

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
FAKULTET KEMIJSKOG INŽENJERSTVA I TEHNOLOGIJE
SVEUČILIŠNI PREDDIPLOMSKI STUDIJ

Iva Lukić

ZAVRŠNI RAD

Zagreb, rujan 2016.

SVEUČILIŠTE U ZAGREBU
FAKULTET KEMIJSKOG INŽENJERSTVA I TEHNOLOGIJE
SVEUČILIŠNI PREDDIPLOMSKI STUDIJ

Iva Lukić

PREGLED NOVIJIH EKSPERIMENTALNIH I TEORIJSKIH REZULTATA U
NELINEARNOJ OPTICI

ZAVRŠNI RAD

Voditelj rada: izv. prof. dr. sc. Vladimir Dananić

Članovi ispitnog povjerenstva:
izv. prof. dr. sc. Vladimir Dananić
doc. dr. sc. Miroslav Jerković
prof. dr. sc. Vesna Volovšek

Zagreb, rujan 2016.

Ovaj rad izrađen je na Zavodu za fiziku na Fakultetu kemijskog inženjerstva i tehnologije Sveučilišta u Zagrebu.

SAŽETAK

Tema ovog završnog rada je detaljan pregled novijih rezultata u nelinearnoj optici. Kako bi se bolje opisala tema svjetlosti, opisani su i objašnjeni elektromagnetski valovi te odgovarajuće Maxwellove jednačbe. Nelinearna optika bavi se istraživanjem nelinearnog odziva materijala poput nelinearnih kristala na intenzitet optičkog polja. Ovaj rad se koncentrira uglavnom na nelinearne optičke procese, poput udvostručenja frekvencija, dobivanja drugog i trećeg harmonika te dobivanja zbroja i razlika frekvencija. Opisani su kristali i materijali koji su najčešće odgovorni za takve efekte. Spomenuti su optički solitoni, metode polarizacije svjetlosnih valova, zajedno s Ramanovim i Brillouinovim raspršenjem. Široka primjena ovih efekata varira od informacijskih tehnologija i brzog prijenosa podataka preko optičkih vlakana, do pojačanja svjetlosti laserskih izvora te raznih nelinearnih detektora. Značajnost ovih teorijskih i eksperimentalnih rezultata leži upravo u primjeni neočekivanog ponašanja svjetlosti visokog intenziteta i koherencije.

SUMMARY

The subject of this final thesis is a detailed review of recent results regarding non-linear optics in the field of physics. In order to better understand the subject of light, electromagnetic waves were described and explained, along with corresponding Maxwell's equations. Non-linear optics focuses on the response of optical materials such as non-linear crystals (NLC) to optical field intensity. The thesis is mainly concerned with non-linear optical processes, such as frequency doubling, second and third harmonic generation, sum- and difference frequency generation. The nanocrystals responsible for non-linear effects were thoroughly explained. Optical solitons and wave-polarization methods were mentioned, among Raman and Brillouin scattering. It was found that a wide array of applications is possible within these effects, ranging from information technologies and high-speed data transfer via optical fiber, to laser light amplification and various non-linear detectors. The significance of these findings lies within the application of unexpected light behavior at high intensity and coherence rates.

SADRŽAJ

UVOD.....	9
1. ELEKTROMAGNETSKO ZRAČENJE.....	10
1.1 Elektromagnetski valovi.....	10
1.1.1 Svojstva elektromagnetskih valova.....	11
1.2 Maxwellove jednađbe.....	12
2. OPTIKA.....	12
2.1 Nelinearna optika – uvod.....	13
3. PROCESI U NELINEARNOJ OPTICI.....	14
3.1 Osnovne jednađbe.....	14
3.2 Valna jednađba nelinearnih optičkih medija.....	15
3.2.1 Generiranje zbroja frekvencija.....	15
3.2.2 Generiranje razlike frekvencija.....	16
3.2.3 Izjednačavanje faza.....	17
3.2.4 Udvostručenje frekvencija (generiranje drugog harmonika).....	18
3.2.5 Utrostručenje frekvencije (THG).....	19
3.3 Kerrov efekt.....	20
3.4 Optički soliton.....	21
3.5 Miješanje 4 vala.....	21
3.6 Optička raspršenja.....	22
3.7 Dvofotonska apsorpcija.....	23
4. PREGLED TEORIJSKIH I EKSPERIMENTALNIH REZULTATA.....	24
4.1 Pojačanje nelinearnog optičkog odziva kristala – koloidni nanokristali.....	24
4.1.1 Nanokristali s nehomogenim metalno dielektričnim nanočesticama.....	25
4.1.2 Nanokristali s optičkim vlaknom.....	28
4.2 Metalni filmovi.....	31
4.2.1 Nehomogeni metalni filmovi.....	31
4.2.2 Višeslojni metalni filmovi.....	33

4.3	Magnetski kontrolirani nelinearni optički materijali.....	36
4.4	Nelinearni optički fenomeni u tekućim kristalima.....	38
4.4.1	Samofazna modulacija, fokusiranje, defokusiranje i prostorni solitoni.....	38
4.4.2	Stimulirana raspršenja orijentacije (nelinearna dinamika).....	39
5.	PRIMJENA NELINEARNE OPTIKE.....	41
5.1	Laseri.....	41
5.2	Nelinearna optika u informacijskim tehnologijama.....	43
5.3	Primjena u detektorima, potpuno koherentno stanje.....	44
5.4	Primjena u karakterizaciji: Elektronska kristalografija.....	45
	ZAKLJUČAK.....	47
	POPIS SIMBOLA.....	48
	LITERATURA.....	49
	ŽIVOTOPIS.....	50

UVOD

Nelinearna optika proučava nelinearni odziv materijala poput nelinearnih kristala, na intenzitet optičkog polja. Pri niskim intenzitetima, ovisnost frekvencije i valne duljine svjetlosti linearno se mijenja prolaskom kroz uređene optički aktivne strukture, poput kristalnih rešetki unutar prizme ili stakla. U slučaju viših intenziteta, neki materijali pokazuju neočekivanu nelinearnu ovisnost svojstava svjetlosti. Na primjer, u slučaju nelinearnog optičkog kristala, svjetlost visokog intenziteta iz izvora visoko koherentne svjetlosti (laser) ulazi u materijal pod jednom frekvencijom, a iz materijala izlazi udvorstručene, ili pak utrostručene frekvencije. Promjenom frekvencije, mijenjaju se energetska svojstva fotona te njihova valna duljina, što se očituje u promjeni boje. Tako na primjer ulazna svjetlost crvene boje (750 nm), iz materijala izlazi ljubičasta (375 nm). Elektromagnetski valovi te njihova svojstva opisani su u sljedećem poglavlju.

1. ELEKTROMAGNETSKO ZRAČENJE

Sva tijela koja sadrže toplinu zrače elektromagnetske valove. Prilikom grijanja nekog tijela, u njega se ulaže energija i njegove gradivne čestice, atomi počinju titrati jer prelaze u pobuđena stanja (energija im se povećava). Jezgre atoma nose električne naboje pa tako pri titranju atoma dolazi zapravo do titranja električnih naboja. U točkama prostora oko električnog naboja uvijek postoji električno polje, a ako se električni naboj giba, onda postoji još i magnetsko polje. Da bismo dobili radijativno električno i magnetsko polje naboj se mora gibati ubrzano. Titranje naboja oko neke točke uvijek znači da naboj ima ubrzanje pa prema tome stvara i elektromagnetski val.

1.1 Elektromagnetski valovi

Prema Maxwelllovoj teoriji, svjetlost bi se morala vidjeti kada bi frekvencija EM (elektromagnetskih) valova, koju bi proizvodio titrajni krug, bila jednaka frekvenciji svjetlosti. To je bilo točno, ali tada, u drugoj polovici 19. stoljeća, kada je nastajala klasična elektrodinamika, nije bilo tehničkih mogućnosti za proizvodnju elektromagnetskih valova frekvencija većih od 1 GHz putem titranja električnih naboja. Naime, titrajni krug, kojemu bi po Thomsonovoj formuli

$$f = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$$

odgovarala frekvencija vidljive svjetlosti, morao bi imati iznimno mali kapacitet i induktivitet. To je teško postići zato što su u svim elementima kruga tzv. parazitni kapaciteti i induktiviteti veći od potrebnih za proizvodnju frekvencija elektromagnetskih valova vidljive svjetlosti. Tek je dvadeset godina kasnije Heinrich Hertz pokusom uspio pokazati povezanost elektromagnetskih valova sa svjetlošću. Taj eksperiment je pomogao u razumijevanju elektromagnetskog spektra te predstavlja dokaz da se valovi mogu stvoriti i širiti kroz prostor.

1.1.1 Svojstva elektromagnetskih valova

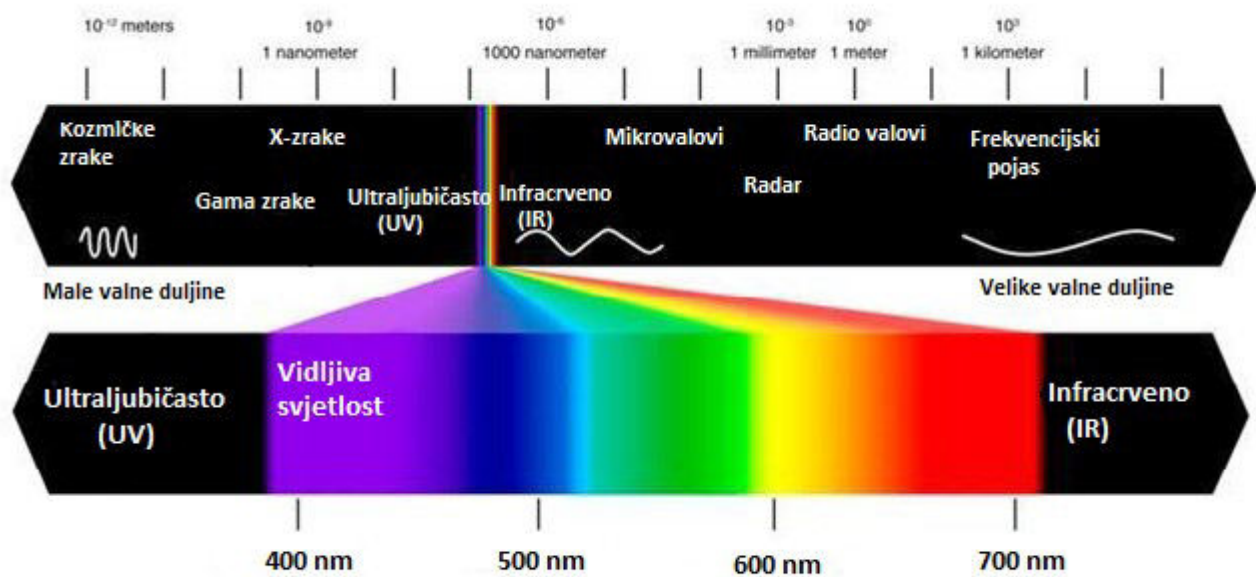
Elektromagnetski valovi imaju četiri važna svojstva:

1. Za razliku od ostalih valova koji se šire nekim sredstvom, elektromagnetski se valovi mogu širiti vakuumom.

2. Titrajuća električna i magnetska polja u linearno polariziranom elektromagnetskom valu su u fazi.
3. Smjerovi električnoga i magnetskog polja u elektromagnetskom valu okomiti su jedan na drugi i oba su okomita na smjer širenja vala, što ih čini transverzalnima.
4. Brzina elektromagnetskih valova ovisi samo o električnim i magnetskim svojstvima medija kojim se šire, a ne ovisi o amplitudi elektromagnetskog polja.

Za razliku od većine ostalih valova, za širenje elektromagnetskih valova nije potreban medij (npr. zrak, voda i sl.). Na putu kojim se elektromagnetski valovi šire ne trebaju titrati čestice nekog medija, već pri širenju elektromagnetskog vala titraju električna i magnetska polja.

Elektromagnetske valove stvaraju električni naboji koji se gibaju ubrzano. Ako električni naboj titra, on emitira kontinuirani elektromagnetski val, a ako ima samo kratkotrajno ubrzanje, tada emitira pulsni elektromagnetski val.



Slika 1. Spektar elektromagnetskog zračenja s odgovarajućim valnim duljinama⁷

1.2 Maxwellove jednadžbe

Maxwell je u svojim jednadžbama elektromagnetske valove objasnio jednadžbama za električna i magnetska polja. Prema tome EM valovi nastaju zbog:

1. Promjenjivog magnetskog polja B koje stvara promjenjivo električno polje E
2. Promjenjivog električnog polja E koje stvara promjenjivo magnetsko polje B

Na taj način iz Maxwellovih jednadžbi slijedi niz uzajamnih promjena električnih polja koji se prostiru prostorom kao elektromagnetski valovi. Ti "lanci" električnih i magnetskih polja mogu se odvojiti od električnih naboja i struja te se slobodno širiti prostorom u obliku EM valova. Oni postoje i nakon što se ukloni njihov izvor. Polja su tada samostalna i mogu postojati i širiti se bez postojanja električnih naboja i struja.

2. OPTIKA

Optika je područje fizike koje proučava svojstva svjetlosti i njenog međudjelovanja s materijom. U optici pojam svjetlosti obično obuhvaća vidljivo, infracrveno i ultraljubičasto područje, iako se slične pojave mogu proučavati i u drugim područjima elektromagnetskog zračenja pa se prema tome optika može shvatiti kao posebno područje elektromagnetizma. Neke pojave u optici ovise o kvantnoj prirodi svjetlosti što optiku povezuje i s kvantnom mehanikom. U praksi se ipak većina pojava može objasniti elektromagnetskom prirodom svjetlosti koja je opisana Maxwellovim jednadžbama.

Klasična optika se dijeli na fizikalnu optiku koja proučava valna svojstva svjetlosti i geometrijsku optiku koja predočava širenje svjetlosti u obliku ravnih crta ili zraka.

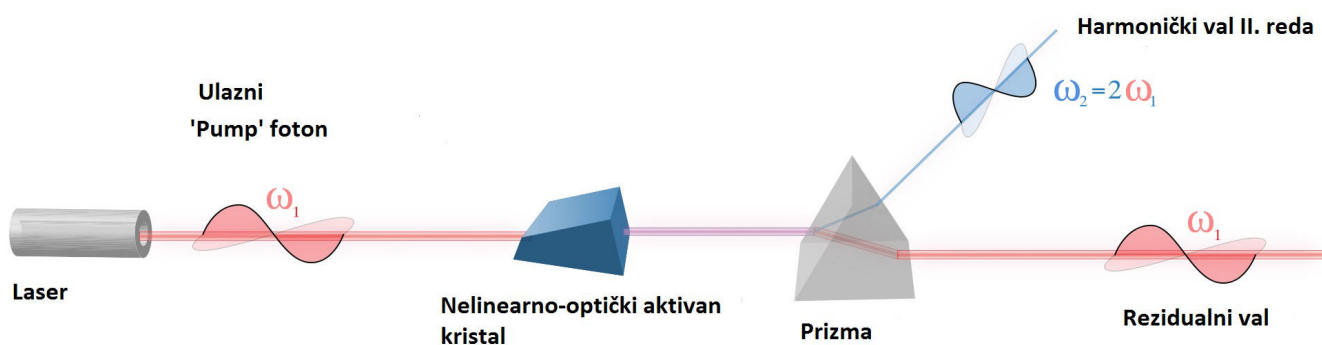
Primijenjena optika se bavi konstrukcijom i optimizacijom optičkih elemenata, sustava i naprava kao što su leće, zrcala, prizme, objektivi, okulari, mikroskopi, teleskopi.

2.1 Nelinearna optika – uvod

Nelinearna optika je grana optike koja istražuje optičke pojave u sredstvima s nelinearnim odnosom između električnog polja i vektora polarizacije.

Bavi se izvorima visoko koherentne laserske svjetlosti koji proizvode usmjerene svjetlosne snopove velike snage, što uzrokuje nelinearne učinke. Obična svjetlost na putu kroz optičko sredstvo mijenja stazu, ali ne i frekvenciju, dok nelinearnost pri međudjelovanju svjetlosti s tvari može prouzročiti i promjenu frekvencije.

Izvor visoko koherentne svjetlosti velikoga intenziteta je laser. Međutim, postoje materijali kod kojih su opažene neke nelinearne optičke pojave i s nekoherentnom svjetlošću slaboga intenziteta poput one iz žarulje. Često se spominju nelinearne optičke pojave poput stvaranja viših harmonika tijekom kojih zbog nelinearnosti, materijal pobuđen jednom frekvencijom emitira svjetlost više frekvencija (generiranje drugoga i trećega harmonika, generiranje zbroja i razlika frekvencija); nadalje, u to se ubrajaju dvofotonska apsorpcija, valovi samotnjaci ili solitoni i druge pojave.



Slika 2. SHG, Generiranje harmoničkog vala II. reda ili udvostručenje frekvencije.

3. PROCESI U NELINEARNOJ OPTICI

3.1 Osnovne jednadžbe

Nelinearna optika je studij o fenomenu koji se pojavljuje kao posljedica modifikacije optičkih svojstva materijala zbog prisutnosti svjetlosti.

Nelinearan optički fenomen je „nelinearan“ u smislu da se pojavljuje kada odziv materijala na optičko polje ovisi nelinearno o snazi tog polja.

Na primjer : Udvostručenje frekvencije se pojavljuje kao rezultat jednog dijela odziva atoma koji se učeterostručuje sa snagom primijenjenog optičkog polja. Posljedično, intenzitet svjetlosti generirane s dvostruko većom frekvencijom povećava se proporcionalno s kvadratom intenziteta primijenjenog laserskog svjetla.

Kako bismo opisali preciznije što je nelinearna optika, pogledat ćemo kako polarizacija materijala ovisi o snazi primijenjenog optičkog polja.

U konvencionalnoj optici, inducirana polarizacija ovisi linearno o električnom polju na način koji može biti opisan ovako :

$$P(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E(t) \quad (1)$$

gdje je $\chi^{(1)}$ linearna osjetljivost, a ϵ_0 dielektrična konstanta sustava.

U nelinearnoj optici, optički odziv se može opisati generaliziranjem gornje jednadžbe na sljedeći način :

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots] \equiv P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots \quad (2)$$

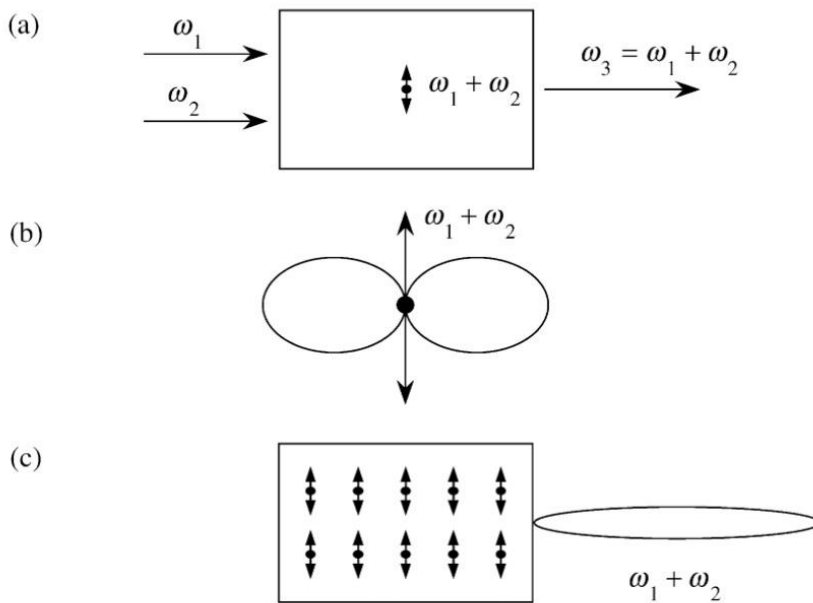
gdje su $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$ nelinearna optička osjetljivost drugog i trećeg reda.

Radi jednostavnosti, uzeli smo da su $E(t)$ i $P(t)$ skalarnе veličine u pisanju gore navedenih jednadžbi.

3.2 Valna jednadžba nelinearnih optičkih medija

3.2.1 Generiranje zbroja frekvencija

Dana je jednostavna fizička slika koja pokazuje kako su komponente frekvencije generirane na slučaju generiranja zbroja frekvencija.



Slika 3. Generiranje zbroja frekvencija ¹

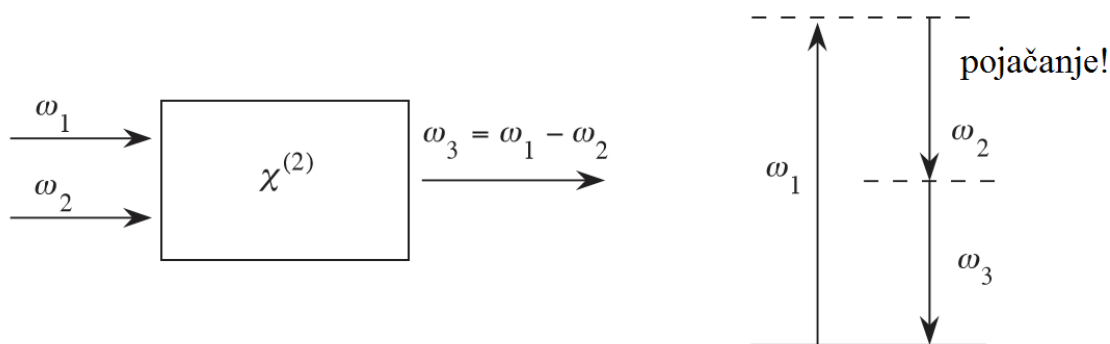
Početna polja imaju frekvencije ω_1 i ω_2 . Zbog nelinearnosti u odzivu atoma, svaki atom razvija oscilirajući dipolni moment koji sadržava komponentu frekvencije $\omega_1 + \omega_2$. Izolirani atom bi zračio frekvenciju $\omega_1 + \omega_2$ u obliku dipolnog uzorka zračenja, kako je i prikazano na slici b). Bilo koji materijal sadrži mnogo takvih atoma, svaki oscilira fazom koja je određena fazom incidentnog polja. Ako je relativno preklapanje faza tih dipola veliko, tada će se polje zračenja svakog od tih dipola nadodati i nadograditi prema naprijed te će se tako formirati u obliku dobro definirane zrake kao na slici c).

Sustav će se ponašati kao fazna zraka dipola kada je određen zahtjev ispunjen. Pod ovim uvjetima, snaga električnog polja emitirane radijacije prema naprijed će biti N puta veća od one jednog atoma i posljedično intenzitet će biti N^2 puta veći.

3.2.2 Generiranje razlike frekvencija

Generiranje razlike frekvencija predstavlja slučaj u kojem dvije ulazne 'pump' zrake generiraju treću izlaznu zraku, čija je frekvencija jednaka razlici ulaznih zraka. Takav proces zahtjeva također izjednačavanje faza, da bi se postigla optimalna učinkovitost procesa. Poseban slučaj ove pojave predstavlja i generiranje zbroja frekvencija te utrostručenje frekvencija. Takav kaskadni proces može biti znatno učinkovitiji, nego direktno utrostručenje na temelju nelinearne osjetljivosti III. reda $\chi^{(3)}$. Uobičajene primjene zbroja frekvencija predstavljaju generiranje crvene svjetlosti (crveni laseri, $\lambda = 628 \text{ nm}$) te ultraljubičaste svjetlosti ($\lambda = 355 \text{ nm}$).

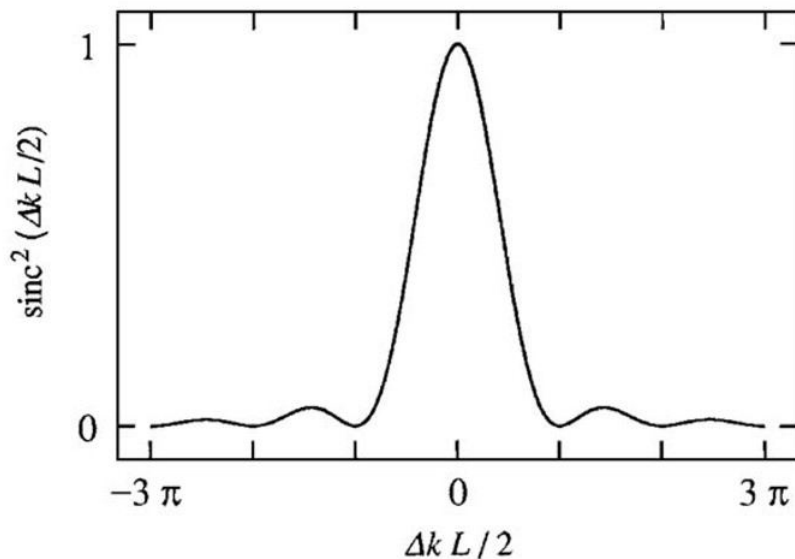
Generiranje razlike frekvencija koristi se u primjeni kod spektroskopije plinova, gdje je potrebna srednja infracrvena svjetlost ($\lambda = 3.3 \text{ }\mu\text{m}$). Postiže se miješanjem svjetlosti valne duljine 1570 nm iz lasera s optičkim vlaknom te svjetlosti valne duljine 1064 nm; ili kombinacijom 860 nm laserske diode i 1064 nm.



Slika 4. Generiranje razlike frekvencija ¹

3.2.3 Izjednačavanje faza

U slučaju generiranja zbroja frekvencija, učinkovitost procesa najveća je za valove jednake frekvencije u fazi.



Slika 5. Ovisnost snage generiranja zbroja frekvencija o faktoru razlike faza ¹

U slučaju savršenog slaganja faza ulaznih valova, učinkovitost je drastično porasla.

Eksperimentalno, ovaj slučaj promatran je na pulsirajućem laseru usmjerenom u kristal kvarca.

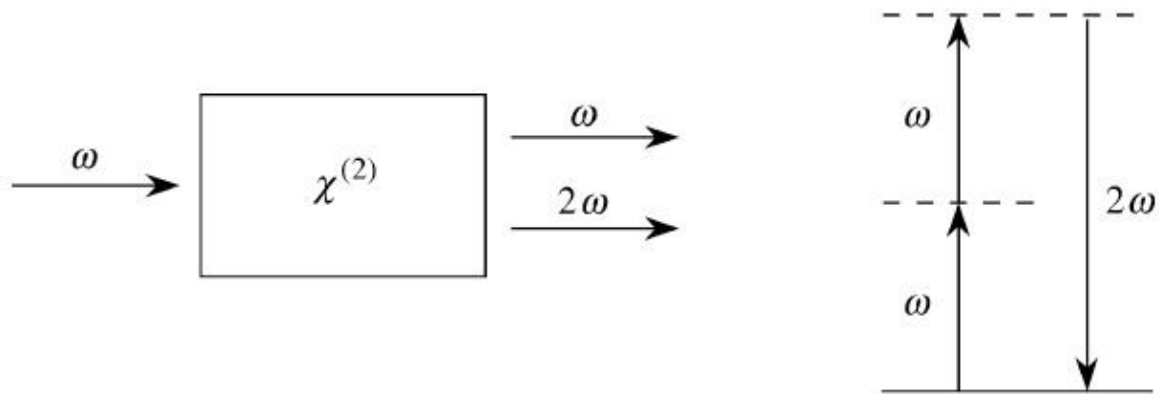
Mjerio se intenzitet stvaranja harmoničkog vala II. reda tijekom rotacije kristala, tako da se mijenja duljina L kroz kristal. Teško je postići uvijek savršeno poklapanje faza, što znači da je za većinu materijala faktor razlike bio različit od nule te jednoličan kroz sve rotacije.

Najčešći način na koji se postiže preklapanje faza je korištenje svojstva dvoloma svjetlosti. To svojstvo predstavlja ovisnost indeksa loma o smjeru polarizacije optičkog zračenja. Brojni kristali imaju to svojstvo, osim onih koji su kubične kristalne strukture (izotropni). S takvim kristalima nemoguće je postići preklapanje faza. Kod triklnskog, monoklnskog i ortorompskog kristala, pojavljuje se dvoosna anizotropija, kod trigonalne, tetragonalne i heksagonalne strukture javlja se jednoosna anizotropija, a kod kubične strukture kristal je izotropan (svojstva su jednolična u svim smjerovima u prostoru).

3.2.4 Udvostručenje frekvencija (generiranje drugog harmonika)

SHG (second harmonic generation) predstavlja primjer nelinearne optičke interakcije.

Razmotrimo proces stvaranja drugog harmonika, kao što je shematski prikazano na slici. 5



Slika 5. Udvostručenje frekvencija ¹

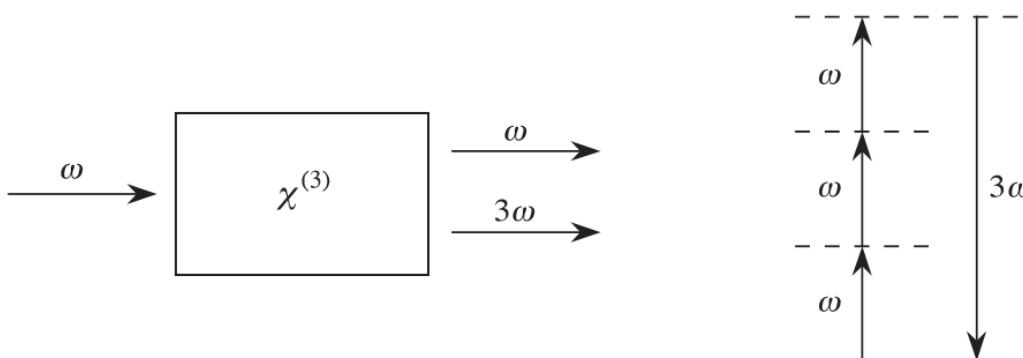
Tijekom ovog procesa dolazi do interakcije fotona s istom frekvencijom i nelinearnog materijala. Dolazi do uništenja dva fotona frekvencije ω , a foton frekvencije 2ω istovremeno se stvara. To je foton dvostruko veće energije, odnosno dvostruko manje valne duljine od početnih fotona. Puna linija na slici predstavlja osnovno atomsko stanje, a isprekidane linije predstavljaju pobuđena stanja. Ove energijske razine ne predstavljaju energiju slobodnog atoma, nego kombiniranu energiju jednog ili više fotona zračenja polja. Stvaranje drugog harmonika je poseban slučaj generiranja zbroja frekvencija.

3.2.5 Utrostručenje frekvencija (THG)

Generiranje trećeg harmonika (THG) predstavlja proces nelinearnog utrostručenja frekvencije, gdje rezultatna frekvencija izlaznog vala iznosi tri puta frekvencije ulaznog vala (zraka lasera). U principu, ovakav efekt postiže se nelinearnom osjetljivošću trećeg reda $\chi^{(3)}$. Činjenica koja otežava proces je teško postizanje izjednačavanja faza (osim za utrostručenje u plinskom agregatnom stanju). Najčešći eksperimentalni način postizanja ovakvog efekta je kaskadno krenuti s udvostručenjem frekvencije na materijalima s nelinearnom osjetljivošću II. reda, $\chi^{(2)}$.

Glavna primjena utrostručenja frekvencije je postizanje ultraljubičastog režima svjetla. Najčešće se generira svjetlost valne duljine 355 nm, utrostručenjem laserske zrake valne duljine 1064 nm, iz izvora Nd:YAG (yttrium aluminum garnet) s neodimijskim kristalom Nd³⁺ ili Nd:YVO₄ (neodimij-itrjev vanadat).

Čest pristup je korištenje 2 kristala LBO (litijev triborat), ili kombinacija LBO i BBO (barijev borat), od kojih prvi služi za udvostručenje frekvencije, a drugi za generaciju zbroja frekvencija. Također, moguće je postići plavu izlaznu svjetlost, koristeći 1.3- μ m neodimijski laser.



Slika 6. Utrostručenje frekvencija ¹

3.3 Kerrov efekt

Magnetooptički efekt je promjena optičkih svojstava tvari u magnetskom polju. Odnosi se na nekoliko pojava:

- Zeemanov efekt: udvostručavanje spektralnih linija;
- Faradayev efekt: zakretanje ravnine polarizacije svjetlosti;
- Voigtov efekt: dvolom zraka svjetlosti koje prolaze okomito na magnetsko polje;
- Cotton-Moutonov efekt: anomalno velik dvolom u magnetski anizotropnim molekulama;
- Kerrov efekt: promjena polarizacije zrake svjetlosti koja se odbija od magnetizirane površine.

Kerrov magnetooptički efekt koristi se za karakterizaciju magnetiziranih površina pomoću Kerrovog mikroskopa.

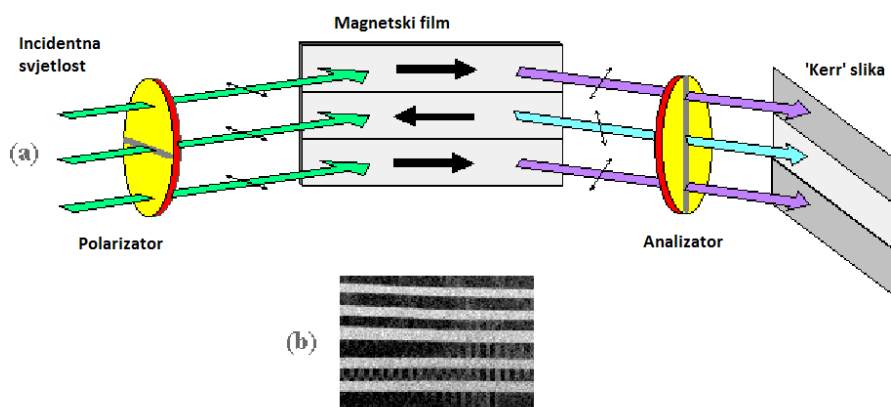
Kvadratični elektrooptički Kerrov efekt predstavlja promjenu indeksa loma materijala u primijenjenom vanjskom električnom polju. Svojstva su različita u slučajevima istosmjerne i izmjenične struje.

U slučaju istosmjerne struje, vanjsko polje primijenjeno je razlikom potencijala (naponom) na elektrodama spojenim na različitim krajevima materijala. Pod ovakvim utjecajem, uzorak postaje dvoloman, s različitim indeksima loma za svjetlost polariziranu paralelno i okomito na primijenjeno električno polje. Razlika u indeksu loma Δn , iznosi:

$$\Delta n = \lambda KE^2$$

gdje je λ valna duljina svjetlosti, K Kerrova konstanta, a E jakost primijenjenog električnog polja.

Razlika u indeksu loma uzrokuje ponašanje materijala poput valne ploče, kad svjetlost ulazi okomito na električno polje. Neke polarne kapljevine, poput nitrotoluena ($C_7H_7NO_2$) i nitrobenzena ($C_6H_5NO_2$) imaju vrlo visoke Kerrove konstante.



Slika 7. Kerrov magnetooptički efekt (a), slika magnetiziranog uzorka (b)

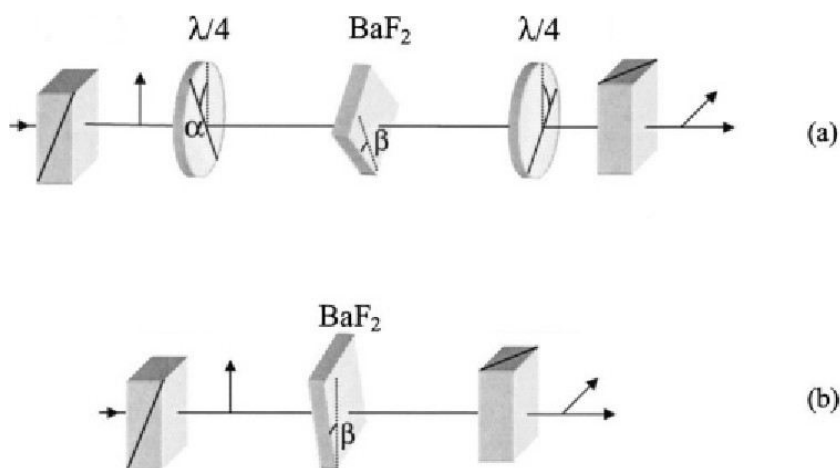
3.4 Optički soliton

U optici, soliton predstavlja bilo koje optičko polje koje se ne mijenja tijekom širenja, zbog osjetljive ravnoteže između nelinearnih i linearnih efekata u mediju. Postoje dvije glavne vrste solitona:

1. Prostorni soliton – nelinearni efekt djeluje protiv difrakcije, elektromagnetsko polje može mijenjati indeks loma medija tijekom širenja, stvarajući strukturu sličnu optičkom vlaknu.
2. Vremenski soliton – ako je elektromagnetsko polje već prostorno ograđeno, moguće je slati pulseve svjetlosti koji neće mijenjati oblik zbog nelinearnih efekata koji djeluju protiv disperzije.

3.5 Miješanje 4 vala

Miješanje 4 vala rezultira kombinacijom dvije ili tri valne duljine koje tvore dvije ili jednu novu valnu duljinu. Predstavlja parametarski proces u kojemu je očuvana energija dolazećih fotona. Generiranje okomito polariziranog vala (*cross-polarized wave/XPW*) je nelinearni optički proces koji spada pod miješanje 4 vala. Događa se samo u medijima s anizotropijom i nelinearnošću III. reda. Iz nelinearnog kristala izlazi novi polarizirani val, iste frekvencije, ali polariziran okomito na ulazni val.



Slika 8. Generiranje okomito polariziranog vala

3.6 Optička raspršenja

Ramanov efekt predstavlja neelastično raspršenje fotona pri međudjelovanju s materijom. Kad se fotoni rasprše iz atoma ili molekule, većina se elastično rasprši (Rayleighovo raspršenje). Mali dio (približno 1 u 10 milijuna) rasprši se mehanizmom pobuđenja, zajedno s promjenom (smanjenjem) frekvencije. U plinovitom stanju, fotoni mogu predati energiju molekuli koja prelazi u pobuđeno stanje.

Ramanovo pojačanje odnosi se na pojavu neelastičnog raspršenja fotona više frekvencije ('pump' foton), na fotonu niže frekvencije ('signal' foton) u nelinearnom optičkom mediju. Ovdje valja uočiti bitno obilježje medija s nelinearnim odnosom između polarizacije i električnog polja, a to je **efektivno** djelovanje jednoga fotona na drugi. Takvoga djelovanja u linearnim medijima, odnosno u vakuumu, nema, tj. jedan svjetlosni val ne utječe na svojstva drugoga svjetlosnoga vala. Kao zanimljivost možemo istaći i efektivno raspršenje jednoga fotona na drugom u relativističkoj teoriji polja, gdje do takvoga učinka dolazi uslijed polarizacije vakuuma, odnosno stvaranja virtualnog para čestica-antičestica koji je u stanju "prenijeti" informaciju o jednom fotonu na drugi. "Kao rezultat ove pojave, stvara se još jedan foton 'signal' vrste, s viškom energije koji u obliku vibracije prelazi na medij. Ovaj efekt omogućuje većinu optičkih pojačanja, koja se koriste u telekomunikacijama.

Brillouinovo raspršenje odnosi se na međudjelovanje svjetlosti i valova tvari u mediju. Indeks loma materijala ovisi o svojstvima medija, kao što je opisano u klasičnoj optici. Rezultat interakcije svjetlosnog vala i deformacije medija koji prenosi val tvari je da dio prenesenog svjetlosnog vala mijenja svoju količinu gibanja (također i frekvenciju i energiju) u određenim smjerovima, kao da je lom uzrokovan oscilacijskom trodimenzionalnom rešetkom difrakcije.

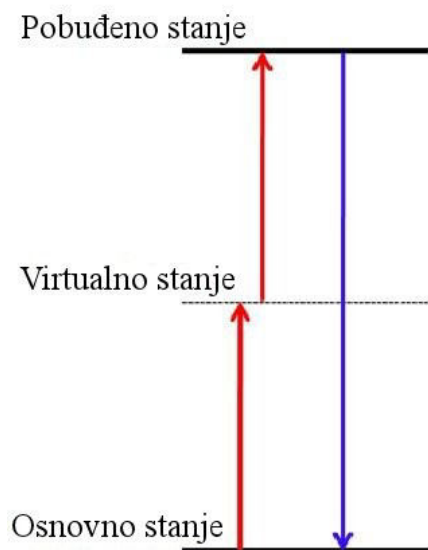
Ako je medij čvrsti kristal, makromolekularni čvrsti lanac, viskozna kapljevina ili plin, onda niskofrekventna deformacija atomskog lanca unutar tvari može biti:

1. Oscilacija mase (akustična), fononska pobuđenja (mehaničke vibracije)
2. Premještaj naboja (kod izolatora i poluvodiča, polaronska pobuđenja, e^- i šupljina u vodljivoj vrpci)
3. Oscilacija magnetskog spina (u magnetiziranim materijalima, magnoni)

Prema pogledu fizike čvrste tvari, Brillouinovo raspršenje je interakcija između elektromagnetskog vala i bilo koje vrste gore opisanih 'valova' u kristalnoj rešetci. Raspršenje je neelastično, što znači da foton gubi energiju ('Stokesov proces') te u procesu može stvoriti jednu od tri kvazi-čestice (fonon, polaron, magnon), ili može primiti energiju ('anti-Stokesov proces') apsorpcijom jedne od te tri čestice. Takav pomak u energiji ('Brillouinov pomak') jednak je energiji apsorbirane ili emitirane kvazi-čestice.

3.7 Dvofotonska apsorpcija

Dvofotonska apsorpcija je istovremena apsorpcija dva fotona identičnih ili različitih frekvencija u slučaju pobuđenja molekule iz jednog stanja (osnovno stanje) u pobuđeno stanje. Energetska razlika između gornjeg i donjeg stanja, jednaka je zbroju energija dva fotona. Apsorpcija dva fotona je proces III. reda. Dvofotonska apsorpcija ovisi o kvadratu intenziteta svjetlosti, zato se naziva nelinearnim optičkim procesom te može potpuno preuzeti linearnu apsorpciju pri većim intenzitetima svjetlosti.



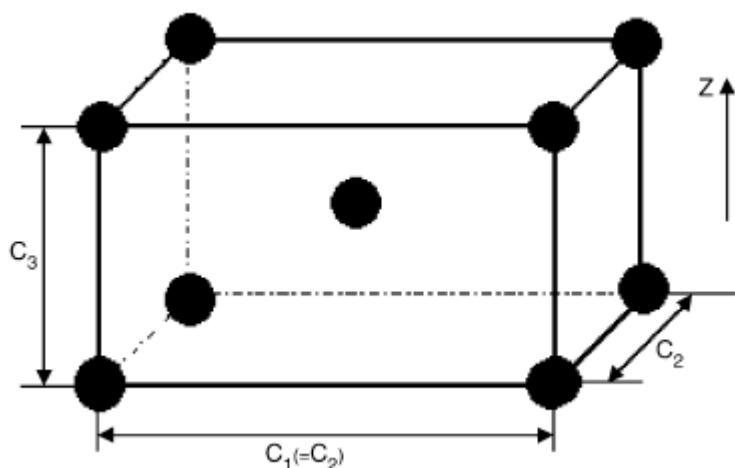
Slika 9. Energetski dijagram dvofotonske apsorpcije

4. PREGLED TEORIJSKIH I EKSPERIMENTALNIH REZULTATA

4.1 Pojačanje nelinearnog optičkog odziva kristala – koloidni nanokristali

Koloidni kristali su podrobno istraživani u nanoinženjerstvu materijala i njihove potencijalne upotrebe sežu od nanofotonike do kemije i biomedicine.

Mogu biti pripremljeni prema već predloženoj sedimentaciji, metoda baziranih na kapilarnim silama i električnim poljima. Postoje kao prostorno centrirane tetragonalne (*body-centered tetragonal, bct*) strukture, prostorno centrirane kocke (*body-centered cubic, bcc*) i plošno centrirane kocke (*face-centered cubic, fcc*), ovisno o rešetci, a time i o volumenu frakcija koloidnih čestica. Te strukture mogu biti istraživane korištenjem statičkih i dinamičkih tehnika raspršenog svjetla.



Slika 10. Shematski prikaz lokacija dvaju koloidnih nanočestica u tetragonalnoj jediničnoj ćeliji. ²

Dosada, koloidno bazirani optički senzori su postali mogući zbog tih tehnika proizvodnje.

Ovaj odlomak opisuje klasu koloidnih kristalno baziranih nelinearnih optičkih materijala, koji su sagrađeni od gradiranih metalno dielektričnih nanočestica ili od optičkih vlakana čija je jezgra materijala s indeksom loma koji se smanjuje s povećanjem radijalne udaljenosti od centralne osi vlakna.

4.1.1 Nanokristali s nehomogenim metalno dielektričnim nanočesticama

Počnimo gledanjem tetragonalne ćelije koja ima bazu od dvije koloidne nanočestice od kojih svaka ima induciranu točku dipola u centru. Jedna nanočestica je smještena u kutu, a druga u centru ćelije. Konstante te rešetke su označavaju sa $c_1(=c_2)=lq^{-1/2}$ i $c_3=lq$ duž x(y) i z osi. U ovom slučaju, jedna os anizotropije je usmjerena duž z osi.

Stupanj anizotropije periodične rešetke je mjerena na način da se gleda devijacija q od jedinice. Na primjer, $q=0.87358, 1.0$ i $2^{1/3}$ prikazuju redom *bct*, *bcc* i *fcc*. Općenito, za koloidni kristal, individualne nanočestice bi se trebale dodirivati. Zapravo, koloidni kristal, bez da se čestice dodiruju, može također biti napravljen ako su koloidne nanočestice nabijene i stabilizirane elektrostatskim silama.

S nedavnim napretkom u izgradnji nanoljuski, dozvoljeno nam je da koristimo dielektričnu površinu debljine d nehomogene metalne jezgre s radijusom a , kako bi aktivirali odbojnu (ili privlačnu) silu između nanočestica. To je također presudan uvjet, jer inače multipolarna interakcija metalne jezgre može biti važna. Dielektrična konstanta $\epsilon_1(r)(r \leq a)$ metalne jezgre bi trebala biti radijalna funkcija zbog radijalne gradacije. Dielektrična konstanta ϵ_s površinskog sloja može biti ista kao ona od okolnog fluida $\epsilon_2(\text{host fluid})$. Temeljem toga, površinski sloj pridonosi geometrijskom ograničenju :

$$c_1^2 + c_2^2 + c_3^2 = 16(a + d)^2 \quad (3)$$

prije nego efektivnom optičkom odzivu. Zbog ovog ograničenja, nađeno je da se najmanji q pojavljuje u *bct* rešetci, a najveći u *fcc* rešetci. Između ostalog, dobivamo i relaciju između q i volumena frakcije p metalne komponente:

$$p = \frac{\pi}{24t^3} \left(\frac{q^3 + 2}{q} \right)^{3/2} \quad (4)$$

sa parametrom debljine $t=(a+d)/a$. Kada je vanjsko električno polje E_0 primijenjeno duž x osi, inducirani dipolni moment P je okomit na jednoosnu anizotropnu os.

Uzet je u obzir utjecaj lokalnog polja koje dolazi od ostalih čestica u rešetci (efekt rešetke).

Sad definiramo faktor lokalnog polja u slučajevima poprečnog polja, $\alpha_{\perp} = 3V_C E_L / (4\pi P)$.

Važno je napomenuti da je α_{\perp} funkcija jedne varijable q .

Također postoji pravilo zbrajanja,

$$2\alpha_{\perp} + \alpha_{\parallel} = 3 \quad (5)$$

gdje α_{\parallel} predstavlja faktor lokalnog polja u longitudinalnim (uzdužnim) slučajevima polja.

Ovdje slučaj uzdužnog ili poprečnog polja odgovara činjenici da je E polje incidentne svjetlosti paralelno (ili okomito) s jednoosnom anizotropnom z osi.

Za *bct*, *bcc* i *fcc* rešetke, dobivamo rezultate $\alpha_{\perp} = 0.95351, 1.0, \text{ i } 1.0$ ili alternativno $\alpha_{\parallel} = 1.09298, 1.0, \text{ i } 1.0$.

Ako nema posebnih uputa, koristimo α da označimo i α_{\perp} i α_{\parallel} u daljnjoj raspravi.

Da bi prikazali efekte gradacije, prisvojili smo Drude formu :

$$\epsilon_1(\mathbf{r}) = 1 - \frac{\omega_p^2(\mathbf{r})}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (6)$$

s profilom gradacije sukladno s modelom frekvencije plazme:

$$\omega_p(\mathbf{r}) = \omega_p(0) \left(1 - C_{\omega} \frac{r}{a}\right) \quad (7)$$

Mogući način da bi se postigla takva gradacija je da se izgradi rešetkasta metalna jezgra korištenjem različitih plemenitih metala za različite slojeve unutar metalne jezgre.

Za fokusiranje na nelinearno poboljšanje model gdje je $\chi_1^{(3)}(\mathbf{r}) = \chi_1^{(3)}$ realna i pozitivna te o frekvenciji neovisna konstanta i nema profil gradacije. U ovom slučaju, ekvivalentna nelinearna osjetljivost $\chi_1^{(3)}(\mathbf{r})$ bi trebala još uvijek ovisiti o r zbog radijalne funkcije $\epsilon_1(\mathbf{r})$.

Za zadanu debljinu ljuske, kada q varira od *bct* do *bcc* pa do *fcc* rešetke, volumen frakcije p se smanjuje od *bct* i doseže minimum u *bcc*, i onda se ponovo povećava prema *fcc*.

Tablica 1. Prikaz promjene q ovisno o vrsti prostorne strukture i vrijednosti t

	$t=1.2$	2.0	3.0
<i>bct</i>	$p=0.40401$	0.08727	0.02586
<i>bcc</i>	$p=0.39362$	0.08502	0.02519
<i>fcc</i>	$p=0.42852$	0.09256	0.02743

Istovremeno, uzdužno lokalno polje α_{\parallel} se mijenja od 1.09 na *bct* rešetci do 1 na *bcc* i *fcc* rešetkama.

Stoga, za *bct* slučaj, velik p i velik α_{\parallel} bi trebali dati povećanje valne duljine svjetlosti (*red shift* ili *crveni pomak - pomak prema infracrvenom dijelu spektra*) od slučaja jedne čestice s p približno jednako nuli, gdje efekt rešetke nestaje i samo ostaje efekt gradacije.

Za *bcc* rešetke, crveni pomak bi trebao biti najmanji zbog male vrijednosti p i $\alpha_{\parallel}=1$, a za *fcc* rešetke, pomak bi trebao biti između onoga *bcc* i *bct* rešetki.

To je zato što se α ne mijenja puno, dok se p mijenja drastično (Tablica 1). Iz eksperimentalnih mjerenja, očito je da za danu rešetku, efektivni linearni i nelinearni odzivi ovise puno o parametru debljine t . Oboje, i crveni pomak i snaga rezonantne energetske vrpce plazme su najveći za najmanji t . To je kombinacija efekta lokalnog polja i efekta volumne frakcije u koloidnim kristalima. No za zadanu debljinu t , ovisnost tih odziva na kristalnu strukturu nije istaknut. Rezonantna vrpca plazme se pojavljuje gradacijom, u kojem su rezultati za slučaj različitih C_∞ (i stoga različitih stupnjeva gradacije) također obrađeni i objavljeni. Slični rezultati se istražuju za slučajeve poprečnog polja. U usporedbi s opisanim uzdužnim slučajevima okosnica odziva u poprečnim slučajevima su malo pomaknute prema nižima valnim duljinama (*blue shift ili plavi pomak*). Uglavnom, i mala promjena ustvari može biti detektirana u eksperimentima.

Vjerujemo da dielektroforeza (*kretanje električki polarizirane čestice u nejednoličnom električnom polju*) može ponuditi prikladan način za popravljavanje koloidnih kristala. Nije neobično da se gradirani koloidni kristal izgradi dielektroforezom. U ovom slučaju, čestice u mediju mogu, ali i ne moraju imati različita dielektrična svojstva, ali moraju biti istih veličina. U nejednoličnom primijenjenom polju, različite čestice su podvrgnute različitim dielektroforetskim silama i to prema njihovoj snazi polarizacije. Vezano za izgradnju rešetkastih metalnih sfera, praktični odabir u eksperimentima bi mogao biti da se izgrađuju višeslojne čestice sa ili bez dielektrične anizotropije. Metalne legure bi također mogle biti obećavajuće. U rešetci, dielektrična funkcija čestica više ne zadovoljava *Drude* formu i teoretski izračun je složeniji, jer uključuje *Green*-ovu funkciju za strukture vrpce i linearne teoretske odzive za transportna svojstva. U odjeljku 4.1.1 cilj razmatranja tetragonalnih rešetki je da se postigne anizotropija, tako što će se mijenjati parametri rešetke, kako bi se naposljetku postigla veća optička nelinearnost nego u izotropnom sustavu kao što je kubična struktura.

Zaključno, teoretski se istražuje klasa nelinearnih optičkih materijala baziranih na koloidnim kristalima rešetkastih metalno dielektričnih nanočestica. Takvi materijali mogu imati i poboljšanja i crveni pomak za optičku nelinearnost, zbog gradacije unutar metalnih jezgra, također i efekte rešetki koji se pojavljuju iz periodične strukture.

4.1.2 Nanokristali s optičkim vlaknom

Idući korak je teoretski istražiti koloidne kristale ugrađene u rešetkasta optička vlakna i demonstrirati veliko poboljšanje optičke nelinearnosti koja se može kontrolirati gradijentom i lako promjenjivim koloidnim strukturama.

Jednostavno se koriste kvazi-statičke (*proces koji je spor toliko da se može reći da je stalno u ravnotežnim stanjima*) aproksimacije diskretnog dipola (*čestica se predstavlja kao skup ponavljajućih elemenata ili točaka*), koja je dovoljna za karakterizaciju efekta gradijenta i efekta rešetke, inače rješenje je teže, a rješava se preko *Green-ove* funkcije ili osnovnih principa.

Teoretski izračun primijenjen je na model tetraedarske rešetke sa jednoosnom anizotropijom [Slika 11.]. *Bcc* ima najmanju gustoću pakiranja, dok *fcc* ima najveću u ova tri slučaja (*bcc*, *bcc* i *fcc*). Primjena na druge koloidne strukture kao što su jednostavne tetraedarske rešetke su manje-više identične pa su očekivani slični rezultati. Ostvarivanje prednosti interakcije unutrašnjeg sloja tenzora T (T_{ij} označava interakciju snage između dva reda jamica u ravnini) zadanog Leknerovom metodom zbrajanja, riješili smo jednadžbu:

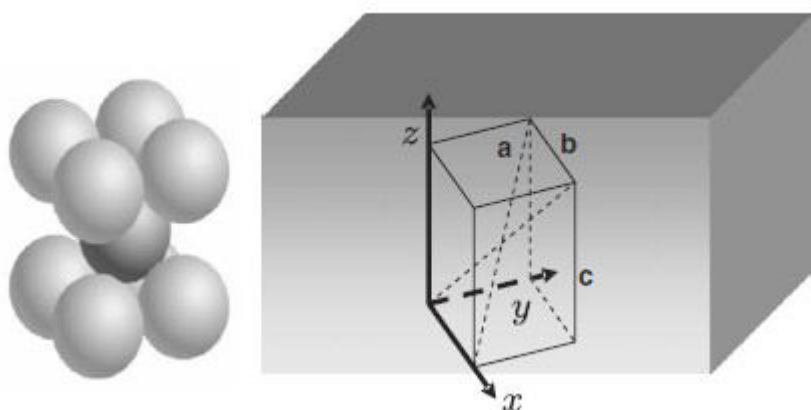
$$E_i = \frac{1}{a^3} \sum_{j=0}^N N T_{ij} \cdot (\alpha_j E_j) + E_i^{(0)} \quad (8)$$

gdje je a konstanta, kao što je prikazano u Slici 11., α_j je sloj ovisan o linearnoj polarizaciji, i i j označavaju kristalni sloj, a N označava ukupan broj slojeva. $E_i^{(0)}$ u gornjoj jednadžbi nije samo primijenjeno električno polje E_0 , unatoč prisutnosti gradijenata. To je polje unutar rešetkastog medija domaćina (*grade host medium*), koje je stoga određeno svojstvom kontinuiranosti normalne komponente električnog premještanja D u longitudinalnom slučaju, npr. E_0 je paralelan s jednoosnom osi. To je u našem slučaju z os prikazana na Slici 11. Svejedno se u poprečnom slučaju (E_0 okomito na jednoosnu os) koristi primijenjeno polje E_0 , jer obvezujući uvjet sad postaje kontinuiranost tangencijalne komponente električnog polja. Usporedili smo efektivne linearne i nelinearne optičke odzive koloidnih kristala s različitim strukturama rešetke (*bct*, *bcc*, *fcc*), izgrađenih od metalnih nanočestica linearne dielektrične konstante ϵ_1 i trećeg reda nelinearne osjetljivosti χ_1 , suspendirane u domaćem fluidu dielektrične konstante ϵ_m .

Nema nelinearnog odziva kod okolnog fluida, što je ustvari relativno zanemarivo uspoređujući s onim u metalu. Dodatno, gradijent dielektrične konstante okolnog fluida je predstavljen duž jednoosnog smjera koloidnih kristala, npr. $\epsilon_m = \epsilon_m(z_i)$ u našem slučaju.

Temeljem toga, tretiramo okolni fluid kao kontinuirano slojevit film, stoga jedna eksplicitnost postoji u longitudinalnom slučaju.

Formacija gradijenta u okolnom fluidu može biti postignuta disperzijom različitih polimera, selektivnim punjenjem s mikrofluidnim materijalima, ili indukcijom postojanjem temperaturnog gradijenta. Netko može također jednostavno pokriti nanočestice s različitim pokrivnim ljuskama (*coverage shells*). Ali još uvijek ostaje izazov, jer nova svojstva iz naših predviđanja zahtijevaju razumno veliki gradijent u dielektričnoj konstanti okolnog fluida.



Slika 11. Tetraedarska rešetka s jednoosnom anizotropijom ²

Slika 12. pokazuje u logaritamskoj skali longitudinalnu optičku apsorpciju i modul faktora nelinearnog poboljšanja γ , kao funkcije reducirane frekvencije.

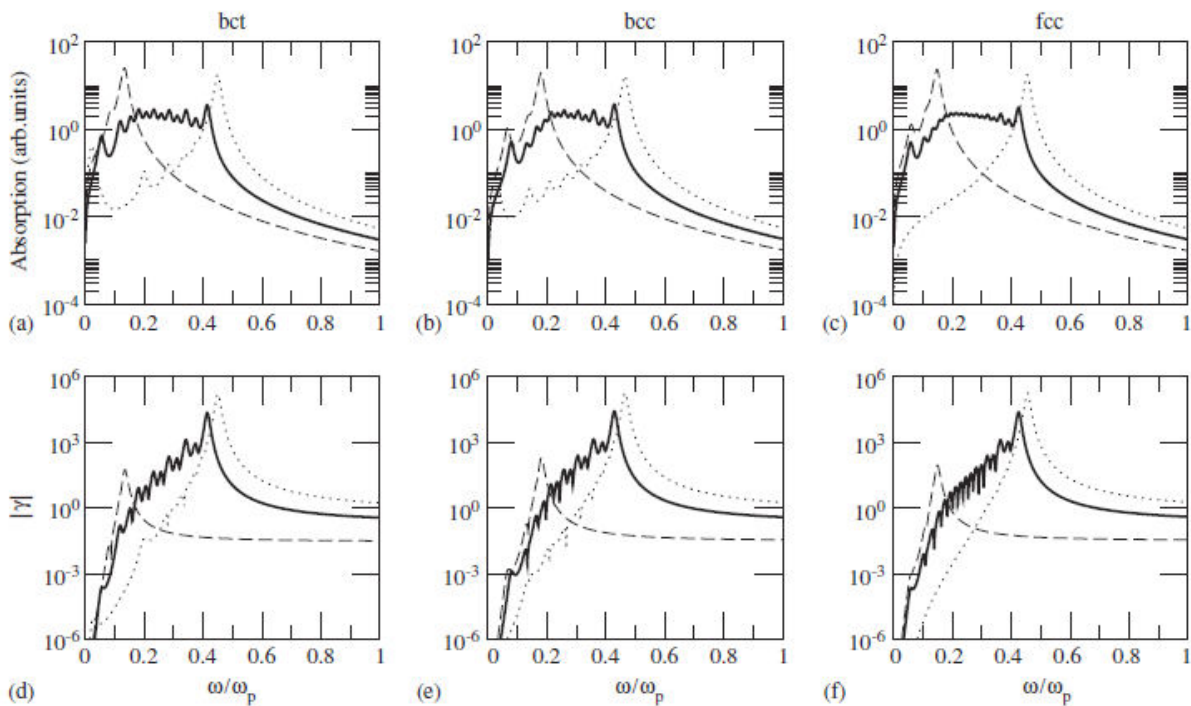
Specifično smo usporedili rezultate bct ($q=0.87358$), bcc ($q=1$) i fcc ($q=1.25992$). Postojanje nehomogenosti u domaćem fluidu očito vodi uvećanoj i ogromnoj poboljšanoj rezonantnoj vrpca u području niske frekvencije. To je zanimljivo za potencijalnu upotrebu u telekomunikacijama. Rezultati iste koloidno suspendirane u homogenom mediju s $\epsilon_m = 1$ (točkaste linije) i $\epsilon_m = 2.25$ (isprekidana linija) su također prezentirani, kako bi demonstrirali da uvećana rezonantna vrpca u nekom smislu proizlazi iz hibridizacije nerešetkastih struktura. Iz apsorpcijskog spektra i poboljšanja u nelinearnoj osjetljivosti trećeg reda, očekivali bismo da materijali efektivno imaju veliku nelinearnost i relativno malu apsorpciju. To je zasigurno superiornije u odnosu na čisti metal, jer općenito ima veliku nelinearnost i neželjenu apsorpciju istovremeno. Važno je reći da su vrhovi vrpca rezonancije plazme, u slučajevima homogenog fluida, crveno pomaknuti (prema većim valnim duljinama) u odnosu na odgovarajuće, predviđene iz Maxwell-Garentt teorije.

Mi ustvari postavimo razmak od $2r/5$ između najbližih rešetaka čestica kako bi izbjegli velike komplikacije koje nastaju iz interakcija više slika.

Dobro je poznato da multipolarne interakcije igraju važnu ulogu kada se dvije čestice približavaju. Predstavljanje razmaka čini veličinu nanočestice, a time i dipolnog faktora relativno malim i nekako smanjuje efekt koji nastaje iz varijacije strukture rešetke.

Unatoč činjenici da smo tretirali kontinuirane varijacije dielektrične funkcije u okolnom fluidu kao da su slojevite u dobivanju α_i i β_i , dipoli su ustvari rasprostranjeni u čvorovima rešetke.

Treba spomenuti da se longitudinalni i poprečni rezultati kristala u homogenom okolnom fluidu ne razlikuju puno.



Slika 12. Logaritamski prikaz longitudinalne optičke apsorpcije u ovisnosti o reduciranoj frekvenciji ²

Zaključno, teoretski smo istražili optičko rezonantno poboljšavanje zbog efekta rešetke i efekta gradijenta u koloidnim kristalima, koji su napravljeni od suspendiranih metalnih nanočestica u rešetkastom optičkom vlaknu. Gradijenti u fluidu i koloidnoj strukturi su lako modificirani, npr. transformacija strukture može biti inducirana elektro-reološkim efektom ili samo slaganjem dviju različitih čestica s biokemijski različitim površinskim svojstvima, itd..

4.2 Metalni filmovi

Tanki filmovi mogu posjedovati različita optička svojstva u usporedbi s istim materijalom većih dimenzija. Nedavno, neki autori su eksperimentalno našli da rešetkasti tanki filmovi mogu imati bolja dielektrična svojstva od jednoslojnog filma. Gradirani (rešetkasti) materijali su materijali čija materijalna svojstva mogu varirati u prostoru. Ti materijali su privukli veliku pažnju za primjenu u raznim inženjerskim poljima.

Problem postane složeniji prisutnošću nelinearnosti u realnim kompozitima. Osim gradacije (nehomogenosti), nelinearnost igra također važnu ulogu u efektivnim materijalnim svojstvima kompozitnog medija. Veliko poboljšanje linearnosti je nađeno proučavanjem sub-valne duljine višesloja titanijevog dioksida i konjugiranog polimera.

Kod poboljšane površinske plazmonske rezonancije nelinearnost često dolazi uz snažnu apsorpciju i ovo ponašanje smanjuje osjetljivost i sposobnost pika rezonantnog poboljšanja da je premali da bi bio koristan. Kako bismo zaobišli ovaj problem, probali smo eksplloatirati nove materijale, kao što su nehomogeni (gradirani) metalni filmovi, kako bi postigli veliko poboljšanje nelinearnosti i optimalan FOM (*figure of merit*).

Ustvari, u praksi je prikladnije izgraditi višeslojne metalne filmove, nego gradirane filmove pošto višeslojni metalni filmovi mogu biti spremno pripremljeni u sustavu depozicije filtriranim svjetlosnim lukom pa je važno proučiti višeslojne efekte kako se broj slojeva unutar filma povećava. Shodno tome, za ovo je očekivano da ima praktičnu važnost.

4.2.1 Nehomogeni metalni filmovi

Razmatramo nehomogeni metalni film širine L , a gradacija koju razmatramo je okomita na film. Lokalna konstitutivna relacija između premještaja D i električnog polja E unutar gradirane slojevite geometrije je dana s:

$$D(z, \omega) = \epsilon(z, \omega)E(z, \omega) + \chi(z, \omega)|E(z, \omega)|^2 E(z, \omega) \quad (9)$$

gdje je $\epsilon(z, \omega)$ linearna dielektrična konstanta a $\chi(z, \omega)$ nelinearna osjetljivost trećeg reda. Treba primijetiti da su $\epsilon(z, \omega)$ i $\chi(z, \omega)$ profili gradacije kao funkcija pozicije r . Ovdje pretpostavljamo da je slab nelinearni uvjet zadovoljen, to jest doprinos druge strane (desno od plusa je nelinearni dio) gore navedene jednadžbe je puno manji nego doprinos linearnog dijela.

Dalje ograničavamo naše promatranje na kvazi-statičnu aproksimaciju, unutar koje geometrija cijelog sloja može biti izražena kao da je efektivno homogena s efektivnom dielektričnom konstantom $\epsilon(\omega)$ i efektivnom nelinearnom osjetljivošću trećeg reda $\chi(\omega)$.

Z-ovisan profil za frekvenciju plazme i vrijeme relaksacije može biti postignut eksperimentalno. Jedan način bi bio da se nametne profil temperature, jer je istraženo da je površinski poboljšano Ramanovo raspršivanje osjetljivo na temperaturu. Stoga se može modificirati frekvencija površinskih plazmona, tako da se dobije prikladan temperaturni gradijent. Temperaturni gradijent također može biti korišten u materijalima s malim pojasom ili s profilom na koncentracijama primjesa. U ovom slučaju može se nametnuti profil nositelja koncentracije naboja do određene granice.

Ovaj efekt, zajedno s materijalima koji imaju značajnu unutrašnju nelinearnu osjetljivost, će nam dati način da kontroliramo efektivni nelinearni odziv. Za manje vodljive materijale može se zamijeniti Drude forma dielektričnih konstanti s Lorentzovim oscilatorom.

Dalje, efektivni nelinearni odziv može biti napisan kao integral preko sloja kao npr.:

$$\bar{\chi}(\omega) = \frac{1}{L} \int_0^L dz \chi(z, \omega) \left| \frac{\bar{\epsilon}(\omega)}{\epsilon(z, \omega)} \right|^2 \left(\frac{\bar{\epsilon}(\omega)}{\epsilon(z, \omega)} \right)^2 \quad (10)$$

Za numerički izračun, stavimo da je $\chi(z, \omega)$ konstanta (χ_1), u pokušaju da se naglasi poboljšanje optičke nelinearnosti. Kada je prostorna ovisnost $\omega_p(z)$ uzeta u obzir, promatrana je široka vrpca rezonancije plazme. Kao što je očekivano, široka vrpca se pojavila zbog utjecaja prostorne ovisnosti frekvencije plazme gradiranog metalnog filma. Posebno, ova vrpca može biti promatrana u skoro cijeloj širini frekvencije pošto je C_ω dovoljno velik. Drugim riječima, dokle god je film koji promatramo jako nehomogen, za vrpcu rezonancije plazme je očekivano da će se pojaviti u cijeloj širini frekvencije. Dodatno, također je dokazano da rastući C_ω uzrokuje crveni pomak vrpce rezonancije (*uglavnom su locirani na nižim frekvencijama*).

Ukratko, iako je poboljšanje efektivne nelinearne osjetljivosti trećeg reda često povezano s pojavom optičke apsorpcije, još je uvijek moguće da FOM bude privlačan uslijed prisutnosti gradacije metalnih filmova.

Očito je da u regiji niskih frekvencija, prostorna ovisnost stope relaksacije $\gamma(z)$ poboljšava ne samo nelinearnu osjetljivost trećeg reda nego i FOM gradiranih metalnih filmova.

Posljedično, gradirani metalni filmovi su pogodni kandidati za postizanje optimalnog FOM. Prema tome, očekuje se objava odgovarajućih eksperimenata, kako bi se provjerila teoretska predviđanja budući da se gradirani metalni filmovi mogu lako proizvesti.

Raspravljali smo o gradiranim metalnim filmovima (slojevita geometrija), u pokušaju istraživanja efekta gradacije na nelinearno poboljšanje i FOM takvih materijala.

U uobičajenoj teoriji površinske rezonancije plazmona za poboljšanje nelinearnosti, u sustavu često postoji dielektrična komponenta.

S obzirom na to, ispada da nije teško dodati homogeni dielektrični sloj na metalni film. Ista teorija još uvijek funkcionira, ali i istaknuti maksimum rezonancije plazmona pojavljuje se na nižim frekvencijama kao i vrpca rezonancije plazmona. Uslijed istovremene jake apsorpcije, FOM poboljšanja maksimuma rezonancije je premali da bi bio koristan. No u granici nestajuće volumne frakcije dielektrične komponente rezultati ukazuju na suprotno.

Štoviše, ovi rezultati ne ovise o posebnoj formi dielektrične funkcije. Jedini uvjet je da moramo imati dovoljno velik gradijent, ili u $\omega_p(z)$ ili u $\gamma(z)$ da prinese širokoj vrpici rezonancije plazmona.

Sažeto, istražili smo efektivnu linearnu i nelinearnu osjetljivost trećeg reda gradiranih metalnih filmova sa slabom nelinearnošću. Nađeno je da prisutnost gradacije u metalnim filmovima daje široku vrpcu rezonancije plazmona u optičkoj regiji, što rezultira velikim poboljšanjem nelinearnosti i stoga optimalnim FOM-om.

4.2.2 Višeslojni metalni filmovi

Da bi razmatrali višeslojni efekt na efektivni nelinearni optički odziv, moramo krenuti od općenitog slučaja npr. gradirani metalni film. Razmatramo gradirani metalni film širine L , i njegova gradacija je u smjeru okomitom na film. U kvazi-statičnoj aproksimaciji, cijeli gradirani film može biti smatran kao da je efektivno homogen s efektivnom dielektričnom konstantom $\epsilon(\omega)$ i efektivnom nelinearnom osjetljivošću trećeg reda $\chi(\omega)$. $\epsilon(\omega)$ i $\chi(\omega)$ su definirani duž z osi.

Zatim, usvajamo sljedeći Drude dielektrični profil

$$\epsilon(z, \omega) = 1 - \frac{\omega_p^2(z)}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (11)$$

gdje $0 \leq z \leq L$, a γ je prigušni koeficijent u odgovarajućem rasutom materijalu. Općenita forma u gornjoj jednadžbi dopušta mogućnost profila gradacije u frekvenciji plazme $\omega_p(z)$.

Zatim usvojimo srednju vrijednost od $\omega_p(z)$ za svaki pod-interval kao frekvenciju plazme tog podsloja. Na ovaj način, procjenjujemo efektivnu dielektričnu konstantu, efektivnu nelinearnu osjetljivost trećeg reda i FOM za svaki N . Važno je napomenuti da N ide u beskonačnost.

Općenito, film širine L je uzet kao cjelina.

Za numerički izračun, uzimamo kao model frekvenciju plazme u profilu gradacije:

$$\omega_p(z) = \omega_p(0)(1 - C_\omega z) \quad (12)$$

gdje je C_ω konstanta (gradijent) koji odgovara profilu .

Kada broj slojeva postane velik, oštri pikovi se akumuliraju u široku vrpcu dok se fluktuacija značajno smanjuje.

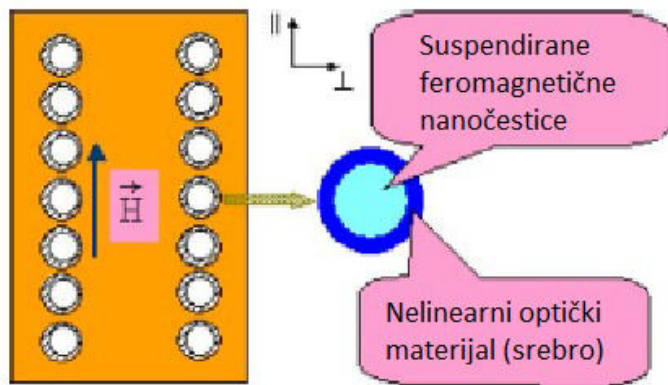
U ovim granicama, nastaje široka vrpca kontinuirane apsorpcije, i FOM ostaje dovoljno velik.

Ukratko, postoji prijelaz od oštih pikova prema širokim kontinuiranim vrpcama, kako raste broj slojeva.

Dakle, istražili smo efektivni nelinearni odziv metalnih filmova kako je broj slojeva unutar filma rastao sve dok rezultati gradiranog filma nisu oporavljeni. Ovo je od praktične vrijednosti budući da je u praksi pogodnije proizvoditi višeslojne metalne filmove nego gradirane metalne filmove.

4.3 Magnetski kontrolirani nelinearni optički materijali

Najčešći način da se dobije nelinearni optički materijal je da se traže materijali u kojima komponente posjeduju svojstveno velike nelinearne odzive. U ovom dijelu ćemo teoretski eksploatirati nelinearni optički materijal čija nelinearna optička svojstva i poboljšanje optičke nelinearnosti mogu biti promijenjeni primjenom vanjskog magnetskog polja, otuda naziv *magnetski kontrolirani nelinearni optički materijali*. Uređaji koji bi mogli imati koristi od ovih materijala su optički prekidači, optički graničnici, itd. Feromagnetske nanočestice, tipično se sastoje od magnetita ili kobalta, imaju promjer od 10nm, i nose trajni magnetski moment. U nekoj kapljevini, feromagnetske nanočestice mogu lagano tvoriti čestične lance pod utjecajem vanjskih magnetskih polja, tako doprinose anizotropnoj strukturi induciranoj magnetskim poljem. Nedavno, nemagnetska zlatna ljuska je korištena za poboljšanje stabilnosti feromagnetskih nanočestica u zraku i vlazi. Dalje ćemo prikazati da efektivni nelinearni optički odziv suspenzije koja sadrži feromagnetske nanočestice s metalnim nelinearnim ljuskama (Slika 13.) može biti značajno poboljšan uslijed efekta magnetsko inducirane anizotropije. Za istraživanje o optičkim nelinearnim odzivima, uvod elementa kojeg se može kontrolirati (npr. vanjsko magnetsko polje) trebao bi otvoriti mogućnosti u polju novih pojava.

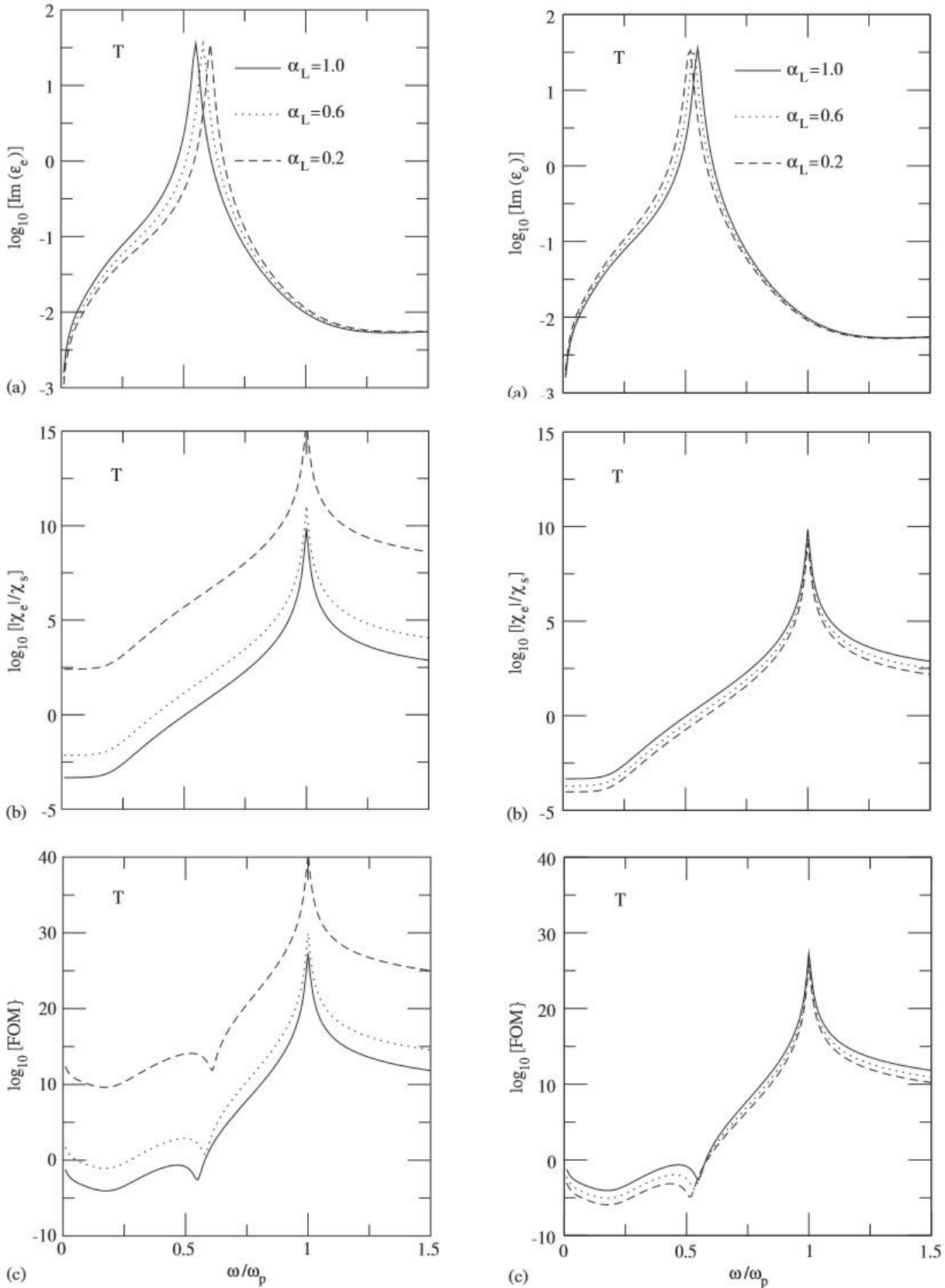


Slika 13. Grafički prikaz magnetsko upravljanih nelinearnih optičkih materijala na bazi ferrofluida ²

Nelinearna osjetljivost trećeg reda χ_3 metalnih (zlato, srebro) ljuski je jako velika kada se uspoređi s onom magnetita ili kobalta i okolnog fluida poput vode. Prvo promatramo feromagnetske linearne nanočestice linearne dielektrične konstante ϵ_1 pokrivena s nemagnetskom metalnom nelinearnom ljuskom koje su suspendirane u linearnom host-fluidu od ϵ_2 . Ograničavamo naše razmatranje na kvazi-statičnu aproksimaciju, pod kojom strukturirane čestice ili cijele suspenzije mogu biti smatrane homogenim. Potrebno je uvesti faktor lokalnog polja α da se uključi anizotropija inducirana poljem, barem kvalitativno. Detaljno, α označava faktore lokalnog polja za longitudinalne i poprečne slučajeve polja (α_L i α_T). Ovdje longitudinalni (ili poprečni) slučaj odgovara činjenici da E polje svjetlosti je paralelno (ili okomito) s lancem čestica. Postoji pravilo zbrajanja za α_L i α_T , $\alpha_L + 2\alpha_T = 3$. Parametar α mjeri stupanj anizotropije, koja je inducirana primijenjenim magnetskim poljem H. Točnije, stupanj inducirane anizotropije je određen devijacijom α od cjeline, $1 < \alpha_T < 3$ za poprečne slučajeve polja i $0 < \alpha_L < 1$ za longitudinalne slučajeve. Kako se H povećava α_L i α_T bi trebali težiti ka 0 i 3, što je indikativna formacija za sve više i više lanaca čestica.

Slika 14. prikazuje linearnu optičku apsorpciju $\text{Im}(\epsilon_e)$, poboljšanje trećeg reda optičke nelinearnosti $|\chi_e|/\chi_s$ i FOM $|\chi_e|/[\chi_s \text{Im}(\epsilon_e)]$ za longitudinalne i poprečne slučajeve. Frekvencija ω je normalizirana s ω_p , tako da bi rezultati mogli biti važeći za općenite slučajeve. $\alpha=1$ odgovara izotropnom limitu. U ovom slučaju, nema vanjskog magnetskog polja i stoga su sve strukturirane čestice nasumično suspendirane. Brojevi pokazuju da postojanje nelinearnih ljuski uzrokuje da se pojavljuje poboljšanje nelinearnosti (Slika 14. pod b), tako nastaje velik FOM (slika 14. pod c). Glavne odlike slike 14. su efekti vanjskog magnetskog polja. Kako se α_L mijenja od 1, do 0.6 i do 0.2, vanjsko magnetsko polje je prilagođeno od nule do male snage i do velike snage.

Zaključimo, uključivanjem metalne nelinearne ljuske u sistem, mogu se podesiti nelinearna optička svojstva primjenom magnetskog polja. Takvi magnetski kontrolirani nelinearni optički materijali mogu služiti kao optički materijali koji imaju anizotropna nelinearna optička svojstva i veliku poboljšanu nelinearnost te također privlačan FOM.



Slika 14. Linearna optička apsorpcija $\text{Im}(\epsilon_e)$, poboljšanje trećeg reda optičke nelinearnosti $|\chi_e|/\chi_s$ i FOM $|\chi_e|/[\chi_s \text{Im}(\epsilon_e)]$ za longitudinalne (lijevo) i poprečne (desno) slučajeve u ovisnosti o normaliziranoj kutnoj frekvenciji ²

4.4 Nelinearni optički fenomeni u tekućim kristalima

Skoro sve dostižne nelinearne optičke pojave u tekućim kristalima promatrane su u vremenskom okviru od pikosekunde (10^{-12} s) pa do nekoliko sati, uključujući vidljive infracrvene lasere snage od 10^6 W (MW) pa do nanovata (10^{-9} W) u rasutom materijalu, valno vođenu geometriju, optičke rezonatore i šupljine, modulatore prostornog svjetla ili ventile svjetla. Iz ranijih zapažanja sa ciljem razotkrivanja osnovne optičke nelinearnosti tekućih kristala s trenutnim istraživanjima temeljenim na novim materijalima i nanostrukturama s neobičnim indeksima loma (negativni ili nula) i optičkim svojstvima, tekući kristalni materijali i dalje pružaju plodno tlo za proučavanje osnova, a također i primjenu u mnogim sustavima.

4.4.1 Samofazna modulacija, fokusiranje, defokusiranje i prostorni solitoni

Efekti koji sami djeluju, i u kojima laserska zraka inducira promjene u mediju kojim prolazi i zauzvrat mijenja svoja svojstva i karakteristike kao što su frekvencija, faza, amplituda, smjerovi, polarizacije, duljine itd. , bili su glavna potpora nelinearne optike još od 60-ih godina. Ova široka klasa procesa uključuje harmonijsku generaciju, stimulirano raspršivanje, samofokusiranje, samofaznu modulaciju i samovodeću ili prostornu soliton formaciju te samoograničavajuće efekte.

U ranijim studijama izotropne faze tekućih kristala, nelinearnosti su manje više male, i tako se sva promatranja samofazne modulacije i samofokusiranih procesa odnose na efekte širenja akumuliranih tijekom dugih interakcija, i laserskih razina intenziteta od MW /cm² te su bili usmjereni prema razumijevanju optičke fizike i svojstava materijala. Otkrićem velike i supraoptičke nelinearnosti u tekućim kristalima ulazi se u eru vanjskog samofokusiranja s vrlo malom snagom lasera (mikro- i nanovati u nekim slučajevima).

Zbog velike nelinearnosti, nužna fazna promjena (ovisi o prostornom intenzitetu) koja je potrebna da se prebrodi difrakcija prirodne zrake može biti generirana u tankim (10 mikrona) nematičnim ćelijama tekućih kristala (duge dipolne organske lančane molekule). U dalekom polju difrakcijske zone, fazna promjena je manifestirana povećanom divergencijom zrake i formacijom prostornih prstena.

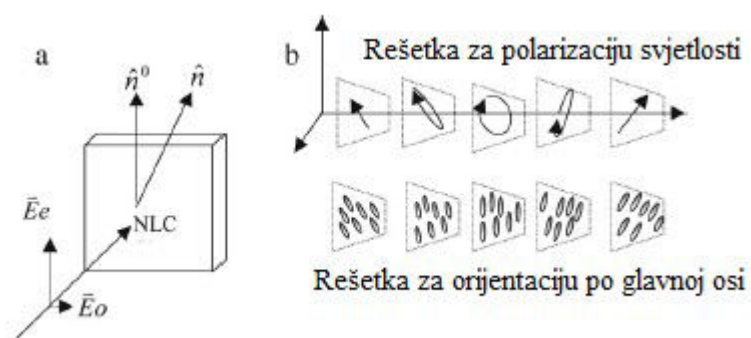
Efekti samofazne modulacije i rezultirajuće modifikacije prostornog profila zrake poput divergencije i veličine zrake postaju kompleksni i intrigantni kada je duljina interakcije dovoljno duga tako da se ti procesi promatraju unutar tekućeg kristala.

Ti kompleksni fenomeni bili su aktivno istraživani u kontekstu prostornih solitona, samoinicirajućim formacijama. U tim studijama, odziv brzine od jedne milisekunde tekućih kristala dopušta prikladno vizualno promatranje ili mjerenje dinamičkih procesa koji su također proučavani u drugim granama fizike (npr. hidrodinamika).

4.4.2 Stimulirana raspršenja orijentacije (nelinearna dinamika)

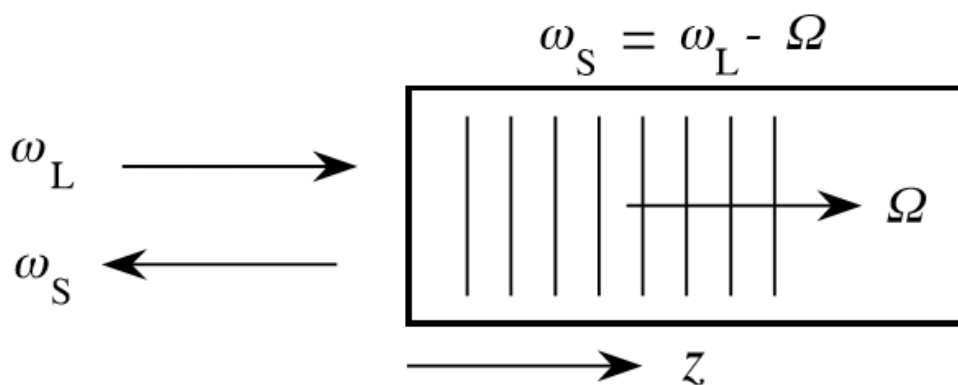
SOS (*stimulated orientation scattering*) najbolje prikazuje nelinearnu optiku s nematičnim tekućim kristalima, u kojima preusmjeravanje glavne osi stvara miješanje incidentnog vala i njihovog koherentnog raspršenog svjetla dok djeluju s glavnom osi, poput studija solitona spomenutih gore. U slučaju tekućih kristala, duljina interakcije od 100 μm je dovoljna za potpuni prijenos energije s jedne zrake na drugu. Proces uključuje dinamičko spajanje glavne osi preusmjeravanja i nelinearno elektromagnetsko širenje, njihov je odziv poput onih uključenih u druge dinamičke studije. Takav eksperiment poslužio je više kao jednostavan test za proučavanje i stimuliranje niza sličnih dinamičkih procesa.

Ranija zapažanja prolaznog SOS su provedena u okružju stimuliranog Brillouinovog raspršenja i uključivali su lasere velike snage. Zanimljiviji su praktični slučajevi koji uključuju kontinuirane lasere manje snage. Slika 15. ilustrira shematski SOS procese uzrokovane fluktuacijama glavne osi. Incidentni laser frekvencije ω_1 prikazan je poput plošnog vala s polarizacijom duž x osi.



Slika 15. Prikaz osi orijentacije u tekućim kristalima (SOS)³

Budući da su raspršeni valovi u fazi s incidentnim valom, oni koherentno dodaju polarizaciju rezultantnom električnom polju koje nosi prostornu modulaciju s vektorom rešetkastog vala magnitude, $q = (2\pi/\lambda)(n_e - n_o)$ i privremenom modulacijom frekvencije $\omega_1 - \omega_2$. Rezultirajući moment izvršen polarizacijom optičkog polja na NLC (*nematični tekući kristal*) je stoga također moduliran s rešetkastim valnim vektorom q . Važno je reći da su te rešetke ustvari pomične rešetke, budući da nose faktor od $\exp-i(\omega_1 - \omega_2)t$ te će stoga posredovati prijenosu energije iz komponente jedne frekvencije u drugu kao što je to prisutno u drugim procesima stimuliranog Brillouinovog raspršenja (SBS).



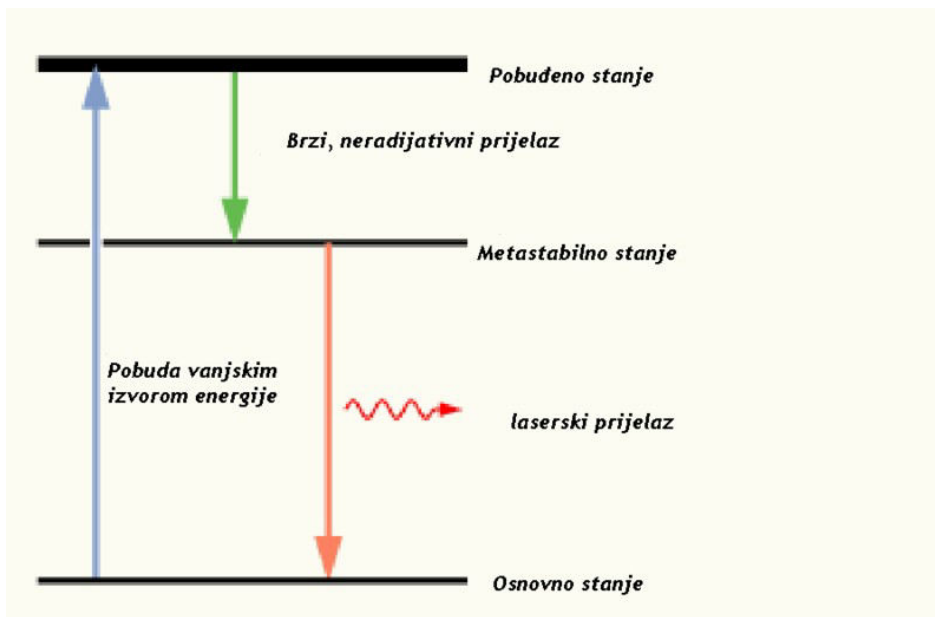
Slika 16. Stimulirano Brillouinovo raspršenje ³

5. PRIMJENA NELINEARNE OPTIKE

5.1 Laseri

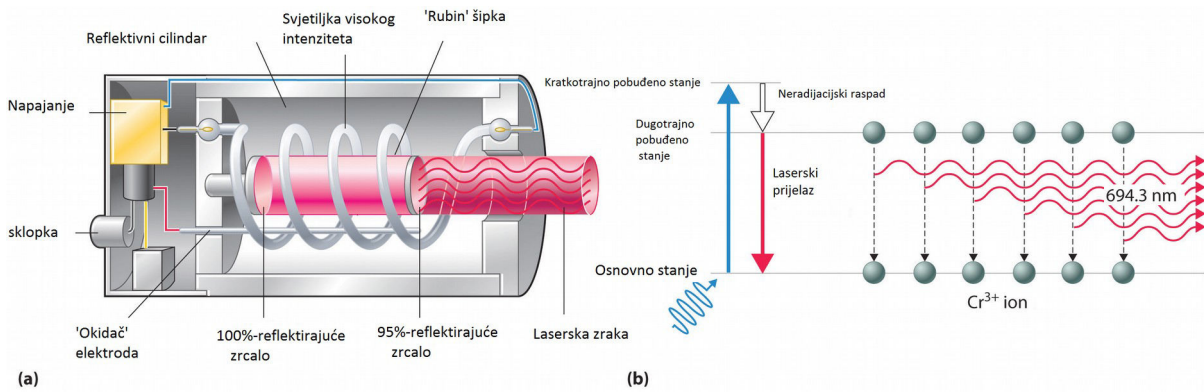
LASER (*Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*) je najčešća vrsta primjene nelinearne optike. Laser je uređaj za stvaranje i pojačavanje koherentnog elektromagnetskog, najčešće monokromatskog, usko usmjerenog zračenja. Izmjena energije zračenja s atomima ili molekulama aktivnog medija u laseru (plin, kristal, plazma) odvija se stimuliranom emisijom. To se postiže djelovanjem dodatnog izvora energije na atome u pobuđenom stanju. Time broj pobuđenih atoma postaje veći te se višak energije emitira u obliku fotona. Prvi uvjet za stimuliranu emisiju je većinski broj atoma u pobuđenom stanju.

Laserski dobiveni fotoni imaju jednak smjer, frekvenciju, polarizaciju i energiju. Time se postiže monokromatsko elektromagnetsko zračenje uskog paralelnog snopa praktički identičnih fotona i velike gustoće energije po širini spektralne linije. Snop je koherentan, što znači da su elektromagnetski valovi međusobno u istoj fazi i šire se u istom smjeru. Drugi uvjet emisije fotona je da medij mora sadržavati energijske razine čija razlika energija odgovara energiji emitiranih fotona. Inverzija napučenosti se može postići samo u posebnim slučajevima pa se samo rijetke tvari mogu iskoristiti kao laserski mediji. Inverzija napučenosti se može postići ako u sustavu postoji metastabilno stanje. Metastabilno stanje je pobuđeno stanje u kojem se atom (ili molekula) zadržava puno dulje nego u normalnim pobuđenim stanjima. U laserskom mediju mora postojati još barem jedno pobuđeno stanje, što s osnovnim stanjem čini sustav od tri energijske razine - trostupanjski laser. U laserskom sustavu s tri razine, atomi (molekule) se određenim načinom pobuđuju u pobuđeno stanje. Pobuđeno stanje, traje vrlo kratko i brzo se spušta (relaksira) u nešto niže metastabilno stanje. Atomi (molekule) se ne mogu brzo relaksirati u osnovno stanje pa laserskim medijem počinju dominirati atomi u metastabilnom stanju. Inverzija napučenosti se postiže između metastabilnog i osnovnog stanja pa se lasersko djelovanje postiže prijelazom između ta dva stanja. Pobuđeno stanje koje se koristi za populiranje metastabilnog stanja ne mora biti jedno stanje, već se može koristiti niz energijskih stanja.



Slika 17. Energetski dijagram trostupanjskog lasera

Laserski medij je smješten između dva paralelna zrcala, tako da zrake svjetla koje prolaze između dva zrcala tvore stojni val. Prostor između dva zrcala se naziva i laserska šupljina, rezonantna šupljina ili rezonator. Fotoni koji nastaju spontanom emisijom u laserskom mediju emitiraju se u svim smjerovima, ali samo oni koji su emitirani u smjeru zrcala će se reflektirati između ta dva zrcala i biti zarobljeni u laserskoj šupljini. Ti fotoni, koji veliki broj puta prolaze kroz laserski medij, će izazivati stimuliranu emisiju, prilikom prolaska blizu atoma u metastabilnim stanjima u laserskom mediju. Stimuliranom emisijom nastaju skupine fotona koji su u istom kvantnom stanju. Takvi fotoni imaju istu valnu duljinu, smjer i usmjerenje i ponašaju se kao jedan foton. Jedno od dva zrcala se obično naprave tako da nisu 100% reflektirajuća već propuštaju određenu količinu svjetla (obično manje od 1%) pa koherentni fotoni mogu izaći iz laserske šupljine. Kako se svi ponašaju kao jedan, izaći će ili svi (u skupini) ili nijedan. Na taj način laserska zraka sadrži skupine koherentnih fotona, što joj daje veliki intenzitet.



Slika 18. Shema lasera s kristalom rubina (a), energetski dijagram (b)

Laseri mogu biti plinski, kemijski, laseri s bojilima, laseri s parama metala, laseri s čvrstom jezgrom (gornja slika rubinskog lasera) te poluvodički laseri.

5.2 Nelinearna optika u informacijskim tehnologijama

Komunikacija pomoću optičkih vlakna ostvaruje se slanjem pulseva svjetla kroz optička vlakna. Signal se šalje pomoću lasera, a detektira fotoelektričnom ćelijom, koja pretvara pulseve svjetlosti u električni signal u računalu. Unutar optičkog vlakna sačinjenog od silicija, svjetlost se odbija i tako prenosi vrlo daleko. Vanjski sloj sačinjen je od materijala s nižim indeksom loma, tako da svjetlost ostaje 'zarobljena' unutar vlakna.



Slika 19. Optičko vlakno (svjetlovod)

Brzina prijenosa informacija kroz optička vlakna seže do 111 gigabita po sekundi (Gbit/s), iako je većina sustava trenutno postavljena na 10-40 Gbit/s. Neki eksperimenti su pokazali da se kombinacijom orbitalnog kutnog momenta svjetlosti može prenijeti i do 400 Gbit/s informacija (koristeći 4 okomita smjera u ravnini, 4 optička vlakna, zasad samo u laboratoriju). Svako vlakno može prenositi veliki broj neovisnih kanala (odgovarajući raznim valnim duljinama svjetlosti). Trenutni rekord u brzini prijenosa informacija postavljen je u siječnju 2013. godine, iznosi 1.05 petabita po sekundi (Pbit/s) (vlakno s više jezgri). Radi čvrstoće, dodaje se u kablove još jedna obloga od kevlar, kako bi se postigla maksimalna fleksibilnost.

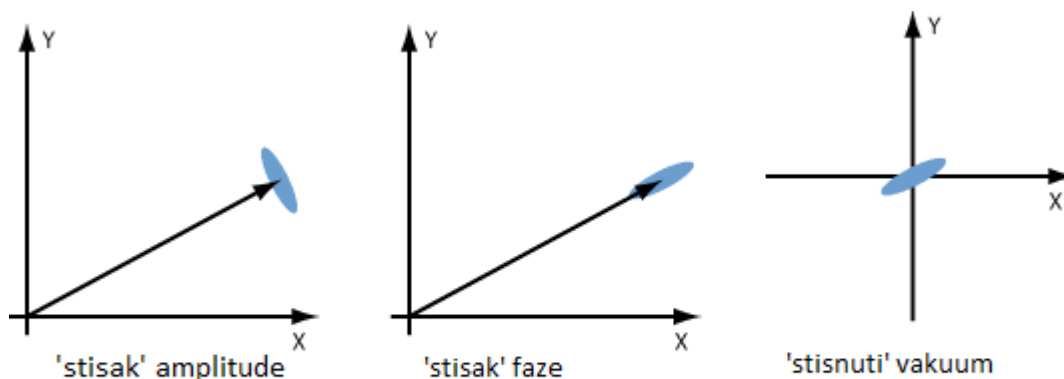
5.3 Primjena u detektorima, potpuno koherentno stanje

'Stisnuta' svjetlost predstavlja valove svjetlosti koji sadrže puno manje šuma u signalu, nego što je to uobičajeno. Ovisno o mediju kroz koji prolazi svjetlost, više je ili manje šuma. Unutar vakuuma, šum se svodi na minimalni iznos (Glauber-ovo stanje), a unutar 'stisnutog' vakuuma, moguće je postići još manje šuma, što omogućuje potpunu koherenciju (2 vrijednosti se mogu očitati, amplituda svjetlosnog vala te faza; s međuovisnim vjerojatnostima poput Heisebergovog principa neodređenosti položaja i količine gibanja). Takvo stanje je poželjno za osjetljive instrumente (detektore). 'Stisnuta' svjetlost pripada neklasičnim stanjima svjetlosti.

Zbog manje šuma, 'stisnuta' svjetlost može se primijeniti u optičkoj komunikaciji i optičkim mjerenjima. Ona omogućuje prijenos slabijih signala. Također se koristi u detekciji gravitacijskih valova. Takvi detektori (npr. LIGO) sastoje se od lasera visoke snage te interferometra kilometarskih duljina. U ovom interferometru riječ je o deformaciji reda veličine 10^{-21} , odnosno o preciznosti mjerenja udaljenosti ekvivalentnoj preciznosti mjerenja udaljenosti sljedeće (druge) najbliže zvijezde od Zemlje (oko 4 svj. godine) s preciznošću debljine jedne vlasi ljudske kose. To je oko milijun puta preciznije od mjerenja za koje je već dobivena Nobelova nagrada - Mössbauerov učinak. Cilj je astronomsko promatranje oscilacija prostora i vremena uzrokovanih prisutnošću crnih rupa, vibrirajućih neutronske zvijezde, eksplozija supernovi i velikog praska. Trenutno se koriste laseri snage nekoliko kilovata u interferometrima.

'Stisnuta' svjetlost stvara se pomoću nelinearnih optičkih kristala. Svjetlosti ultraljubičaste ili vidljive valne duljine pulsno se (ili kontinuirano) fokusira u visoko-prozirni, ali dvolomni kristal (npr. magnezijev oksid u kombinaciji s litijevim niobatom). Svjetlost se polarizira unutar materijala kristala te se jedan foton dijeli na 2 fotona otprilike polovice valne duljine.

U uobičajenim eksperimentima s takvim pretvorbama, stvaraju se parovi fotona, koji predstavljaju režim 'stisnute' svjetlosti.



Slika 20. Postizanje koherentnog stanja

5.4 Primjena u karakterizaciji: Elektronska kristalografija

Elektronska kristalografija može se koristiti za dobivanje raznih informacija o molekularnoj strukturi, polarizabilnosti, dipolnom momentu te hiper-polarizabilnosti. Kombinacijom kvantne mehanike i metoda simulacije mogu se riješiti razne nepoznanice vezane za organske strukture te se iste mogu koristiti za predviđanje fizičkih svojstava kristala.

U slučajevima kad su kristali premali za karakterizaciju disperzijom X-zraka, elektronska kristalografija je jedini način za analizu sustava i dobivanje informacija.

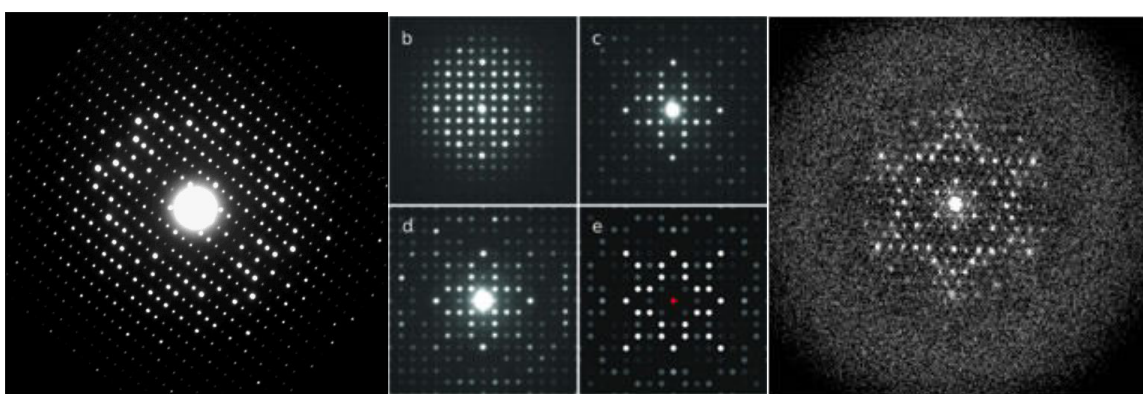
Cilj je opisati vezu između struktura organskih molekularnih kristala i njihovih nelinearnih svojstava drugog reda. Osim toga, potrebno je i sintetizirati molekule točno određenih optičkih svojstava za razne primjene. Takav pristup zahtjeva suradnju između organske kemije, fizikalne kemije, fizike te elektronske mikroskopije, a naziva se kristalnim inženjerstvom.

Efekt koji se promatra u nelinearnoj optici drugog reda je udvostručenje frekvencije ili harmoničko generiranje drugog reda (*second-order harmonic generation, SHG*). U daljnjim primjerima, prikazana je zraka infracrvene svjetlosti ($\lambda = 1,047$ nm) koja izlazi iz kristala kao zelena svjetlost ($\lambda = 523,5$ nm). Praktična primjena pronalazi se u opto-elektroničkim uređajima koji obrađuju informacije učinkovito te predstavljaju dobre kandidate za buduće sustave komunikacije.

Za razliku od anorganskih optički aktivnih kristala kao što su litijev niobat te kalijev dihidrogenfosfat, organske molekule imaju puno bolja nelinearna svojstva, iako imaju lošija mehanička svojstva. Također, geometrija i optička svojstva organskih molekula puno se lakše upravljaju određenom sintezom. Glavna značajka koju promatramo je nelinearna osjetljivost χ . X će biti 0 kad je kristal simetričan s obzirom na centralnu točku.

Takav χ nije poželjan za primjenu pa se sintetiziraju molekule koje nisu simetrične s obzirom na centar. To se postiže upravljanjem kiralnošću i drugih optičkih svojstava kristala.

Za slučajeve kristala manjih od 10 nm, elektronska kristalografija predstavlja jedini način karakterizacije.



Slika 21. Prikaz elektronskog uzorka tantalovog oksida (lijevo), slike elektronske kristalografije na TEM mikroskopu; rezolucija je 1.25 angstroma ⁵

Načini izbjegavanja centralne simetrije u molekulama u sintezi:

1. Osiguravanje molekularne kiralnosti.
2. Vodikove veze stvaraju kiralne redove.
3. Redukcija dipolnog momenta osnovnog stanja radi sprječavanja nastanka anti-paralelnog rasporeda molekula.
4. Rast kristala u električnom polju, kako bi se molekule orijentirale u istom smjeru.
5. Tanki sloj debljine jedne molekule (*Langmuir Blodgett monosloj*) u kojem su sve molekule orijentirane u jednom smjeru.
6. Tekući kristali koji razbijaju simetriju.

ZAKLJUČAK

Cilj ovog rada je bio opisati procese te obraditi eksperimentalne i teorijske rezultate iz nelinearne optike. Kako bi se poboljšala učinkovitost nelinearnih optičkih procesa, koriste se novi materijali, precizni instrumenti i svjetlost odgovarajućih optičkih svojstava (svjetlost visokog intenziteta i koherencije). Pojačanje nelinearnog optičkog odziva kristala postiže se primjenom različitih materijala, poput koloidnih nanokristala, metalnih filmova i magnetskih kontroliranih nelinearnih optičkih materijala. Proučavanjem koloidnih nanokristala dokazano je da je samo određeni tip prostorne rešetke pogodan za postizanje anizotropije. Primjenom tetragonalnih rešetki postiže se veća optička nelinearnost nego u izotropnom sustavu kao što je kubična struktura. U metalnim filmovima optimalna učinkovitost nelinearnog procesa postiže se prisutnošću gradacije, a u višeslojnim filmovima povećanjem broja slojeva. Neki nelinearni optički procesi mogu se poboljšati primjenom vanjskog magnetskog polja kada se koriste feromagnetske nanočestice. Još jedan od načina poboljšanja nelinearnih optičkih procesa je primjena tekućih kristala kroz procese samofokusiranja, defokusiranja i samofazne modulacije zraka. Navedeni procesi ključni su za primjenu nelinearne optike u informacijskim tehnologijama, laserima, detektorima, karakterizaciji i mnogim drugim područjima.

POPIS SIMBOLA

f	Frekvencija, Hz [s^{-1}]
L	Električni induktivitet, Henry [$H = kg \cdot m^2 \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$]
C	Kapacitet, Farad [$F = s^4 \cdot A^2 \cdot m^{-2} \cdot kg^{-1}$]
P	Polarizacija
E	Jakost električnog polja
$\chi^{(1)}$	Linearna osjetljivost I. reda
$\chi^{(2)}$	Nelinearna osjetljivost II. reda
$\chi^{(3)}$	Nelinearna osjetljivost III. reda
ϵ_0	Dielektrična konstanta
ω	Kutna frekvencija, s^{-1}
λ	Valna duljina, nm
k	Faktor razlike frekvencija [1]
K	Kerova konstanta [1]
c	Konstanta kristalne rešetke
q	Konstanta koloidnog kristala
p	Volumen frakcije metalne komponente
α	Faktor lokalnog polja kristalne rešetke
γ	Faktor nelinearnog poboljšanja,
D	Vektor premještaja
ω_p	Kutna frekvencija vala plazme, s^{-1}

LITERATURA

1. Robert W. Boyd, 'Nonlinear Optics', Third edition, Academic Press, SAD, 2008.
2. J. P. Huang, 'Enhanced nonlinear optical responses of materials: Composite effects', Elsevier Physics Reports, SAD, 2006.
3. I. C. Khoo, 'Nonlinear optics of liquid crystalline materials', Elsevier Physics Reports, Department of Electrical Engineering East, Pennsylvania State University, SAD, 2009.
4. F. T. Arecchi, S. Boccaletti, P. L. Ramazza, 'Pattern formation and competition in nonlinear optics', Elsevier Physics Reports 318 1-83, Firenca, Italija, 1999.
5. I. G. Voigt-Martin, 'Electron Crystallography and Non-Linear Optics', Microscopy Reseach and Technique 45:178-201, Institut za fizikalnu kemiju Sveučilišta Mainz, Njemačka, 1999.
7. Elektromagnetski spektar zračenja, slika ([link](#)), pristupljeno: 20.08.2016.
8. RP Photonics Encyclopedia, <https://www.rp-photonics.com/>; pristupljeno: 02.08.2016.
9. S. Vdović, 'Nelinearni efekti interakcije lasera i atomskih para', Disertacija, Sveučilište u Zagrebu, Prirodoslovno-matematički fakultet, Fizički odsjek, Zagreb 2010.

ŽIVOTOPIS

Osobni podaci :

Ime i prezime : Iva Lukić

Adresa : Prilaz baruna Filipovića 7, 10 000 Zagreb

Mobitel : 0981367714

e-mail : ilukic@fkit.hr

datum rođenja: 22.06.1993.

Školovanje :

Naziv škole : " Gimnazija Požega " (2007. – 2011.)

Naziv fakulteta : " Fakultet kemijskog inženjerstva i tehnologije " (2011. – 2016.)
smjer : Kemijsko inženjerstvo