

donde l es el estado inicial (estado base). Las ecuaciones en (1.39) se resuelven haciendo uso del hecho de que las eigenfunciones de energía para el átomo libre constituyen un conjunto completo de funciones. La N-ésima contribución a la función de onda es:

$$\psi^{(N)}(\vec{r},t) \quad = \quad \sum_l a_l^{(N)}(t)u_l(\vec{r})e^{-i\omega_l t}, \tag{1.41}$$

donde $a_l^{(N)}(t)$ da la amplitud de probabilidad que, en el N-ésimo orden en la perturbación, el átomo se encuentra en eigenestado l de energía, al tiempo t. Sustituyendo (1.41) en (1.39), se encuentra que las amplitudes de probabilidad sobre el sistema de ecuaciones es:

$$\begin{aligned} &i\hbar\sum_l \frac{\partial a_l^{(N)}(t)}{\partial t}u_l(\vec{r})e^{-i\omega_l t} + i\hbar\sum_l(-i\omega_l)a_l(t)u_l(\vec{r})e^{-i\omega_l t} \\ &= \sum_l a_l(t)E_l u_l(\vec{r})e^{-i\omega_l t} + \sum_l a_l^{(N-1)}(t)\hat{V}(t)u_l(\vec{r})e^{-i\omega_l t}, \end{aligned} \tag{1.42}$$

como (E_l=ω_l), el segundo y tercer término se cancelan. Para simplificar esta expresión fuertemente, multiplicamos ambos lados por $u_m^*(\vec{r})$ e integramos sobre todo el espacio y haciendo uso de la ec. (1.34), entonces:

$$i\hbar\frac{\partial a_m^{(N)}(t)}{\partial t} = \sum_l a_l^{(N-1)}(t)V_{ml}e^{-i\omega_{lm}t}. \tag{1.43}$$

donde ω_{lm}=$\omega_l - \omega_m$ y V_{ml} son los elementos de la matriz del Hamiltoniano perturbado:

$$V_{ml} \equiv \left\langle u_m \left| \hat{V} \right| u_l \right\rangle = \int u_m^*(\vec{r}) \hat{V} u_l(\vec{r}) d^3r, \tag{1.44}$$

Muchas veces, como el caso en cuestión, la ec. (1.44) no puede resolverse exactamente, por esto se utiliza la técnica de perturbación para hallar una aproximación de la solución. Note que, sustituyendo las ecuaciones (1.30) y (1.31) en (1.44), entonces,

$$V_{ml} = -\mu_{ml}(Ee^{-i\omega t} + E^* e^{i\omega t}), \tag{1.45}$$

donde μ_{ml} es conocido como el momento de transición dipolar eléctrico:

$$\mu_{ml} = \int u_m^*(\vec{r}) \hat{\mu} u_l(\vec{r}) d^3r, \tag{1.46}$$

Por lo tanto, una vez que las amplitudes de probabilidad de orden (N-1) son determinadas, las amplitudes del siguiente orden superior (N) pueden ser obtenidas por integración directa en el tiempo. En particular se encuentra que:

$$\frac{\partial a_m^{(N)}}{\partial t} = (i\hbar)^{-1} \sum_l a_l^{(N-1)}(t) V_{ml} e^{-i\omega_{lm} t}, \qquad para\ N = 1,\ 2,\ 3,\ \ldots. \tag{1.47}$$

1.2.1. Absorción Lineal

Observemos cómo se usa la ec. (1.47) para describir la absorción lineal. Se elige N=1 correspondiente a la interacción de primer orden en el campo. Se asume que en la ausencia del campo del láser aplicado, el átomo está en el estado g (típicamente el estado base) tal que:

$$a_g^{(0)}(t) = 1, \quad a_l^{(0)}(t) = 0 \quad para \quad l \neq g, \tag{1.48}$$

Para todo tiempo t. A partir de las ec. (1.45), se puede representar V_{mg} como:

$$V_{mg} = -\mu_{mg}(Ee^{-i\omega t} + E^* e^{i\omega t}), \tag{1.49}$$

Así, la ec. (1.47) se convierte en:

$$\frac{\partial a_m^{(1)}}{\partial t} = -(i\hbar)^{-1} \mu_{mg} \left[Ee^{i(\omega_{mg} - \omega)t} + E^* e^{i(\omega_{mg} + \omega)t} \right], \tag{1.50}$$

Esta ecuación puede ser integrada de la siguiente forma:

$$\begin{aligned} a_m^{(1)}(t) &= -(i\hbar)^{-1} \mu_{mg} \int_0^t \left[Ee^{i(\omega_{mg} - \omega)t'} + E^* e^{i(\omega_{mg} + \omega)t'} \right] dt', \\ &= \frac{\mu_{mg} E}{\hbar(\omega_{mg} - \omega)} \left[e^{i(\omega_{mg} - \omega)t} - 1 \right] + \frac{\mu_{mg} E}{\hbar(\omega_{mg} + \omega)} \left[e^{i(\omega_{mg} + \omega)t} - 1 \right]. \end{aligned} \tag{1.51}$$

La estructura resonante de esta expresión es ilustrada esquemáticamente en la figura 1.4. Note que el primer término en esta expresión representa la resonancia para el proceso de absorción de un fotón

(figura 1.4 a) y el segundo representa la resonancia para el proceso de emisión estimulada (figura 1.4 b) (si el estado m esta debajo del estado g). Para el proceso de absorción de un fotón, no se considera el segundo término.

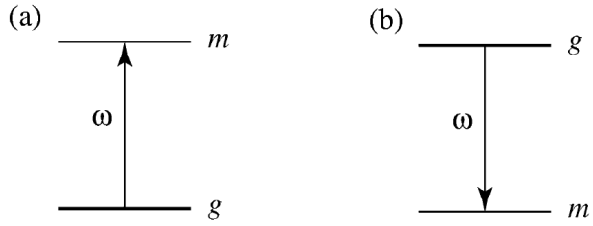

Figura 1.4: (a) El primer término en la ec. (1.51) *describe el proceso de absorción de un fotón, mientras (b) el segundo término describe el proceso de emisión estimulada [1].*

Entonces $a_m^{(1)}(t)$ es una amplitud de probabilidad, la probabilidad $P_m^{(1)}(t)$ que el átomo esté en el estado m al tiempo t es dado por:

$$\begin{aligned} P_m^{(1)}(t) &= |a_m^{(1)}(t)|^2 = \frac{|\mu_{mg}E|^2}{\hbar^2}\left|\frac{e^{i(\omega_{mg}-\omega)t}}{\omega_{mg}-\omega}\right|^2, \\ &= \frac{|\mu_{mg}E|^2}{\hbar^2}\frac{4\sin^2[(\omega_{mg}-\omega)t/2]}{(\omega_{mg}-\omega)^2} \equiv \frac{|\mu_{mg}E|^2}{\hbar^2}f(t), \end{aligned} \tag{1.52}$$

donde

$$f(t) = \frac{4\sin^2[(\omega_{mg}-\omega)t/2]}{(\omega_{mg}-\omega)^2}. \tag{1.53}$$

Examinando la dependencia temporal de esta expresión para un valor grande del tiempo de interacción t, note que se puede expresar $f(t)$ como:

$$f(t) = t^2\left(\frac{\sin^2 x}{x^2}\right), \ \textit{donde } x \equiv (\omega_{mg}-\omega)t/2, \tag{1.54}$$

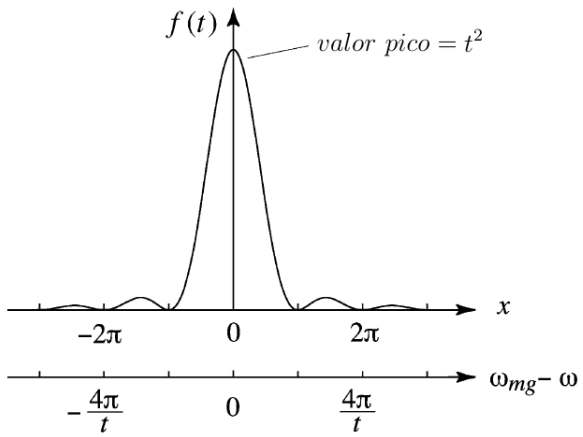

Figura 1.5: Aproximación de $f(t)$ *de la ec.* (1.54) *como una función delta de Dirac [1].*

Note que, en la figura 1.5, el valor del pico de $f(t)$ es t^2, pero el ancho del pico central es del orden de $2\pi/t$. Entonces, el área bajo el pico central es del orden de $2\phi t$ y para un tiempo grande t la función se aproxima al pico más alto. Estos hechos sugieren que, para un tiempo grande t, $f(t)$ es proporcional al tiempo t una función delta de Dirac. Recordemos que una representación equivalente de la función delta de Dirac [52] es:

$$\lim_{n\to\infty} \frac{\sin^2(n(x-x_0))}{n\pi(x-x_0)^2} \quad = \quad \delta(x-x_0)$$

De la ec. (1.54) se sigue que:

$$\lim_{t\to\infty} f(t) \quad = \quad 2\pi t\delta(\omega_{mg}-\omega). \tag{1.55}$$

Entonces, para un tiempo grande t, la probabilidad para estar en el nivel superior m puede ser representada por:

$$P_m^{(1)}(t) \quad = \quad \frac{|\mu_{mg}E|^2}{\hbar^2} 2\pi t\delta(\omega_{mg}-\omega). \tag{1.56}$$

Este resultado representa una situación no física por la presencia de la función delta de Dirac del lado derecho de la ec. (1.56). En una situación real, la transición a la frecuencia ω_{mg} no es perfectamente bien definida, pero se extiende en una distribución continua por varios mecanismos de ensanchamiento de línea tal como muestra la figura 1.6. A veces se expresa este pensamiento diciendo que el estado final m se extiende a una densidad de estados finales $\rho_f(\omega_{mg})$, definida tal que $\rho_f(\omega_{mg})d\omega_{mg}$ es la probabilidad en la que la frecuencia de transición se encuentra entre ω_{mg} y $d\omega_{mg}$. En el contexto de física atómica, $\rho_f(\omega_{mg})$ es a menudo conocido como la función de la forma de línea atómica.

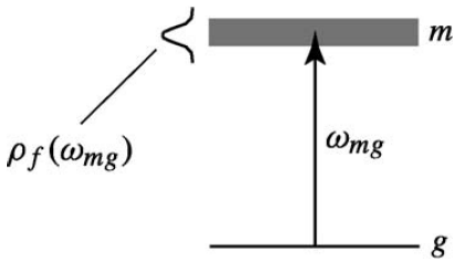

Figura 1.6: El nivel m se extiende dentro de una densidad de estados descritos por una función $\rho_f(\omega_{mg})$ [1].

La densidad de estados finales es normalizada tal que:

$$\int_0^\infty \rho_f(\omega_{mg})d\omega_{mg} \quad = \quad 1 \tag{1.57}$$

Un buen ejemplo de la densidad de estados finales es la función de la forma de línea Lorentziana:

$$\rho_f(\omega_{mg}) \quad = \quad \frac{1}{\pi}\frac{\Gamma' 2}{(\bar{\omega}_{mg}-\omega_{mg})^2+(\Gamma/2)^2} \tag{1.58}$$

donde $\bar{\omega}_{mg}$ es la frecuencia de transición de la línea central y Γ es el ancho total a la mitad del máximo de la distribución en las unidades de la frecuencia angular. Para una transición ensanchada por un tiempo de vida finito de su nivel superior, Γ es la tasa de disminución de la población del nivel superior [53]. Para la transición caracterizada por una densidad del estado final, la probabilidad $P_m^{(1)}(t)$ de estar en el nivel superior dado por la ec. (1.56), debe ser promediado sobre todos los posibles valores de las frecuencias de transición. Obteniendo:

$$\begin{aligned} P_m^{(1)}(t) &= \frac{|\mu_{mg}E|^2 t}{\hbar^2} 2\int_0^\infty \rho_f(\omega_{mg}) 2\pi\delta(\omega_{mg}-\omega)d\omega_{mg}, \\ &= \frac{2\pi|\mu_{mg}E|^2 t}{\hbar^2} 2\rho_f(\omega_{mg}=\omega). \end{aligned} \tag{1.59}$$

La notación $\rho_f(\omega_{mg}=\omega)$ significa que la densidad de los estados finales esta siendo evaluada a la frecuencia ω de la luz láser incidente. Entonces la probabilidad para el átomo al estar en el nivel superior se ve que incrementa linealmente con el tiempo, se puede definir una tasa de transición de absorción lineal por:

$$R_{mg}^{(1)} = \frac{P_m^{(1)}(t)}{t} = \frac{2\pi|\mu_{mg}E|^2}{\hbar^2}\rho_f(\omega_{mg}=\omega). \tag{1.60}$$

Este resultado es un caso especial de la regla de oro de Fermi. La absorción lineal es a veces descrita en términos de una sección transversal de absorción $\sigma_{mg}^{(1)}(\omega)$, definido tal que:

$$R_{mg}^{(1)} = \sigma_{mg}^{(1)}(\omega)I, \tag{1.61}$$

donde $I{=}2n\epsilon_0 c|E|^2$. Al ser comparado con la ec. (1.60) se encuentra que:

$$\sigma_{mg}^{(1)}(\omega) = \frac{\pi}{n\epsilon_0 c}\frac{|\mu_{mg}|^2}{\hbar^2}\rho_f(\omega_{mg}=\omega). \tag{1.62}$$

1.2.2. Absorción de dos fotones

Ahora se tratará el caso de absorción de dos fotones. Para hacer esto se parte de la ec. (1.47) para $N{=}1$ y $N{=}2$ se obtiene la amplitud de probabilidad $\sigma_{mg}^{(2)}(\omega)$ para el átomo estando en el nivel n al tiempo t. La convención para el etiquetado de varios niveles se muestra en la figura 1.7.

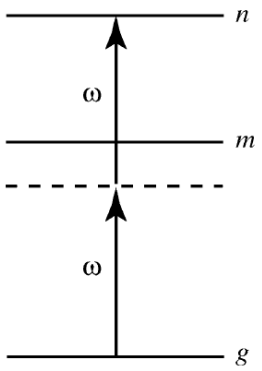

Figura 1.7: Definición de los niveles de energía usados en el cálculo de la tasa de transición de dos fotones [1].

La estrategia es resolver la ec. (1.47) primero para N=1 para obtener $\sigma^{(1)}_{mg}(\omega)$, la cual se usa sobre el lado derecho de la ec. (1.47) con N=2. Así, la expresión que se obtiene es idéntica a la ec. (1.51), obtenida en el tratamiento de la absorción multifotónica. Se expresa V_{nm} como sigue:

$$\begin{aligned} V_{nm} &= -\mu_{nm}(Ee^{-i\omega t} + E^* e^{i\omega t}), \\ &\simeq -\mu_{nm} E e^{-i\omega t}. \end{aligned} \tag{1.63}$$

Aquí se desprecian las frecuencias negativas de la contribución de V_{nm} para una razonable analogía a lo descrito anteriormente en conexión con la ec. (1.51). Entonces:

$$\frac{\partial a^{(2)}_m}{\partial t} = -(i\hbar)^{-1} \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar(\omega_{mg}-\omega)} \left[e^{i(\omega_{ng}-2\omega)t} - e^{i(\omega_{nm}-\omega)t} \right] \tag{1.64}$$

donde ω_{ng}=$\omega_{mg} + \omega_{nm}$.

Lo siguiente es no considerar el segundo término de los paréntesis cuadrados, el cual describe la transición del sistema que no conduce a la absorción de dos fotones. Esto lleva a la ecuación que puede ser integrada directamente, obteniendo:

$$\begin{aligned} a^{(1)}_m(t) &= -(i\hbar)^{-1} \int_0^t \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar(\omega_{mg}-\omega)} e^{i(\omega_{ng}-2\omega)t} dt', \\ &= \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)} \left[\frac{e^{i(\omega_{ng}-2\omega)t} - 1}{\omega_{ng} - 2\omega} \right]. \end{aligned} \tag{1.65}$$

El procedimiento del cálculo siguiente es análogo al que se hizo para la absorción lineal.
La probabilidad de estar el átomo en el nivel n está dado por:

$$P^{(2)}_m(t) = |a^{(2)}_m(t)|^2 = \left| \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)} \right|^2 \left| \frac{e^{i(\omega_{ng}-2\omega)t} - 1}{\omega_{ng} - 2\omega} \right|^2, \tag{1.66}$$

Para un tiempo grande t, de igual forma que las ec. (1.52) y ec. (1.56), la expresión se convierte en:

$$P^{(2)}_m(t) = \left| \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)} \right|^2 2\pi t \delta(\omega_{ng} - 2\omega), \tag{1.67}$$

y si asumimos que el nivel m se extiende dentro de una densidad de estados:

$$P^{(2)}_m(t) = \left| \sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)} \right|^2 2\pi t \rho(\omega_{ng} = 2\omega). \tag{1.68}$$

Entonces la probabilidad para que el átomo se encuentre en el nivel superior se ve que aumenta linealmente con el tiempo, se puede definir una razón de transición para la absorción de dos fotones dada por:

$$R_{ng}^{(2)} = \frac{P_m^{(1)}(t)}{t} = \left|\sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)}\right|^2 2\pi\rho(\omega_{ng}=2\omega). \tag{1.69}$$

Esto es conveniente para recalcar este resultado en términos de una sección transversal de dos fotones:

$$R_{ng}^{(2)} = \sigma_{ng}^{(2)}(\omega)I^2. \tag{1.70}$$

1.2.3. Absorción Multifotónica

De acuerdo al análisis anterior, se obtiene la siguiente serie de relaciones de la razón de transición por absorción de N fotones:

$$R_{mg}^{(1)} = \left|\frac{\mu_{mg}E}{\hbar}\right|^2 2\pi\rho_f(\omega_{mg}=\omega) = \sigma_{mg}^{(1)}I, \tag{1.71}$$

$$R_{ng}^{(2)} = \left|\sum_m \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}E^2}{\hbar^2(\omega_{mg}-\omega)}\right|^2 2\pi\rho_f(\omega_{ng}=2\omega) = \sigma_{ng}^{(2)}I^2, \tag{1.72}$$

$$R_{og}^{(3)} = \left|\sum_{mn} \frac{\mu_{on}\mu_{nm}\mu_{mg}E^3}{\hbar^3(\omega_{ng}-2\omega)(\omega_{mg}-\omega)}\right|^2 2\pi\rho_f(\omega_{og}=3\omega) = \sigma_{og}^{(3)}I^3, \tag{1.73}$$

$$R_{pg}^{(4)} = \left|\sum_{omn} \frac{\mu_{po}\mu_{on}\mu_{nm}\mu_{mg}E^4}{\hbar^4(\omega_{og}-3\omega)(\omega_{ng}-2\omega)(\omega_{mg}-\omega)}\right|^2 2\pi\rho_f(\omega_{pg}=4\omega) = \sigma_{pg}^{(4)}I^4, \tag{1.74}$$

$$\vdots$$

donde $R_{zg}^{(N)}$ representa una razón de transición y $\sigma_{zg}^{(N)}$ es la sección transversal de absorción de N fotones. La sección transversal de absorción está relacionada con los coeficientes de absorción no lineal de la siguiente forma [54]:

$$\sigma_{zg}^{(N)} = \frac{\alpha_N(h\nu)^{N-1}}{M_0}, \tag{1.75}$$

donde M_0 es la conservación del medio $absorbente/cm^3$ y α_N el coeficiente de absorción de N fotones. Cuando se da el proceso de absorción multifotónica, la sección transversal de absorción es:

$$\sigma = \sigma_{zg}^{(N)}\left(\frac{I}{h\nu}\right)^{N-1}. \tag{1.76}$$

Así, la sección transversal de absorción σ toma la forma general, desarrollandola en serie de potencias:

$$\sigma = \sigma_{mg}^{(1)} + \sigma_{ng}^{(2)}\left(\frac{I}{h\nu}\right) + \sigma_{og}^{(3)}\left(\frac{I}{h\nu}\right)^2 + \cdots + \sigma_{zg}^{(N)}\left(\frac{I}{h\nu}\right)I^{N-1} \tag{1.77}$$

Sustituyendo la relación de la ec. (1.75) en la ec. (1.78):

$$\sigma = \frac{1}{M_0}\alpha_1 I + \frac{1}{M_0}\alpha_2 I^2 + \frac{1}{M_0}\alpha_3 I^3 + \cdots + \frac{1}{M_0}\alpha_N I^{N-1}. \quad (1.78)$$

El coeficiente de absorción α está relacionado con σ como sigue:

$$\alpha = M_0\sigma \quad (1.79)$$

Por lo tanto, la ecuación de la absorción toma la forma general, desarrollandola en serie de potencias:

$$\alpha = \alpha_1 + \alpha_2 I + \alpha_3 I^2 + \alpha_4 I^3 + \cdots + \alpha_N I^{N-1}, \quad (1.80)$$

con n=1, 2, 3... donde comúnmente se conoce a α_1=α_0 como el coeficiente de absorción lineal. Al sustituir la ec. (1.80) en la ec. (1.25), se obtiene la variación de la intensidad dentro del medio como sigue:

$$\frac{\partial I}{\partial z'} = -\left(\alpha_0 + \alpha_2 I + \alpha_3 I^2 + \alpha_4 I^3 + \cdots + \alpha_N I^{N-1}\right) I. \quad (1.81)$$

1.3. La no localidad en efectos ópticos

La no localidad espacial es un concepto establecido en física de plasmas [38] y significa que la respuesta del medio en un punto particular no está determinada únicamente por la intensidad de la onda en ese punto, también depende de la intensidad del campo eléctrico en la vecindad de ese punto. La naturaleza de la no localidad a menudo resulta de un proceso de transporte como la difusión atómica [39], la transferencia de calor [4, 40] o los portadores de carga [41]. Królikowski et al. [42] discutieron el papel de la no localidad en fenómenos asociados con propagación de un haz láser en un medio, como el haz láser es lo suficientemente intenso, al transmitirse en un medio se produce un cambio de índice de refracción, este cambio para una interacción no local puede representarse por la expresión siguiente [42]:

$$\Delta n(I) = s\int R(\vec{\xi} - \vec{r})I(\vec{\xi}, z)d\vec{\xi}, \quad (1.82)$$

donde la integral $\int d\vec{\xi}$ se realiza sobre todas las dimensiones transversales, s indica el signo de la no linealidad y toma los valores 1 y -1; s=1 a un enfocamiento (no linealidad positiva) y s=-1 a un desenfocamiento (no linealidad negativa). La función de respuesta $R(\vec{r})$ se considera real, localizada y simétrica, por lo que satisface la condición de normalización $\int R(\vec{r})d\vec{r}$=1. El ancho de la función de respuesta R determina el grado de no localidad. Para una respuesta local $R(\vec{r})$=$\delta(r)$, Δn=$sI(\vec{\xi}, z)$ lo que significa que el cambio en el índice de refracción en un punto esta determinado por la intensidad de la luz en ese mismo punto, figura 1.9a. Con el incremento del ancho de $R(r)$, la intensidad de la luz en la vecindad de un cierto punto contribuye al cambio en el índice de refracción, esto puede verse en la figura 1.8d. La no localidad tiene un papel muy importante en fenómenos asociados con la propagación de un haz en un medio no lineal [42].

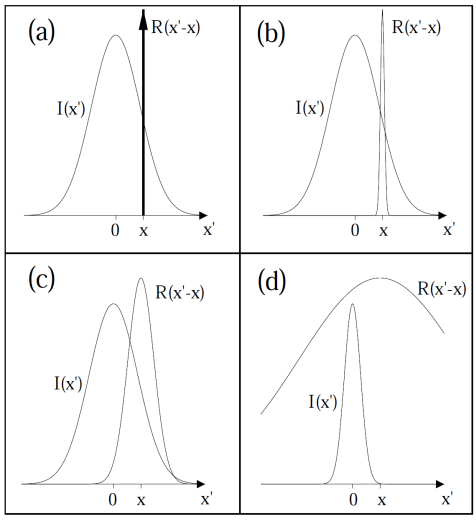

Figura 1.8: Variación del grado de no localidad, dado por el ancho de la función de la respuesta no local $R(x)$ y el perfil de intensidad del haz $I(x)$, a) Respuesta local, b) No localidad débil, c) No localidad general, d) No localidad fuerte [42].

Capítulo 2

Técnica de Z-scan

La técnica de Z-scan [19] es sensible a cambios de fase, lo que permite medir tanto el índice de refracción no lineal como el coeficiente de absorción no lineal, para medios delgados ($L < z_0$). La interacción del haz Gaussiano con el medio que se considera es la respuesta no lineal refractiva o absortiva o ambas, de tercer, quinto y más alto orden, locales y no locales.

La técnica de Z-scan consiste en propagar un haz Gaussiano en un medio delgado ($L < z_o$), desplazándolo en una vecindad de la cintura del haz formada por una lente positiva. El haz resultante a la salida del material se deja propagar a campo lejano. Se coloca un diafragma para restringir el área de transmisión del haz propagado y en frente se coloca un detector, tal como lo muestra la figura 2.1. Debido a la respuesta no lineal refractiva, el índice de refracción depende de la intensidad, produciendo el fenómeno de auto-enfocamiento y auto-desenfocamiento en el haz, causando una variación de la medición de potencia al desplazar la muestra en la vecindad de la cintura, permitiendo construir una gráfica de intensidad contra el desplazamiento de la muestra, que al normalizarla con el caso lineal, se obtiene la Transmitancia normalizada. A partir de esta curva se puede determinar el signo del cambio de índice de refracción no lineal $\Delta n(I)$, si la curva está formada por un valle y un pico, el cambio de índice de refracción $\Delta n(I) > 0$; si se tiene un pico y un valle, el cambio de índice de refracción $\Delta n(I) < 0$. La técnica de Z-scan con abertura, permite determinar el coeficiente de refracción no lineal y también el coeficiente de absorción no lineal, si se presenta una respuesta no lineal refractiva y absortiva simultáneamente. En la técnica de Z-scan sin abertura se capta todo el haz de luz láser en el detector, permitiendo determinar el coeficiente de absorción no lineal. A partir de la Transmitancia normalizada se puede determinar el signo de la absorción no lineal $\alpha(I)$, si la curva está formada por un valle $\alpha(I) > 0$ y si la curva está formada por un pico $\alpha(I) < 0$.

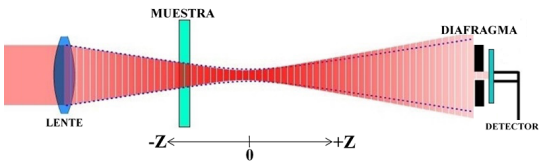

Figura 2.1: Técnica de Z-scan con abertura.

2.1. Modelo de la interacción local

Se considera como fuente un láser pulsado, donde el haz de luz emitido es un haz Gaussiano propagándose en dirección z con cintura W_0, longitud de onda λ, distancia de Rayleigh $z_0{=}\pi W_0^2/\lambda$. El haz

Gaussiano es el campo eléctrico $E(z,r,t)$ a la entrada del medio [47]:

$$E(z,r,t) = E_0(t)\frac{W_0}{W(z)}\exp\left[-\frac{r^2}{W^2(z)}\right]\exp\left[-ikz - ik\frac{r^2}{2R(z)} + i\zeta(z)\right]. \tag{2.1}$$

Por lo tanto, la intensidad a la entrada de la muestra es [54]:

$$I(z,r,t) = I_0\left(\frac{\exp\left[-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right]}{1+\frac{z^2}{z_0^2}}\right). \tag{2.2}$$

Utilizando la ec. (2.1) al resolver las ecuaciones (1.20) y (1.25) que describen la variación del cambio de fase y la variación de la intensidad dentro de la muestra respectivamente y considerando un medio delgado, una interacción del haz Gaussiano con el medio como una respuesta local refractiva no lineal a tercer orden, con un cambio del índice de refracción no lineal Kerr $\Delta n(I)$ descrito en la ec. (1.21), se obtiene el cambio de fase no lineal a la salida de la muestra [19]:

$$\Delta\phi(r,z) = \Delta\phi_0(z)\exp\left[\frac{-2r^2}{W^2(z)}\right] \tag{2.3}$$

$$\Delta\phi_0(z) = \frac{\Delta\Phi_0}{1+z^2/z_0^2} \tag{2.4}$$

donde $\Delta\Phi_0$ es el cambio de fase no lineal máximo sobre eje definido como:

$$\Delta\Phi_0 = k\Delta n_0 L_{eff}, \tag{2.5}$$

con L_{eff}=$(1-e^{-\alpha_0 L})/\alpha_0$ la longitud efectiva, k el número de onda y Δn_0=$\gamma_1 I_0$ el cambio de indice de refracción, con I_0 siendo la intensidad en eje en el foco. Por lo tanto, el campo eléctrico a la salida de la muestra está dado por [19]:

$$E_e(r,z) = E_{en}(r,z)e^{-\alpha_0 L/2}e^{-i\Delta\phi(r,z)}. \tag{2.6}$$

Cuando se considera una interacción luz-materia como una respuesta local, refractiva y absortiva no lineal a tercer orden de manera simultánea, se obtiene lo siguiente. Partiendo de la absorción dependiente de la intensidad descrita en la ec. (1.80), se considera hasta el término de absorción de dos fotones, obteniendo:

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \alpha_2 I, \tag{2.7}$$

donde α_0 es el coeficiente de absorción lineal y α_2 el coeficiente de absorción de dos fotones. Esto produce la distribución de intensidad y el cambio de fase del haz en la superficie de salida de la muestra [55]:

$$I_e(z,r,t) = \frac{I(z,r,t)e^{-\alpha_0 L}}{1+\alpha_2 I(z,r,t)L_{eff}}, \tag{2.8}$$

$$\Delta\phi(z,r,t) = \frac{k\gamma}{\alpha_2}\ln\left[1+q(z,r,t)\right]. \tag{2.9}$$

donde $q(z,r,t)$=$\alpha_2 I(z,r,t)L_{eff}$. Combinando las ec. (2.8) y (2.9), se obtiene el campo eléctrico en la superficie de la salida de la muestra [56]:

$$E_{sal} = E(r,z)\exp(-\alpha_0 L/2)\left[1+q\right]^{-i\frac{k\gamma}{\beta}-\frac{1}{2}}, \tag{2.10}$$

Bing Gu et al. [26], consideraron una interacción del haz Gaussiano con el medio como una respuesta local refractiva a tercero y quinto orden simultáneamente, con un cambio del índice de refracción no lineal $\Delta n(I)$ [26]:

$$\Delta n(I) \quad = \quad k(\gamma_1 I + \gamma_2 I^2), \tag{2.11}$$

donde γ_1 es el coeficiente de refracción no lineal de tercer orden y γ_2 el coeficiente de refracción no lineal de quinto orden. El campo eléctrico a la salida de la muestra está dado por [26]:

$$E_{sal} \quad = \quad E_{en} e^{-\alpha_0 L/2} \exp(i\Delta\phi_1 + i\Delta\phi_2), \tag{2.12}$$

donde el cambio de fase no lineal es:

$$\Delta\phi_n(r,z) = k\gamma_1 I_{en}^n L_{eff}^{(n)} = \Delta\phi_n(z) \exp\left[-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right], \tag{2.13}$$

$$\Delta\phi_n(z) = \Delta\Phi_{0n} / \left[1 + (z/z_0)^2\right]^n, \tag{2.14}$$

$$\Delta\Phi_{0n} = k\gamma_n I_0^n L_{eff}^{(n)}, \tag{2.15}$$

donde $\Delta\Phi_{0n}$ es el cambio de fase no lineal refractivo máximo sobre eje en el foco del orden no lineal (2n+1), con n=1, 2. Las longitudes efectivas son:

$$L_{eff}^{(1)} = \frac{1 - e^{-\alpha_0 L}}{\alpha_0}, \tag{2.16}$$

$$L_{eff}^{(2)} = \frac{1 - e^{-2\alpha_0 L}}{2\alpha_0 L}, \tag{2.17}$$

Corrêa et al. [33], consideraron la interacción del haz Gaussiano con un medio como un proceso de absorción de tres, cuatro y cinco fotones, restringiéndose a una interacción local, utilizando la técnica de Z-scan sin abertura. El proceso de absorción multifotónica consiste en la absorción simultánea de dos o más fotones en un evento individual, cuando se enfoca el haz de una fuente de luz de alta intensidad con pulsos láser ultracortos en un medio material. Considerando la absorción dependiente de la intensidad descrita en la ec. (1.80), donde sólo un proceso no lineal tiene lugar a un tiempo t, el cual puede ser llevado a cabo por la selección propia de longitud de onda, y que la absorción lineal puede ser despreciable, el cambio en intensidad dentro de la muestra esta gobernado por [33]:

$$\frac{dI(z,r)}{dz} \quad = \quad -(\alpha_N I^{N-1})I, \tag{2.18}$$

donde α_N es el coeficiente de absorción no lineal del N–ésimo fotón con n siendo el número de fotones absorbidos en un evento singular.

Por lo tanto, resolviendo la ecuación (2.18), se tiene que [33]:

$$\begin{aligned} I(L,r,t) &= \frac{I_{en}}{\sqrt[N-1]{1 + (N-1)\alpha_N L I_{en}^{n-1}}} \\ &= \frac{I_0 e^{\frac{-2r^2}{w^2(z)}} w_0^2/w^2(z)}{\sqrt[n-1]{1 + (N-1)\alpha_N L \left(I_0 e^{\frac{-2r^2}{w^2(z)}} w_0^2/w^2(z)\right)^{n-1}}} \end{aligned} \tag{2.19}$$

en donde z es la posición de la muestra, t el tiempo, r la posición radial, L la longitud del medio, α_N es el coeficiente de absorción no lineal de N-fotones, siendo N el número de fotones absorbidos en un solo evento, I_0 da el perfil temporal de la intensidad del pulso (considerado gaussiano).

Capítulo 3

Modelo propuesto

3.1. Modelo de la interacción no local

E. V. García Ramírez et al. [44], consideraron una interacción luz-materia no local de la respuesta no lineal, que modifica el ancho del perfil de cambio de fase. Se considera como fuente de luz a un láser continuo, descrito como un haz Gaussiano. Utilizando la ec. (2.1) al resolver las ecuaciones (1.20) y (1.25) que describen la variación del cambio de fase y la variación de la intensidad dentro de un medio delgado, que presenta una respuesta refractiva de tercer orden, con un cambio del índice de refracción no lineal tipo Kerr $\Delta n(I)$ descrito en la ec. (1.21). La interacción no local, está representada con el parámetro $m > 0$. El parámetro m modifica el ancho del perfil de cambio de fase, así, para $m < 2$ se considera una no localidad fuerte (el ancho del perfil de cambio de fase es más grande que el ancho en el caso local), para m=2 se considera el caso local (el ancho del perfil de cambio de fase es proporcional al ancho del perfil Gaussiano de intensidad) y para $m > 2$ se considera una no localidad débil (el ancho del perfil de cambio de fase es más pequeño que el ancho en el caso local).

B. A. Martínez Irivas et al. [45], incorporaron la interacción no local a más de una respuesta no lineal, refractiva y absortiva, a tercer orden, donde el medio se toma como un arreglo en cascada [46]. Bajo las suposiciones ya mencionadas, ahora la respuesta no lineal de la interacción es refractiva y absortiva de forma simultánea a tercer orden, donde la absorción dependiente de la intensidad esta descrita en la ec. (2.7). Se considera la interacción del haz Gaussiano con el medio como dos respuestas no lineales simultáneamente, no locales, m_1 y m_2 y el medio se toma como en un arreglo en cascada, el campo eléctrico a la salida del medio es el resultado del campo eléctrico a salida que fue transmitido a través de un medio delgado con respuesta no local caracterizada por m_1, el cual es usada para iluminar inmediatamente un segundo medio con respuesta no local caracterizada con m_2, entonces se hace una aproximación de primer orden, por lo que la contribución de los términos cruzados no se considera. El campo eléctrico a la salida del medio es [45]:

$$E_{sal} = E(r,z)\exp(-\alpha_0 L/2)\left[1+q_{m_1}\right]^{\left(-(i\frac{\Delta\Phi_{01}}{\Delta\Psi_{01}})-\frac{1}{2}\right)}\left[1+q_{m_2}\right]^{\left(-(i\frac{\Delta\Phi_{02}}{\Delta\Psi_{02}})-\frac{1}{2}\right)}, \tag{3.1}$$

donde

$$q_{m_j} = \alpha_{2j} I_0 G_{loc}^{m_j/2} L_{eff}, \tag{3.2}$$

$$G_{loc} = \frac{\exp\left[-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right]}{1+\frac{z^2}{z_0^2}}. \tag{3.3}$$

$$\Delta\Psi_{0j} = \alpha_{2j} I_0 L_{eff}, \tag{3.4}$$

$$\Delta\Phi_{0j} = k\gamma_{1j} I_0 L_{eff}. \tag{3.5}$$

con j=1 *o* 2, $\Delta\Phi_{0j}$ y $\Delta\Psi_{0j}$ son los cambios de fase refractivos y absortivos máximos sobre eje para cada respuesta no lineal.

3.2. Modelo propuesto

Se considera la interacción con dos respuestas no lineales, no locales, a tercero y quinto orden. La absorción dependiente de la intensidad esta descrita en la ec. (1.80), donde se observa que la absorción de dos fotones descrita en la ec. (2.7), es proporcional a la intensidad que llega a la entrada del medio y la absorción de tres fotones es proporcional a la intensidad al cuadrado. Como la intensidad a la entrada de la muestra en la ec. (2.2) está relacionada con el término G_{loc} de la ec. (3.3) y al considerar una interacción no local, el término $G_{loc}^{m_1/2}$ está relacionado con la absorción de dos fotones, como ya se había observado en [45]. Por lo tanto, la relación que existe entre la absorción de tres fotones y el término G_{loc}:

$$G_{loc}^{m_2} = \left(\frac{\exp\left[-\frac{2r^2}{W^2(z)}\right]}{1+\frac{z^2}{z_0^2}} \right)^{m_2}. \tag{3.6}$$

Al considerar la interacción con dos respuestas no lineales, no locales, se retoma el campo a la salida del medio de la ec. (3.1). Para proponer una interacción del haz de luz láser con el medio material como una respuesta no lineal de tercero y quinto orden, se supone que la no linealidad de tercer orden contenga $G_{loc}^{m_1/2}$ y que la no linealidad de quinto orden contenga $G_{loc}^{m_2}$ de la ec. (3.6). Por lo tanto, el campo eléctrico a la salida del medio es:

$$E_{sal} = E(r,z)\exp(-\alpha_0 L/2)\left[1+\Delta\Psi_{01}G_{loc}^{m_1/2}\right]^{-i\frac{\Delta\Phi_{01}}{\Delta\Psi_{01}}-\frac{1}{2}}\left[1+\Delta\Psi_{02}G_{loc}^{m_2}\right]^{-i\frac{\Delta\Phi_{02}}{\Delta\Psi_{02}}-\frac{1}{2}}, \tag{3.7}$$

donde

$$\Delta\Phi_{01} = k\gamma_1 I_0 L_{eff}, \tag{3.8}$$

$$\Delta\Psi_{01} = \alpha_2 I_0 L_{eff}, \tag{3.9}$$

$$\Delta\Phi_{02} = k\gamma_2 I_0 L_{eff}, \tag{3.10}$$

$$\Delta\Psi_{02} = \alpha_3 I_0 L_{eff}, \tag{3.11}$$

con $\Delta\Psi_{0j}$ y $\Delta\Phi_{0j}$ con j=1 *o* 2, son los cambios de fase refractivos y absortivos máximos sobre eje para cada respuesta no lineal.

Si se considera la técnica de Z-scan con abertura, el campo eléctrico a la salida del medio de la ec.(3.7) se propaga a campo lejano. Por lo tanto, la Transmitancia normalizada del campo eléctrico en la abertura, sobre eje está dado por:

$$T(z, \Delta\Phi_0 j, \Delta\Psi_0 j) = \frac{|E_a(z, r=0, \Delta\Phi_0 j, \Delta\Psi_0 j)|^2}{|E_a(z, r=0, \Delta\Phi_0 j = 0, \Delta\Psi_0 j = 0)|^2}, \tag{3.12}$$

donde E_a es el campo eléctrico en la abertura, $|E_a(z, r=0, \Delta\Phi_0 j, \Delta\Psi_0 j)|^2$ es la intensidad a la entrada de la abertura, considerando la interacción del campo eléctrico con el medio del modelo propuesto y $|E_a(z, r=0, \Delta\Phi_0 j = 0, \Delta\Psi_0 j = 0|^2$ es la intensidad a la entrada de la abertura, sin considerar la interacción del campo eléctrico con el medio del modelo propuesto.

La Transmitancia Normalizada de la ec. (3.7) considerando el arreglo experimental de Z-can sin abertura es:

$$T(z, r, \Delta\Psi_0 j) \quad = \quad \frac{\int_0^\infty 2\pi |E_{sal}|^2 r dr}{\int_0^\infty 2\pi |E_{en}|^2 r dr}, \tag{3.13}$$

donde E_{en} es el campo a la entrada de la muestra de la ec. (2.1) y E_{sal} es el campo a la salida de la muestra de la ec. (3.7).

Capítulo 4

Resultados numéricos

En este capítulo se muestran los resultados numéricos de las curvas de Z-scan, donde se modifican los valores de la no localidad en ambas respuestas no lineales, bajo la condición de que alguna de las dos respuestas domina con respecto a la otra, con el objetivo de analizar la influencia de la no localidad en las respuestas a tercero y quinto orden. Para obtener las curvas de Z-scan numéricas, se realiza un programa computacional en MatLab del siguiente proceso. Se considera un láser continuo como fuente, donde el haz de luz emitido es un haz Gaussiano propagándose en dirección z, con una cintura W_0=15 μm, longitud de onda λ=516 nm. Este haz Gaussiano se propaga a través de un medio delgado que es desplazado en la misma dirección de la propagación del haz Gaussiano, alrededor de las posiciones cercanas a la cintura del haz, con $z=\mp z_0$, donde z_0 es la distancia de Rayleigh. El campo eléctrico resultante a la salida de la superficie del medio que se considera es descrito por el modelo de la interacción del haz Gaussiano con el medio material presentado en los capítulos 2 y 3. Este campo eléctrico se propaga a campo lejano con el método FFT (por sus siglas en ingles Fast Fourier Transform) [7]. Posteriormente se calcula la transmitancia normalizada a partir de la ec. (3.12), si se considera la técnica de Z-scan con abertura. En el caso de considerar la técnica de Z-scan sin abertura, la transmitancia normalizada se obtiene a partir de la ec. (3.13).

4.1. Curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto considerando la técnica de Z-scan con abertura

En las siguientes curvas de Z-scan se emplea el modelo propuesto que describe la interacción luz-materia donde el campo a la salida de la superficie del medio material está en la ec. (3.7) y se considera la técnica de Z-scan con abertura.

Caso no local refractivo con una respuesta, variando la no localidad

En la figura 4.1 se muestran las curvas de Z-scan en donde se considera una respuesta no lineal refractiva y se observa el efecto de la no localidad en estas curvas, cambiando el parámetro m con valores de 1, 2 y 4. En la figura 4.1 a) se observa el efecto no local considerando una respuesta a tercer orden, obteniendo curvas semejantes a las reportadas en [44]. En la figura 4.1 b) se muestra el efecto no local considerando una respuesta a quinto orden. Al considerar $\Delta\Phi_{01}$=$\Delta\Phi_{02}$, se observa que al presentarse una sola respuesta no lineal a quinto orden, en las curvas de Z-scan de la figura 4.1 b), la diferencia de transmitancia pico-valle (ΔT_{P-V}) es menor con respecto a la ΔT_{P-V} de las curvas de Z-scan en la figura 4.1 a), lo que permite suponer que la respuesta no lineal a quinto orden se encuentra espacialmente más localizada con respecto a la respuesta no lineal a tercer orden.

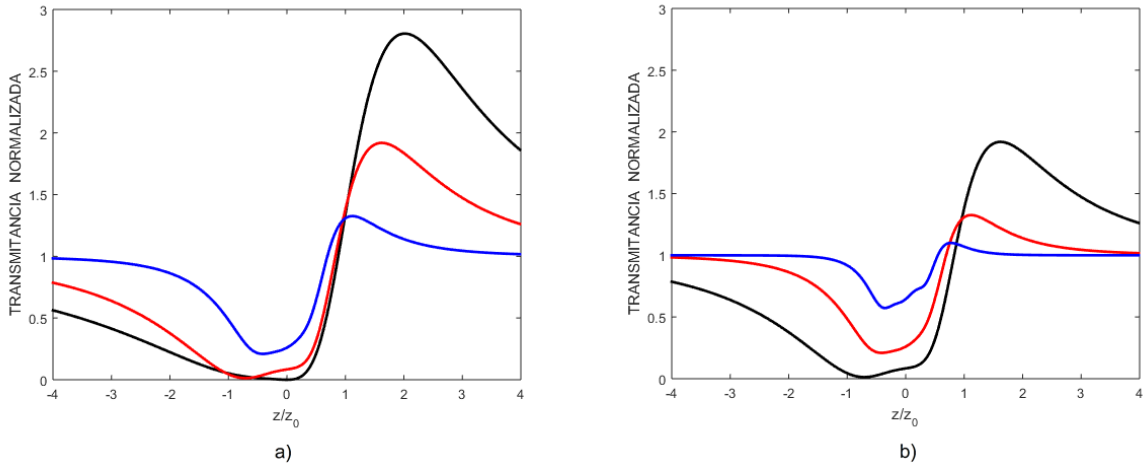

Figura 4.1: Curvas de Z-scan considerando una respuesta no lineal refractiva a) a tercero con $\Delta\Phi_{01}=2\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{01}=0$ *rad., variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b) a quinto con* $\Delta\Phi_{02}=2\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{02}=0$ *rad., variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

Caso refractivo y absortivo con solo una respuesta no lineal, variando la no localidad

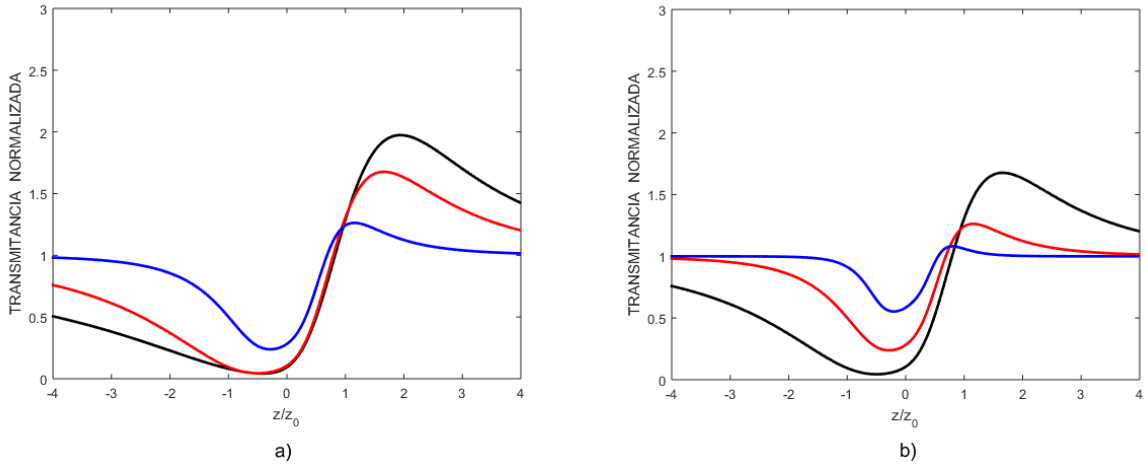

Figura 4.2: Curvas de Z-scan considerando solo una respuesta no lineal refractiva y absortiva a) a tercer orden con $\Delta\Phi_{01}=2\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{01}=0.3\pi$ *rad., variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b) a quinto orden con* $\Delta\Phi_{02}=2\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{02}=0.3\pi$ *rad., variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

En la figura 4.2 se tienen curvas de Z-scan en donde se considera una respuesta refractiva y absortiva no lineal, y se observa el efecto de la no localidad, cambiando el parámetro m con valores de 1, 2 y 4. La figura 4.2 a) muestra el efecto no local considerando una respuesta a tercer orden, obteniendo curvas semejantes a las reportadas en [45]. En la figura 4.2 b) se muestra el efecto no local considerando una respuesta a quinto orden. Al igual que en la figura 4.1, se observa que en las curvas de Z-scan de la figura 4.2 b), ΔT_{P-V} es menor con respecto a la ΔT_{P-V} de las curvas de Z-scan en la figura 4.2 a), por lo que

la respuesta no lineal a quinto orden está espacialmente más localizada con respecto a la respuesta no lineal a tercer orden.

Caso local refractivo con dos respuestas no lineales, a tercero y quinto orden

En la figura 4.3 se muestran curvas de Z-scan, suponiendo una interacción local de dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, cambiando $\Delta\Phi_{01}$ con valores positivos y negativos. En la figura 4.3 a) se observa como el efecto de la respuesta refractiva no lineal a quinto orden predomina con respecto al efecto de la respuesta de tercer orden, porque no se da un cambio de signo de $\Delta n(I)$, ya que en las tres curvas se presenta primero un valle y luego un pico. En la figura 4.3 b) se tiene el caso en donde $\Delta\Phi_{01}$ tiene valores negativos, el efecto de la respuesta refractiva no lineal a tercer orden empieza a predominar con respecto al efecto de la respuesta de quinto orden con $|\Delta\Phi_{01}| > |\Delta\Phi_{02}|$.

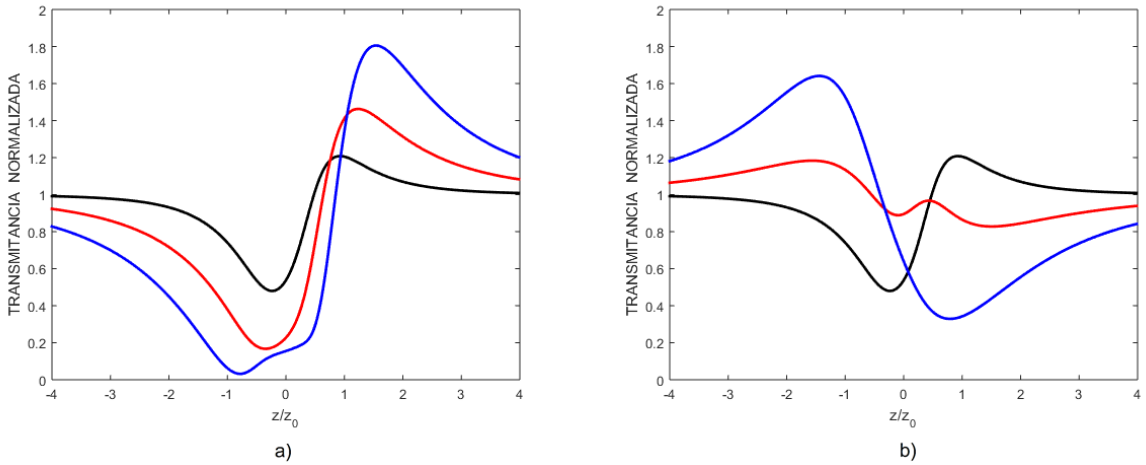

Figura 4.3: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, donde se fijan los valores m_1=2, $\Delta\Psi_{01}$=0 *rad.,* m_2=2, $\Delta\Phi_{02}$=π *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=0 *rad., variando a)* $\Delta\Phi_{01}$*: 0 rad. (curva negra), 0.6*π *rad. (curva roja) y 1.5*π *rad. (curva azul); b)* $\Delta\Phi_{01}$*: 0 rad. (curva negra),* -0.6π *rad. (curva roja) y -1.5*π *rad. (curva azul).*

En la figura 4.4 se tienen curvas de Z-scan, suponiendo una interacción local de dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, cambiando $\Delta\Phi_{02}$ con valores positivos y negativos. En la figura 4.4 a) se observa como el efecto de la respuesta refractiva no lineal a tercer orden predomina con respecto al efecto de la respuesta a quinto orden, porque no se da un cambio de signo de $\Delta n(I)$. En la figura 4.3 b) se tiene el caso en donde $\Delta\Phi_{02}$ tiene valores negativos, el efecto de la respuesta refractiva no lineal a quinto orden empieza a predominar con respecto al efecto de la respuesta a tercer orden con $|\Delta\Phi_{02}| > |\Delta\Phi_{01}|$, obteniéndose curvas de Z-scan semejantes a las presentadas en [35], donde aparecen dos picos y dos valles (curva azul). Entonces, tanto en la figura 4.3 b) y 4.4 b), se observa que, al tener uno de los cambios de fase una magnitud mayor y tener signos opuestos, entonces $\Delta n(I)$ cambia de signo.

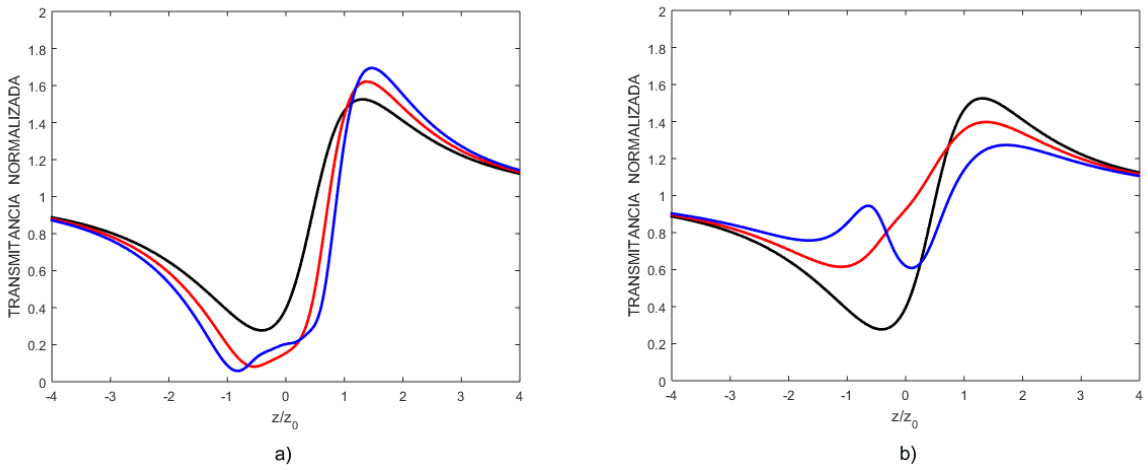

Figura 4.4: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, donde se fijan los valores m_1=2, $\Delta\Phi_{01}$=π *rad.,* $\Delta\Psi_{01}$=0 *rad.,* m_2=2, $\Delta\Psi_{02}$=0 *rad., variando a)* $\Delta\Phi_{02}$*: 0 rad. (curva negra),* π *rad. (curva roja) y 2*π *rad. (curva azul); b)* $\Delta\Phi_{02}$*: 0 rad. (curva negra), -*π *rad. (curva roja) y -2*π *rad. (curva azul).*

Caso no local refractivo con dos respuestas no lineales, a tercero y quinto orden

En las figuras 4.5 y 4.6 se muestran curvas de Z-scan, suponiendo una interacción no local de dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, con su respectiva no localidad.

En la figura 4.5 se considera un valor de $|\Delta\Phi_{01}| > |\Delta\Phi_{02}|$ con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a tercer orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a quinto orden. En la figura 4.5 a) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a tercer orden, al darle diferentes valores a m_1, fijando m_2 =2 (caso local), obteniéndose curvas de Z-scan semejantes a las presentadas en [45], la no localidad fuerte m_1 =1, hace que ΔT_{P-V} de la curva sea mayor con respecto a ΔT_{P-V} en el caso local (curva negra) y cuando se tiene una no localidad débil m_1 =4, ΔT_{P-V} de la curva es menor con respecto a ΔT_{P-V} del caso local (curva azul). Sin embargo, en la figura 4.5 b) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a quinto orden, al darle diferentes valores a m_2, y al fijar m_1 =2 (caso local), cuando m_2 =1, ΔT_{P-V} de la curva es menor con respecto al caso local (curva negra) y es mayor cuando m_2 =4 (curva azul), debido a la competencia de los efectos de las dos respuestas no linealidades y la influencia de la respuesta a quinto orden empieza a predominar.

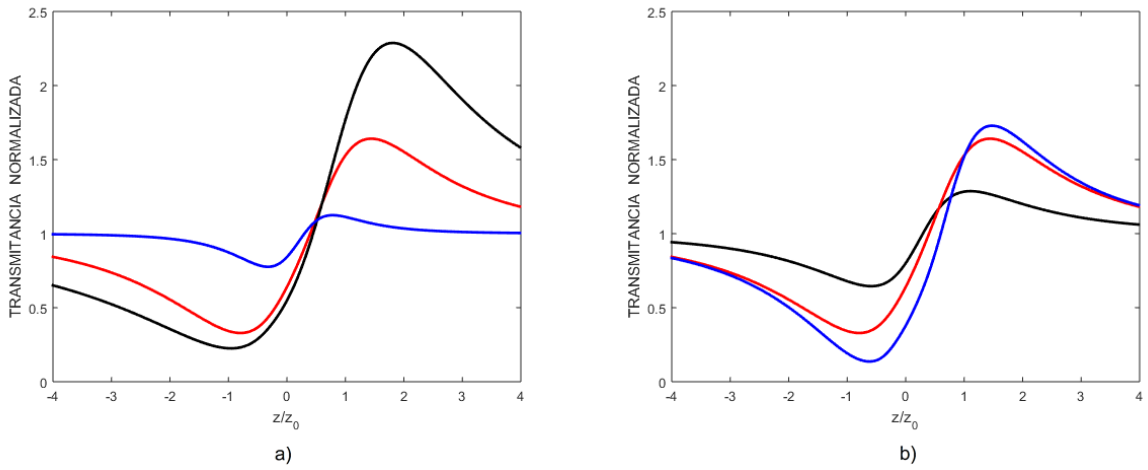

Figura 4.5: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, con $\Delta\Phi_{01}$=1.5 π, $\Delta\Psi_{01}$=0 *rad.,* $\Delta\Phi_{02}$=$-\pi$, $\Delta\Psi_{02}$=0 *rad., a)* m_2=2, *variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b)* m_1=2, *variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

En la figura 4.6 se considera un valor de $|\Delta\Phi_{02}| > |\Delta\Phi_{01}|$ con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a quinto orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a tercer orden.

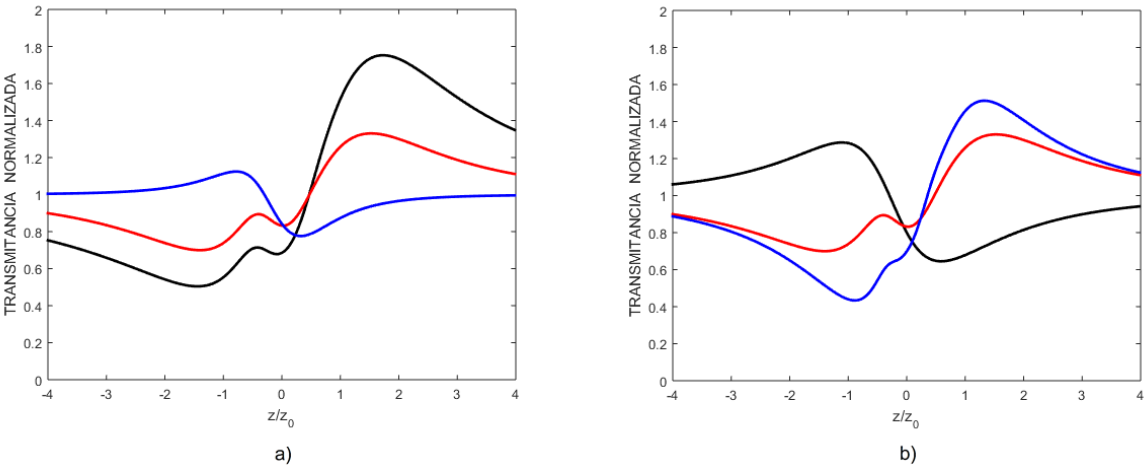

Figura 4.6: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no lineales refractivas, una a tercero y otra a quinto orden, con$\Delta\Phi_{01}$=π *rad.,* $\Delta\Psi_{01}$=0 *rad.,* $\Delta\Phi_{02}$=-1.5π *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=0 *rad., a)* m_2=2, *variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b)* m_1=2, m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

En la figura 4.6 a) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a tercer orden, al darle diferentes valores a m_1, fijando m_2=2 (caso local). Cuando m_1=1, la cura de Z-scan siguen presentando dos picos y dos valles (curva negra), sin embargo cuando m_1 =4, la cura de Z-scan solo se tiene un pico y un valle (curva azul), debido a que el efecto de la respuesta a tercer orden se ve disminuido y el efecto de la respuesta a quinto orden predomina. En la figura 4.6 b) se puede observar la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a quinto orden, al darle diferentes valores a m_2, fijando m_1=2 (caso local). Cuando m_2=1, la curva de Z-scan presenta un pico y un valle (curva negra), ya que la influencia de la respuesta a tercer orden se ve opacada y la respuesta a quinto orden

predomina, sin embargo cuando m_2=4, en la curva de Z-scan empieza a tener solo un valle y un pico (curva azul), debido a que disminuye la influencia del efecto de la respuesta a quinto orden y predomina el efecto de la respuesta a tercer orden.

Caso no local refractivo y absortivo con dos respuestas no lineales, a tercero y quinto orden

En las figuras 4.7 y 4.8, se muestran curvas de Z-scan, suponiendo una interacción no local de dos respuestas no locales refractivas y absortivas no lineales de forma simultánea, una a tercero y otra a quinto orden.

En la figura 4.7 se considera un valor de $|\Delta\Psi_{01}| > |\Delta\Psi_{02}|$ y con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a tercer orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a quinto orden.

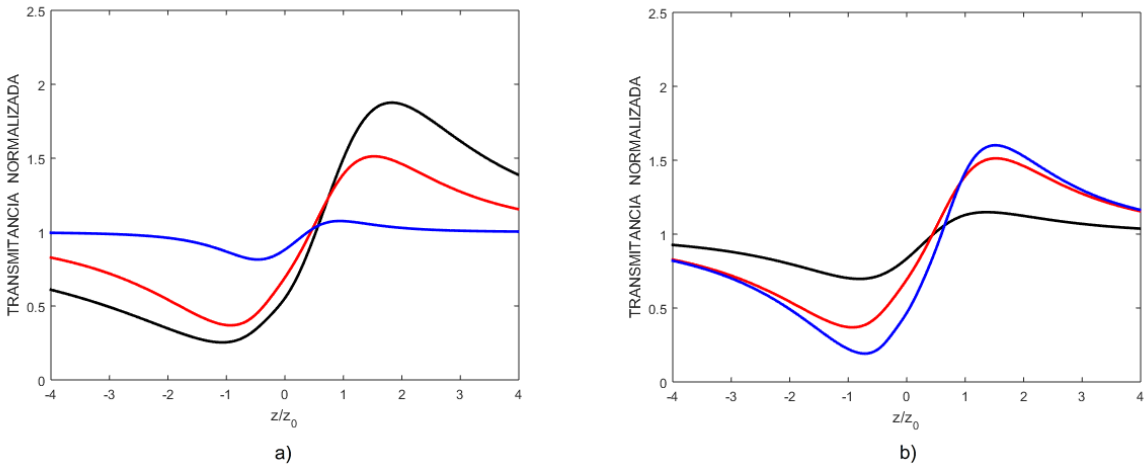

Figura 4.7: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no locales refractivas y absortivas no lineales de forma simultánea, una a tercero y otra a quinto orden, con $\Delta\Phi_{01}$=1.5 π, $\Delta\Psi_{01}$=0.15π *rad.,,* $\Delta\Phi_{02}$=$-\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=$-$0.01π *rad., a)* m_2=2, *variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b)* m_1=2, *variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

En la figura 4.8 se considera un valor de $|\Delta\Phi_{02}| > |\Delta\Phi_{01}|$ y un valor de $|\Delta\Psi_{01}| > |\Delta\Psi_{02}|$ con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a quinto orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a tercer orden. En las figuras 4.7 y 4.8, al elegir valores para el cambio de fase que hicieran que predominara una de las respuestas no lineales, las curvas de Z-scan presentan un comportamiento parecido a las curvas presentadas en las figuras 4.5 y 4.6, sin embargo, ΔT_{P-V} se ve modificada por la presencia de la absorción no lineal de tercero y quinto orden.

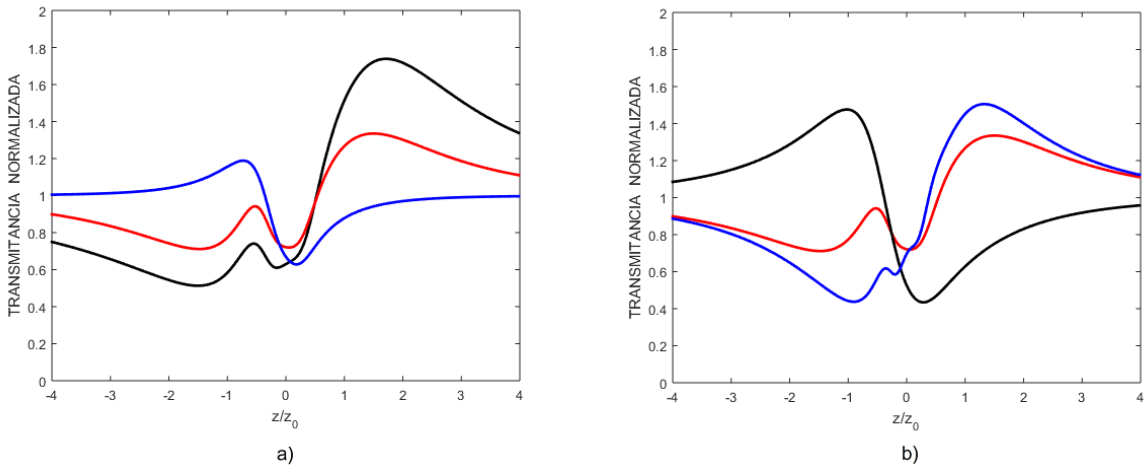

Figura 4.8: Curvas de Z-scan considerando dos respuestas no locales refractivas y absortivas no lineales de forma simultánea, con $\Delta\Phi_{01}=\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{01}=0.01\pi$ *rad.,* $\Delta\Phi_{02}=-2\pi$ *rad.,* $\Delta\Psi_{02}=-0.15\pi$ *rad., a)* $m_2=2$*, variando* m_1*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul); b)* $m_1=2$*,* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

4.2. Curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto considerando la técnica de Z-scan sin abertura

En las siguientes curvas de Z-scan se emplea el modelo propuesto que describe la interacción luz-materia donde el campo a la salida de la superficie del medio material está en la ec. (3.7) y se considera la técnica de Z-scan sin abertura.

Caso no local absortivo con una respuesta no lineal, variando la no localidad

En la figura 4.9 muestra curvas de Z-scan en donde se considera una sola respuesta no lineal absortiva y se observa el efecto de la no localidad en estas curvas, cambiando el parámetro m con valores de 1, 2 y 4. La figura 4.9 a) muestra el efecto no local considerando una respuesta a tercer orden, obteniendo curvas semejantes a las reportadas en [44]. La figura 4.9 b) muestra el efecto no local de la respuesta a quinto orden. Al considerar $\Delta\Psi_{01}=\Delta\Psi_{02}$, se observa que la transmitancia normalizada de las curvas en la figura 4.9 b) aumenta con respecto a la transmitancia normalizada de las curvas en la figura 4.9 a), entonces la respuesta no lineal a quinto orden se encuentra espacialmente más localizada con respecto a la respuesta no lineal a tercer orden.

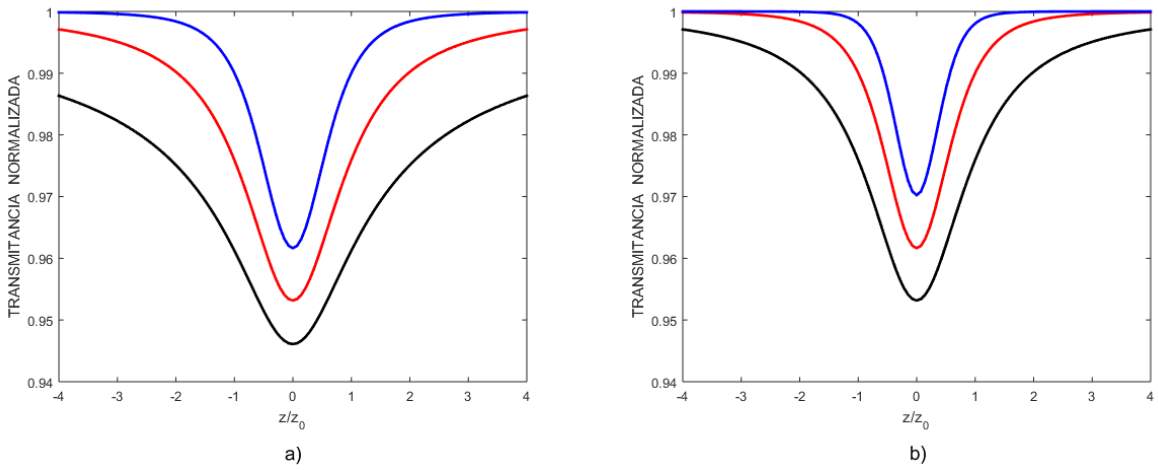

Figura 4.9: Curvas de Z-scan sin abertura considerando solo una respuesta no lineal absortiva con a) absorción de dos fotones, con $\Delta\Psi_{01}$=0.07 *rad.,* m_2=2, $\Delta\Psi_{02}$=0.07π *rad., variando* m_1*: 1 (curva negra), 2(curva roja) y 4 (curva azul); b) absorción de tres fotones* m_1=2, $\Delta\Psi_{01}$=0 *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=0.07π *rad., variando la no localidad* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

Caso no local absortivo con dos respuestas no lineales, a tercero y quinto orden, variando la no localidad

En las figuras 4.10 se muestran curvas de Z-scan, suponiendo una interacción no local de dos respuestas no lineales absortivas, una a tercero y otra a quinto orden, con su respectiva no localidad. Se considera un valor de $|\Delta\Psi_{01}| > |\Delta\Psi_{02}|$ con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a tercer orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a quinto orden.

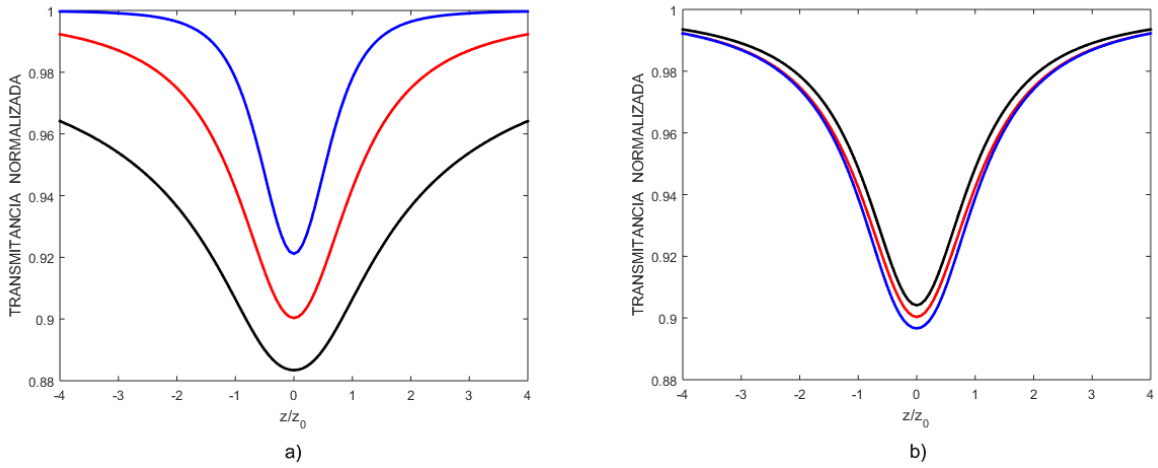

Figura 4.10: Curvas de Z-scan sin abertura considerando la absorción de dos y tres fotones, variando la no localidad, donde $\Delta\Psi_{01}$=0.06π *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=$-$0.01π *rad. con a) variando* m_1*: 1 (curva negra), 2(curva roja) y 4 (curva azul); b) variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

En la figura 4.10 a) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a tercer orden, al darle diferentes valores a m_1, fijando m_2 =2 (caso local), obteniéndose curvas de Z-scan semejantes

a las presentadas en [45], la no localidad fuerte m_1 =1, la transmitancia normalizada es menor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra); cuando se tiene una no localidad débil m_1 =4, la transmitancia normalizada es mayor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva azul). Sin embargo, en la figura 4.10 b) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a quinto orden, al darle diferentes valores a m_2, y fijando m_1 =2 (caso local), cuando m_2 =1, la transmitancia normalizada es mayor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra), y con m_2 =4, la transmitancia normalizada es menor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra), debido a que el efecto de la respuesta a tercer orden tiene menor influencia en las curvas, observando el efecto opuesto al observado en las curvas de la figura 4.10 a).

En las figuras 4.11 se muestran curvas de Z-scan, suponiendo una interacción no local de dos respuestas no lineales absortivas, una a tercero y otra a quinto orden, con su respectiva no localidad. Se considera un valor de $|\Delta\Psi_{02}| > |\Delta\Psi_{01}|$ con signos opuestos, para asegurarse que el efecto de la respuesta a quinto orden predomine con respecto al efecto de la respuesta a tercer orden. En la figura 4.11 a) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a tercer orden, al darle diferentes valores a m_1, fijando m_2 =2 (caso local). Cuando m_1 =1, la transmitancia normalizada es mayor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra), y con m_1 =4, la transmitancia normalizada es menor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra), esto debido a que la respuesta a tercer orden tiene menor influencia en las curvas, esto debido a que domina el efecto de la respuesta a tercer orden con respecto al efecto de la respuesta a quinto orden, Sin embargo, en la figura 4.11 b) se observa la influencia de la no localidad en la respuesta no lineal a quinto orden, al darle diferentes valores a m_2, y fijando m_1 =2 (caso local). Cuando m_1 =1, la transmitancia normalizada es menor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva negra), y cuando se tiene una no localidad débil m_1 =4, la transmitancia normalizada es mayor con respecto a la transmitancia normalizada en el caso local (curva azul), debido a que el efecto de la respuesta a quinto orden predomina con respecto a la respuesta a tercer orden, observando el efecto opuesto que el observado en la figura 4.11 a).

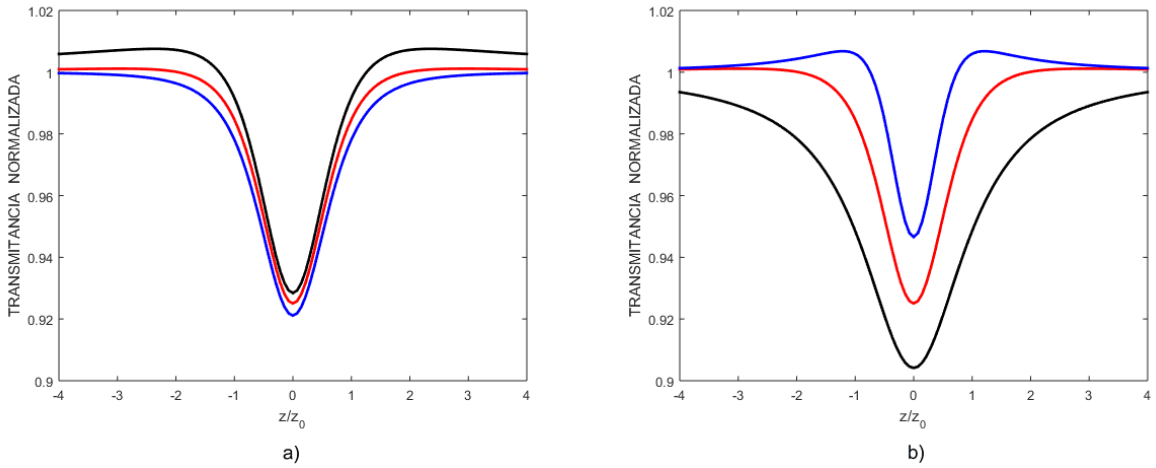

Figura 4.11: Curvas de Z-scan sin abertura para absorción de dos y tres fotones, donde $\Delta\Psi_{01}$=-0.01π *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=0.06π *rad. con valores de a)* m_2=2, m_1*: 1 (curva negra), 2(curva roja) y 4 (curva azul); b)* m_1=2 *variando* m_2*: 1 (curva negra), 2 (curva roja) y 4 (curva azul).*

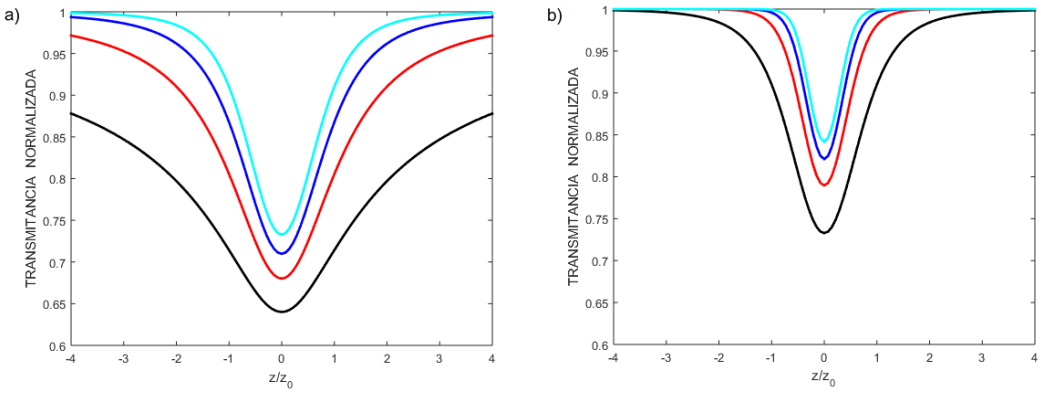

Figura 4.12: a) Curvas de Z-scan sin abertura con una solo no linealidad utilizando el modelo propuesto, con valores de $\Delta\Phi_{01}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{01}$*=0.225π rad.,* m_1*=1, respuesta a tercer orden (curva negra),* $\Delta\Phi_{02}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{02}$*=0 rad.,* m_2*=1, respuesta a quinto orden (curva roja) y* $\Delta\Phi_{03}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{03}$*=0.225π rad.,* m_3*=1, respuesta a séptimo orden (curva azul) ,* $\Delta\Psi_{04}$*=0.225π rad.,* m_4*=1, respuesta a noveno orden (curva cian); b)* $\Delta\Phi_{01}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{01}$*=0.225π rad.,* m_1*=4, respuesta a tercer orden (curva negra),* $\Delta\Phi_{02}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{02}$*=0 rad.,* m_2*=4, respuesta a quinto orden (curva roja) y* $\Delta\Phi_{03}$*=0 rad.,* $\Delta\Psi_{03}$*=0.225π rad.,* m_3*=4, respuesta a séptimo orden (curva azul) ,* $\Delta\Psi_{04}$*=0.225π rad.,* m_4*=4, respuesta a noveno orden (curva cian).*

En la figura 4.12 se observan curvas de Z-scan sin abertura donde se considera el modelo propuesto con una sola respuesta no local no lineal absortiva. Las curvas de Z-can de la figura 4.12 a) se obtienen considerando una no localidad fuerte m_j=1, se escogen los valores de $\Delta\Phi_{0j}$ y $\Delta\Psi_{0j}$ para que el orden de la respuesta no lineal se modifique, de esa forma se observa la respuesta no lineal a tercer orden (curva negra), la respuesta no lineal a quinto orden (curva roja) y la respuesta no lineal a séptimo orden (curva azul). Al aumentar el orden de la respuesta no lineal, la transmitancia normalizada de las curvas va aumentando. Las curvas de Z-can en la figura 4.12 b) se obtienen considerando una no localidad débil m_j=4, se escogen los valores de $\Delta\Phi_{0j}$ y $\Delta\Psi_{0j}$ para que el orden de la respuesta no lineal se modifique, de esa forma se observa la respuesta no lineal a tercer orden (curva negra), la respuesta no lineal a quinto orden (curva roja) y la respuesta no lineal a séptimo orden (curva azul). Al aumentar el orden de la respuesta no lineal, la transmitancia normalizada de las curvas va aumentando, sin embargo, al considerar m_j=4, la transmitancia normalizada va aumentando mucho más con respecto a la transmitancia normalizada de las curvas en la figura 4.12 a) donde se considera m_j=1, por lo tanto, se pueden obtener curvas de Z-scan sin abertura con una mayor localización espacial considerando una no localidad débil.

4.3. Comparación de curvas de Z-scan empleando el modelo propuesto con curvas de Z-scan utilizando los modelos que consideran una interacción local

En las siguientes curvas de Z-scan se emplea el modelo propuesto que describe la interacción luz-materia donde el campo a la salida de la superficie del medio material está representado en la ec. (3.7). Se compara estas curvas de Z-scan con las curvas donde se utiliza el modelo de la interacción local descrito en [26] considerando efectos refractivos no lineales a tercero y quinto orden simultáneamente, donde el campo a la salida de la superficie del medio material está representado en la ec. (2.12). También se compara las curvas de Z-scan donde se emplea el modelo propuesto con las curvas de Z-scan donde se utiliza el modelo de la interacción local descrito en [33] considerando la absorción multifotónica, donde el campo a la salida de la superficie del medio material está representada en la ec. (2.19).

En la figura 4.13 se compara las curvas de Z-scan donde se considera el modelo propuesto (curva roja), con las curvas utilizando la interacción del modelo descrito en [26] (curva azul) , donde se considera una respuesta local refractiva no lineal a tercer orden. Las curvas se superponen al considerar que el modelo propuesto tiene un valor de m_1=2 y m_2=2, es decir, se tiene el caso de una interacción local en las dos respuestas no lineales.

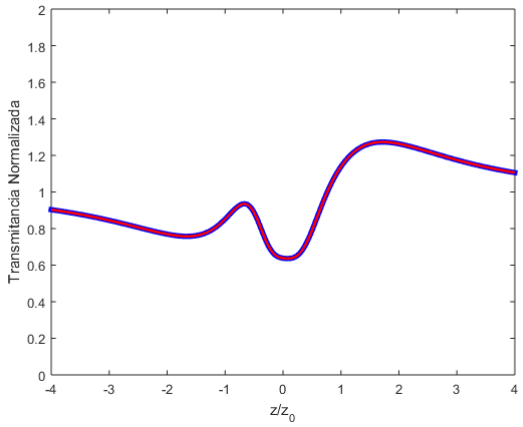

Figura 4.13: Curva de Z-scan con abertura considerando dos respuestas refractivas a tercero y quinto orden, utilizando el modelo propuesto, con valores de m_1=2, $\Delta\Phi_{01}=\pi$ rad., $\Delta\Psi_{01}$=0 rad., m_2=2, $\Delta\Phi_{02}=-2\pi$ rad. y $\Delta\Psi_{02}$=0 rad. (curva roja); Curva de Z-scan con el modelo descrito en [26] donde $\Delta\Phi_{01}=\pi$ rad. y $\Delta\Phi_{02}=-2\pi$ rad. (curva azul).

En la figura 4.14 se compara la curvas de Z-scan donde se considera el modelo propuesto (curva roja), con las curvas utilizando la interacción del modelo descrito en [26] (curva azul), donde se considera una respuesta local refractiva no lineal a quinto orden. Las curvas se superponen al considerar que el modelo propuesto tiene un valor de m_1=2 y m_2=2, es decir, se tiene el caso de una interacción local en las dos respuestas no lineales.

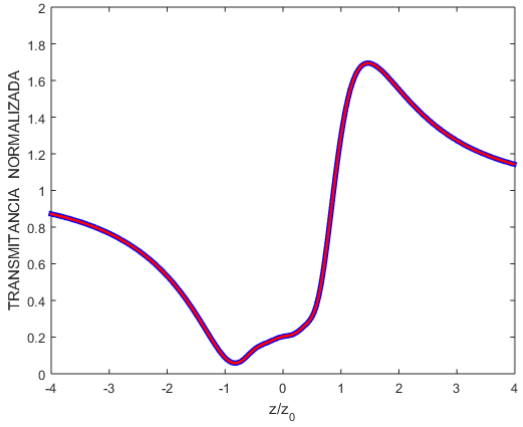

Figura 4.14: Curva de Z-scan con abertura considerando dos respuestas refractivas a tercero y quinto orden, utilizando el modelo propuesto, con valores de m_1=2, $\Delta\Phi_{01}=\pi$ rad., $\Delta\Psi_{01}$=0 rad., m_2=2, $\Delta\Phi_{02}=2\pi$ rad. y $\Delta\Psi_{02}$=0 rad. (curva roja); Curva de Z-scan con el modelo descrito en [26] donde $\Phi_{01}=\pi$ rad. y $\Phi_{02}=2\pi$ rad. (curva azul).

En la figura 4.15 se compara las curvas de Z-scan donde se considera el modelo propuesto (curva roja), con las curvas utilizando la interacción del modelo descrito en [33] (curva azul), donde se considera una respuesta local con absorción de dos fotones. Las curvas se superponen al considerar que el modelo propuesto tiene un valor de m_1=2 y m_2=2, es decir, se tiene el caso de una interacción local en las dos respuestas no lineales.

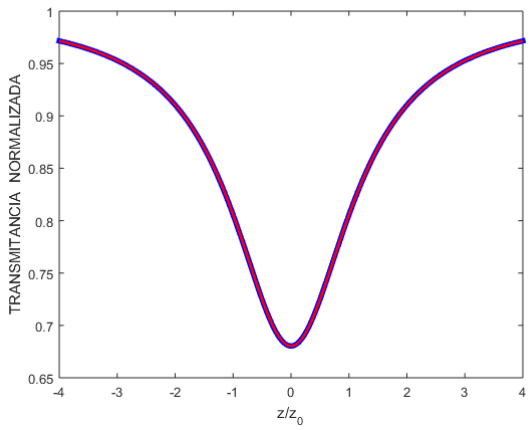

Figura 4.15: Curva de Z-scan sin abertura con una sola respuesta no lineal a tercer orden con el modelo propuesto donde m_1=2, $\Delta\Phi_{01}$=0 rad., $\Delta\Psi_{01}$=0.225π rad. (curva roja); curvas del modelo descrito en [33], con valores de ω_0=20 μm, L=0.2 cm, z_0=0.5 cm, I_0=100 GW/cm^2,α_2=35.3$x10^{-12}$ cm/W y n=2 (curva azul).

En la figura 4.16 se compara las curvas de Z-scan donde se considera el modelo propuesto (curva roja), con las curvas utilizando la interacción del modelo descrito en [33] (curva azul), donde se considera una respuesta local con absorción de tres fotones. Las curvas se superponen al considerar que el modelo propuesto tiene un valor de m_1=2 y m_2=2, es decir, se tiene el caso de una interacción local en las dos respuestas no lineales.

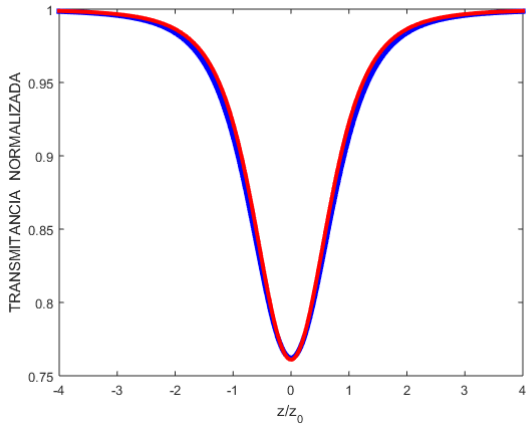

Figura 4.16: Curvas de Z-scan sin abertura con una sola respuesta no lineal a quinto orden con el modelo propuesto donde m_2=2, $\Delta\Phi_{02}$=0 rad., $\Delta\Psi_{02}$=0.191 π rad. (curva roja); curvas del modelo descrito en [33], con valores de ω_0=20 μm, L=0.2 cm, z_0=0.5 cm, I_0=150 GW/cm^2, α_3=1.6$x10^{-22}$ cm/W y n=3 (curva azul).

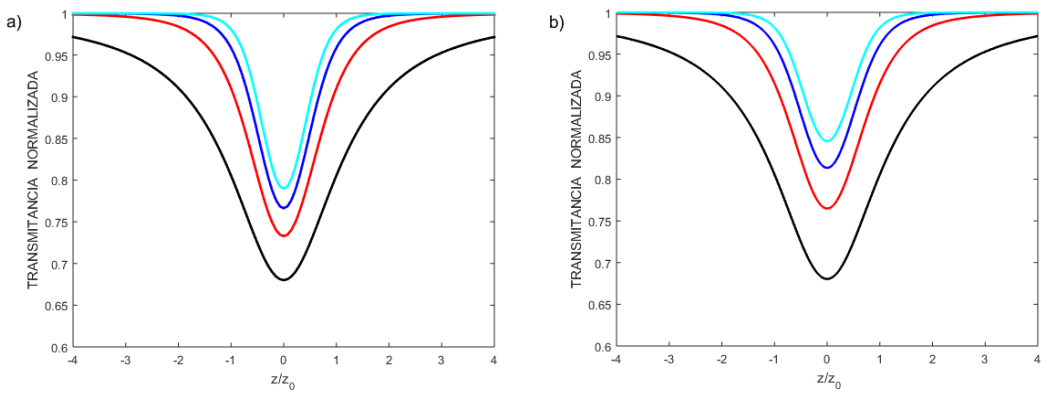

Figura 4.17: a) Curvas de Z-scan sin abertura con una solo no linealidad utilizando el modelo propuesto, con valores de $\Delta\Phi_{01}$=0 *rad.,* $\Delta\Psi_{01}$=0.225π *rad.,* m_1=2, *respuesta a tercer orden (curva negra),* $\Delta\Phi_{02}$=0 *rad.,* $\Delta\Psi_{02}$=0 *rad.,* m_2=2, *respuesta a quinto orden (curva roja) y* $\Delta\Phi_{03}$=0 *rad.,* $\Delta\Psi_{03}$=0.225π *rad.,* m_3=2, *respuesta a séptimo orden (curva azul),* $\Delta\Psi_{04}$=0.225π *rad.,* m_4=2, *respuesta a noveno orden (curva cian); b) Curvas de Z-scan del modelo descrito en [33], con* ω_0=20 μm, L=0.2 cm, z_0=0.5 cm, *variando* I_0=100 GW/cm^2,α_2=35.3$x10^{-12}$ cm/W *y* n=2 *(curva negra);* I_0=150 GW/cm^2, α_3=1.6$x10^{-22}$ cm/W *y* n=3 *(curva roja);* I_0=200 GW/cm^2, α_4=4.4$x10^{-34}$ cm/W *y* n=4 *(curva azul);* I_0=250 GW/cm^2, α_4=9$x10^{-46}$ cm/W *y* n=5 *(curva cian).*

En la figura 4.17 se compara las curvas de Z-scan sin abertura donde se considera el modelo propuesto, con las curvas utilizando la interacción del modelo descrito en [33] que considera una respuesta local con absorción multifotónica. Las curvas de Z-can de la figura 4.17 a) se obtienen empleando el modelo propuesto con una sola respuesta local no lineal absortiva, se escogen los valores de $\Delta\Phi_{0j}$ y $\Delta\Psi_{0j}$ para que el orden de la respuesta no lineal se modifique, de esa forma se observa la respuesta no lineal a tercer orden (curva negra), la respuesta no lineal a quinto orden (curva roja) y la respuesta no lineal a séptimo orden (curva azul). Al aumentar el orden de la respuesta no lineal, la transmitancia normalizada de las curvas va aumentando. Las curvas de Z-can de la figura 4.17 b) empleando el modelo descrito en [33], se obtienen a partir de los valores de los parámetros que se encuentran en [33]. Al fijarse en el parámetro del número de fotones absorbidos n, conforme aumenta el número de fotones absorvidos, la transmitancia normalizada de las curvas va aumentando. Hay una mayor o menor localización espacial de la respuesta no lineal, debido a la absorción multifotónica.

Capítulo 5

Conclusiones

- Se presenta un modelo para medios delgados, donde se considera una interacción luz-materia no local con dos respuestas no lineales no locales, una a tercero y otra a quinto orden, refractivas y absortivas de forma simultánea.
- El modelo propuesto permite calcular numéricamente la transmitancia a campo lejano en eje para el caso de la técnica de Z-scan con abertura y la transmitancia cuando se considera la técnica de Z-scan sin abertura.
- En el modelo propuesto se incluyó la no localidad en el perfil de cambio de fase no lineal, definida por el parámetro m cuyo efecto es modificar el ancho de este perfil, debido a que m puede tomar diferentes valores positivos; para el caso no local fuerte $m < 2$, la extensión espacial del perfil de cambio de fase es más grande que la del caso local y para el caso no local débil $m > 2$ la extensión espacial del perfil de cambio de fase es más pequeña que la del caso local.
- La expresión que se presenta para el campo a la salida de un medio delgado, considera que las contribuciones no locales de las respuestas no lineales, una a tercer orden y otra a quinto orden son individuales. Cuando se tiene la condición de que alguna de las dos respuestas domina con respecto a la otra, se observa que la no localidad puede invertir el dominio de las respuestas no lineales. Por lo tanto, la forma de la curva depende principalmente de la magnitud de la no localidad.
- Al comparar el modelo propuesto con el modelo donde consideran una interacción luz-materia como una respuesta local refractiva no lineal a tercero y quito orden [26] y con el modelo donde considera la absorción multifotonica [33], se obtienen curvas semejantes para el caso local, lo que corrobora la propuesta del modelo.
- Se observa que hay una mayor o menor localización espacial de la respuesta no lineal, debido al efecto no local y a la absorción multifotónica.

Bibliografía

[1] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Academic press, 3rd edition, 2007.

[2] J. A. Giordmaine. Mixing of light beams in crystals. *Phys. Rev. Lett*, 8(19), 1962.

[3] Israel De Leon M. Zahirul Alam and Robert W. Boyd. Unity-order intensity-dependent change in refractive index in indium-tin oxide at its epsilon-near-zero wavelength. *NLO*, 190.0190, 2008.

[4] J. P. Gordon et al. Unity-order intensity-dependent change in refractive index in indium-tin oxide at its epsilon-near-zero wavelength. *Journal of Applied Physics*, 36(1):3–8, 1965.

[5] D. Weaire et al. Effect of low-power nonlinear refraction on laser beam propagation in insb. *Opt. Letr.*, 4(10):331–333, 1974.

[6] L. Deng et al. Formation and evolution of far-field diffraction patterns of divergent and convergent gaussian beams passing through self-focusing and self-defocusing media. *J. Opt. A.*, 7:409–415, 2005.

[7] S. Hughes et al. Fast fourier transform techniques for efficient simulation of z-scan measurements. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 12(10):1888–1893, 1995.

[8] O. V. Przhonska et al. Nonlinear light absorption of polymethine dyes in liquid and solid media. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 15(2):802–809, 1998.

[9] K. Milanchian et al. Nonlinear optical properties of two oxazine dyes in aqueous solution and polyacrylamide hydrogel using single beam z-scan. *Opt. Materials*, 32:12–17, 2009.

[10] Stanislaw Kielich. On non-linear light scattering in gases. *Acta Physica Polonica*, 23(3):321–332, 1963.

[11] O. G. Bokov. Theory of the nonlinear refractive index of liquids. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 67:1859–1869, 1974.

[12] C. W. Dirk et al. Squarylium dyes: Structural factors pertaining to the negative third-order nonlinear optical response. *J. Am. Chem. Soc.*, 117:2214–2225, 1995.

[13] M. G. Papadopoulos et al. The linear and non-linear optical properties of some noble gas compounds. *Com. Meth. In Sci. And Eng.*, 1:316–328, 2007.

[14] A. Avramopoulos et al. Linear and nonlinear optical properties of some organoxenon derivatives. *J. of Chem. Phys.*, 127:214102, 2007.

[15] Q. Lin et al. Nonlinear optical phenomena in silicon waveguides: Modeling and applications. *Opt. Exp.*, 15(25):16604–16644, 2007.

[16] G. S. Hea et al. Two-photon absorption based optical limiting and stabilization in organic molecule-doped solid materials. *Opt. Com.*, 117(1-2):133–136, 1995.

[17] Jian-Guo Tian et al. Position dispersión and optical limiting and optical limiting resulting from thermally induced nonlinearlities in chinese tea liquid. *Appl. Opt.*, 32(3):6628–6632, 1993.

[18] P. Boffi Tian et al. Infrared holography of optical communication: Techniques, materials and devices. *Spingler-Verlag*, 2003.

[19] M. Sheik-Bahae et al. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J. Quantum Electron*, 26(9):76 0–769, 1990.

[20] P. B. Chapple et al. Z-scan studies in the thin- and the thick-sample limits. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 6(6):975–982, 1994.

[21] B. Luther-Davies et al. Third-order nonlinear optical organic materials for photonic switching, solid state and materials science. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2:213–219, 1997.

[22] F. E. Hernandez et al. Three- and four-photon absorption of a multiphoton absorbing fluorescent probe. *Applied Optics*, 43(28):5394– 5398, 2004.

[23] C. Zhan et al. The high fifth-order nonlinearity in a new stilbazolium derivative: trans-1-[p-dimethylaminobenzyl-azo)-benzyl]-2-(n-methyl-4-pyridinium)-ethene iodide. *Chem. Pys. Lett.*, 347:410–114, 2001.

[24] I. Cohanoschi et al. Surface plasmon enhancement of two- and three-photon absorption of hoechst 33 258 dye in activated gold colloid solution. *J. Phys. Chem. B.*, 109:14506–14512, 2005.

[25] R. A. Ganeev et al. Fifth-order optical nonlinearity of pseudoisocyanine solution at 529 nm. *J J. Opt. A.*, 6(282):282–287, 2004.

[26] Bing Gu et al. Theory of gaussian beam z scan with simultaneous third- and fifth-order nonlinear refraction based on a gaussian decomposition method. *Opt. Soc. Am.*, 22(12):2651– 2659, 2005.

[27] W. Kaiser et al. Two-photon excitation in caf_2:eu^{2+}. *Phys. Rev. Lett.*, 7(6):229–232, 1961.

[28] W. Denk et al. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy. *Science*, 248(4951):73–76, 1990.

[29] J. D. Bhawalkar et al. 2 nonlinear multiphoton processes in organic and polymeric materials. *Rep. Prog. Phys.*, 59:1041–1070, 1996.

[30] N. Lin et al. Theoretical study of one-, two-, and three-photon absorption properties for a series of y-shaped molecules. *J. Chem. Phys.*, 124:024704, 2006.

[31] F. E. Hernández et al. Three-photon absorption enhancement in a symmetrical charge transfer fluorene derivative. *Chem. Phys. Lett.*, 391:22–26, 2004.

[32] I. Cohanoschi et al. Surface plasmon enhancement of two- and three-photon absorption of hoechst 33 258 dye in activated gold colloid solution. *J. Phys. Chem. B.*, 109:14506 – 14512, 2005.

[33] D. S. Corrêa et al. Z-scan theoretical analysis for tree-, four- and five-photon absorption. *Opt. Com.*, 277:440–445, 2007.

[34] Ch. Zhan et al. Third- and fifth-order optical nonlinearities in a new stilbazolium derivative. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 19(3):369–375, 2002.

[35] Bing Gu et al. Determinations of third- and fifth-order nonlinearities by the use of the top-hat-beam z scan: theory and experiment. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 22(2):446–452, 2005.

[36] G. Tsigaridas et al. Z-scan analysis for high order nonlinearities through gaussian decomposition. *J Opt. Com.*, 225:253–268, 2003.

[37] A. Minovich et al. Experimental reconstruction of nonlocal response of thermal nonlinear optical media. *Opt. Lett.*, 32(12):1599–1601, 2007.

[38] H. L. Pecseli et al. Nonlinear electron waves in strongly magnetized plasmas. *Plasma Phys.*, 22:421–438, 1980.

[39] D. Suter et al. Stabilization of transverse solitary waves by a nonlocal response of the nonlinear medium. *Phys. Rev. A.*, 48:4583–4587, 1993.

[40] A. Minovich et al. Experimental reconstruction of nonlocal response of thermal nonlinear optical media. *Opt. Lett.*, 32(12):1599–1601, 2007.

[41] M. Segev et al. Spatial solitons in photorefractive media. *Phys. Rev. Lett.*, 68:923–926, 1992.

[42] W. Krolikowski et al. Solitons in nonlocal nonlinear media: Exact solutions. *Phys. Rev. E Stat. Phys. Plasmas Fluids Relat. Interdiscip. Topics*, 63(1):016610, 2000.

[43] F. Cuppo et al. Thermal-lens model compared with the sheik-bahae formalism in interpreting z-scan experiments on lyotropic liquid crystals. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 19:1342–1348, 2002.

[44] E. V. Garcia Ramirez et al. Z-scan and spatial self-phase modulation of a gaussian beam in a thin nonlocal nonlinear media. *J. Opt.*, 13(8):1–10, 2011.

[45] B. A. Martinez et al. Z-scan for thin media whit more than one nonlocal nonlinear response. *Opt. Exp.*, 24(12):13387–13393, 2016.

[46] W. P. Zang et al. Study on z-scan characteristics of cascaded nonlinear media. *App. Phys.*, 77(12):529–533, 2003.

[47] L. Pálfalvi et al. Refractive index changes in mg-doped $linbo_3$ caused by photorefraction and thermal effects. *J. of Opt. A: P. and Appl. Opt.*, 5(5):280–283, 2003.

[48] Ch. Bosshard et al. Kerr nonlinearity via cascaded optical rectification and the linear electro-optic effect. *Phy. Rev. Lett.*, 74(14):2816– 2819, 1995.

[49] D. Débarre et al. Image-based adaptive optics for two-photon microscopy. *Opt. Lett*, 34(16):2495–2497, 2009.

[50] Tian qing Jia et al. Photon absorption of conduction-band electrons and their effects on laser-induced damage to optical materials. *Phys. Rev. B*, 61(24):16522–16529, 2000.

[51] S. Friberg et al. Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 23(12):2089–2094, 1987.

[52] G. B. Arfken et al. *Mathematical Methods for Physicists.* Elsevier Academic Press, 3th edition, 2005.

[53] W. T. Silfvast et al. *Laser Fundamentals.* Cambridge University Press, 2nd edition, 2004.

[54] B. E. A. Saleh et al. *Fundamentals of Photonics.* John Wiley and Sons, Inc., 2001.

[55] J. A. Hermann et al. Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches. *J. Opr. Soc. Amer. B*, 1(5):729–736, 1984.