

**UNIVERSITATEA BUCURESTI  
- FACULTATEA DE FIZICA-**

**Neliniaritati optice  
in materiale micro-structurate**

**-Rezumatul tezei de doctorat-**

**Doctorand: Petronela Simona Doia (Gheorghe)**

**Conducator Stiintific:  
Acad. Prof. Ionel Valentin Vlad,  
Presedintele Academiei Romane**

**2016**

## CUPRINS

<b>INTRODUCERE</b>	<b>3</b>
<b>CAPITOLUL 1. Metode optice de caracterizare a proprietatilor neliniare ale materialelor micro-structurate</b>	<b>7</b>
1.1. Optica neliniara	7
1.1.1. Procese optice neliniare	7
1.1.2. Clasificarea fenomenelor in optica neliniara	9
1.1.3. Optica neliniara vs optica liniara. Polarizarea neliniara	10
1.1.4. Mecanisme care determina raspunsul optic neliniar al unui mediu	13
1.1.5. Proprietati de baza ale susceptibilitatii neliniare	14
1.1.6. Ecuatiile undelor cuplate intr-un proces optic neliniar	15
1.1.7. Modificari ale parametrilor fasciculelor intense de lumina la interactia cu un mediu. Modificari ale indicelui de refractie induse de campurile optice intense	17
1.2. Metode de investigare a proprietatilor optice neliniare	22
1.2.1. Mixajul de doua si patru unde laser	22
1.2.2. Metodele Z-scan si I-scan	35
1.2.3. Metoda interferometrica pentru masurarea modulatiei fazei optice in materiale neliniare utilizand extragerea directa a informatiei de faza din imagini cu franje	42
<b>CAPITOLUL 2. Studiul proprietatilor optice neliniare in sticle calcogenide structurate periodic</b>	<b>46</b>
2.1. Sticlele calcogenide de $\text{As}_2\text{S}_3$	46
2.2. Difractia pe retele dinamice induse cu laserul in filme calcogenide de $\text{As}_2\text{S}_3$	48
2.2.1. Montajul experimental	49
2.2.2. Rezultate experimentale	51
<b>CAPITOLUL 3. Studiul proprietatilor optice neliniare in cristale lichide</b>	<b>58</b>
3.1. Cristale lichide dopate cu coloranti: preparare si caracterizare	59
3.2. Difractia pe retele dinamice induse cu laserul in cristale lichide	61
3.2.1. Rezultate experimentale	63
3.3. Masuratori de difractie versus masuratori prin metoda I-Scan	68
<b>CAPITOLUL 4. Studiul proprietatilor optice neliniare ale unor structuri supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti</b>	<b>70</b>
4.1. Structuri supramoleculare de ADN functionalizat	70
4.2. Studiul neliniaritatilor optice ale filmelor pe baza de ADN-CTMA functionalizat cu coloranti prin mixaj de doua si patru unde	73
4.3. Realizarea si testarea functionalitatii unui modulator de lumina spatial complet optic (AOSLM) folosind celule si filme pe baza de ADN functionalizat	83
4.3.1. Descrierea programului de extragere directa a fazei optice	86
4.3.2. Rezultate obtinute in studiul modulatiei spatiale induse cu laserul in complexul ADN-CTMA-colorant	88
<b>CONCLUZII</b>	<b>104</b>
<b>REFERINTE BIBLIOGRAFICE</b>	<b>106</b>
<b>LISTA DE LUCRARI STIINTIFICE</b>	<b>116</b>

## INTRODUCERE

In aceasta teza am prezentat un studiu privind modelarea teoretica si investigarea experimentală a raspunsului optic neliniar al unor materiale si micro-structuri importante pentru fotonica, contribuind la dezvoltarea si imbunatatirea unor metode utilizate pentru caracterizarea neliniaritatilor optice. Rezultatele obtinute sunt utile atat pentru o mai buna intelegera a interactiei lumina – mediu optic neliniar, cat si pentru aplicatii in fotonica neliniara. Rezultatele prezентate in aceasta teza au fost obtinute in cadrul grupului de “Optica Neliniara si Informationala” din Sectia Laseri a Institutului National pentru Fizica Laserilor, Plasmei si Radiatiei. O parte din materialele studiate au fost obtinute in urma unor colaborari cu doua institutii importante de cercetare in domeniul materialelor: Institutul National de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizica Materialelor, Bucuresti - Magurele si Facultatea de Chimie Aplicata si Stiinta Materialelor din cadrul Universitatii “Politehnica” Bucuresti.

In prezent, optica neliniara constituie un domeniu al fizicii de sine statator, cu subdomenii bine precizate, atat in cercetarea fundamentala cat si in cea aplicativa, ea studiind comportarea luminii in medii optice neliniare, in care polarizarea dielectrica depinde neliniar de campul electric al luminii. Principalele domenii de cercetare ale opticii neliniare (domenii care se intrepratrund) sunt: obtinerea de radiatii coerente cu alte frecvențe decat cele furnizate de laseri, prin generarea de armonici optice, mixaj de mai multe unde, efect Raman stimulat, difuzie stimulata Brillouin, difuzie Rayleigh, efect fotorefractiv, absorbtie multifotonica, fenomene de propagare a fasciculelor optice prin medii neliniare, studiul proprietatilor neliniare ale diferitelor materiale, optica neliniara in campuri intense.

Cercetările prezente in domeniul opticii neliniare urmaresc descoperirea de noi materiale cu structuri optice la nivel micro si nano, ale caror proprietati neliniare sunt mai pronuntate. Fenomenele care apar la interactiunea luminii cu aceste structuri depend esential de caracteristicile optice ale acestora, in particular, cele neliniare, indicele de refractie neliniar ( $n_2$ ) si coeficientul de absorbtie neliniar ( $\alpha_2$ ). Toate aceste efecte sunt dependente de dimensiunile materialului.

Aceasta teza este structurata in patru capitole ce contin aspecte teoretice si rezultate experimentale, capitolul de concluzii si se incheie cu capitolul de referinte bibliografice.

In **primul capitol** am facut o introducere in domeniu, unde am prezentat cateva aspecte teoretice generale ale proceselor optice neliniare care apar la interactiunea dintre un camp intens de radiatie optica coerenta si materie. De asemenea, am facut o scurta descriere teoretica a metodelor optice de caracterizare, utilizate in experimentele noastre, in vederea determinarii parametrilor neliniari ai unor materiale studiate, de interes pentru fotonica.

In **cel de-al doilea capitol** “Studiul proprietatilor optice neliniare in sticle calcogenide structurate periodic”, am realizat un studiu experimental de difractie pe retele complexe induse cu laserul in filme amorfe subtiri de  $As_2S_3$ , materiale optice neliniare importante pentru functionalitati fotonice complet optice. Rezultatele acestui studiu indica o variatie puternica a proprietatilor de absorbtie si de refractie ale filmelor subtiri de  $As_2S_3$  si o eficienta mare a retelor de faza induse cu laserul. Masuratorile de AFM pe aceste filme subtiri au dus la determinarea modificarii reliefului in retelele induse luminoase. Modelarea si investigarea experimentală a proceselor optice in mixajul de unde laser a fost facuta cu scopul de a studia micro-structurile optice periodice induse de lumina in materialele investigate.

In **cel de-al treilea capitol** “Studiul proprietatilor optice neliniare in cristale lichide”, am studiat materiale fotonice noi, obtinute in cadrul unei colaborari cu grupul domnului Prof. Stefan Frunza din cadrul Laboratorului de “Procese Optice in Materiale Nanostructurate”, din Institutul National de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizica Materialelor. Scopul acestui studiu a fost dezvoltarea de noi materiale nanofotonice bazate pe molecule organice dopate cu diferiti coloranti care faciliteaza tranzitii apropiate de rezonanta, conducand la interactiuni

optice neliniare puternic amplificate si la functionalitati importante in tehnologiile informatiei. In acest studiu, din diversitatea de materiale organice care prezinta potential aplicativ si care pot asigura controlul proceselor fotonice la dimensiuni moleculare, am investigat cristalele lichide dopate cu coloranti. Cristalele lichide au un rol important in fotonica neliniara datorita posibilitatii de optimizare a proprietatilor optice neliniare prin manipularea compozitiei lor. Am efectuat experimente de mixaj de doua unde si am studiat si modelat teoretic rezultatele experimentale de difractie pe retele dinamice in cristale lichide dopate cu colorant induse prin interferenta a doua fascicule laser.

Comparand rezultatele obtinute prin masuratori de difractie cu masuratori facute prin metoda I-scan am observat ca indicele de refractie neliniar al celulelor cu cristale lichide dopate cu colorant (DY7) este cu doua ordine de marime mai mic cand acesta este masurat prin tehnica I-Scan, datorita scalei de timp si intensitatilor diferite utilizate in cele doua tipuri de experimente.

In **capitolul patru** "Studiul proprietatilor optice neliniare ale unor structuri supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti", am determinat proprietatile optice liniare si neliniare ale unor stucturi supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti prin experimente de mixaj de doua si patru unde. Materialele investigate in acest capitol sunt obtinute in cadrul unei colaborari cu grupul de cercetare condus de Prof. Dr. Ileana Rau din cadrul Facultatii de Chimie Aplicata si Stiinta Materialelor, Universitatea "Politehnica" Bucuresti.

Din experimentele de mixaj de doua si patru unde in filme de ADN functionalizat cu coloranti, utilizand montaje experimentale special concepute si dezvoltate in laboratorul nostru, am indus luminos retele subtiri de faza in filme de ADN-CTMA dopate cu coloranti, folosind un laser cu Ar si un laser He-Ne de „citire”. Din mixajul de doua unde in regim Raman-Nath am evaluat timpii de raspuns ai proceselor ce contribuie la raspunsul neliniar total al materialelor investigate si marimea acestuia (modulatia de faza indusa de lumina) corespunzatoare acestor procese. Mixajul de patru unde a permis determinarea reflectivitatii cu conjugarea fazei, parametru important pentru aplicatii in fotonica.

De asemenea, in acest capitol am prezentat rezultatele obtinute in studiul functionalitatii fotonice de modulator spatial de lumina complet optic in materiale pe baza de ADN functionalizat. In general, intr-un astfel de modulator, un fascicul laser de excitare moduleaza indicele de refractie al materialului neliniar optic pe care il ilumineaza. Distributia de indice de refractie indusa in materialul considerat este echivalenta cu inducerea de catre lumina a unei structuri optice refractive in material. Am demonstrat experimental modularea spatiala a fazei, de catre lumina, in celule si filme pe baza de ADN functionalizat, utilizand o configuratie experimentală si un montaj de laborator special concepute si realizate de noi. Am contribuit la realizarea, testarea si optimizarea unui program de reconstructie spatiala directa a fazei din imaginile cu franje pentru analiza cantitativa a modularii optice a fazei. Am determinat experimental o serie de parametri importanti ce caracterizeaza modularea spatiala complet optica a fazei (amplitudinea de modulatie a fazei si a indicelui de refractie, indicele de refractie neliniar). Toate aceste rezultate sunt importante in aplicatii ale sistemelor de ADN dopat cu coloranti in fotonica neliniara.

Lucrarea se incheie cu capitolul de **Concluzii**, in care am prezentat o sinteza a rezultatelor originale cuprinse in aceasta teza. Rezultatele din aceasta teza au fost publicate in reviste internationale cotate ISI si au fost prezentate la conferinte internationale. Lista lucrarilor stiintifice, elaborate pe parcursul pregatirii mele ca doctorand, si participarile mele la conferintele nationale si internationale din aceasta perioada se gaseste dupa capitolul de concluzii. Toate aceste rezultate sunt obtinute in decursul activitatii mele in cadrul laboratorului de "Optica Neliniara si Informationala", condus de Prof. Valentin I. Vlad, Presedintele Academiei Romane, din Institutul National de Cercetare-Dezvoltare pentru

Fizica Laserilor, Plasmei si Radiatiei. Pe aceasta cale, doresc sa ii adresez deosebite multumiri domnului profesor pentru ca a acceptat sa ma alatur grupului de cercetare pe care il conduce si pentru indrumarea, sustinerea si grija permanenta de care a dat dovada in ceea ce priveste formarea mea profesionala. Ii multumesc pentru numeroasele sfaturi utile de care am beneficiat pe parcursul formarii mele profesionale si in timpul elaborarii acestei teze. De asemenea, ii multumesc pentru sustinerea mea in participarea la scoli si conferinte in domeniu si pentru asigurarea unor colaborari nationale si internationale de prestigiu in care am fost implicata.

Multumesc domnului Dr. Adrian Petris pentru sprijinul si intelegerea acordata, pentru sfaturile si discutiile productive in vederea realizarii obiectivelor acestei lucrari, atat teoretic cat si experimental. Ii multumesc pentru sprijinul acordat in intreaga activitate experimentală desfasurata impreuna in cadrul laboratorului si pentru timpul acordat in vederea elaborarii acestei teze.

Multumesc distinsilor membrii ai Comisiei de doctorat pentru efortul depus, pentru sugestiile si observatiile constructive facute in vederea imbunatatii acestei teze.

Tin sa multumesc pe aceasta cale domnului Prof. Dr. Stefan Frunza si grupului sau din cadrul Institutului National de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizica Materialelor si doamnei Prof. Dr. Ileana Rau si grupului sau de cercetare de la Universitatea Politehnica Bucuresti, pentru buna colaborare.

Ii multumesc colegii mele, Dr. Tatiana Bazaru-Rujoiu pentru buna colaborare, pentru discutiile si sfaturile productive, cat si pentru sprijinul acordat de fiecare data cand i-am solicitat ajutorul. Multumesc colegilor mei, Dr. Ioan Dancu, Dr. Silviu Popescu si Dr. Mircea Udrea pentru colaborarea eficienta, discutiile si solutiile oferite in rezolvarea unor probleme de-a lungul anilor. De asemenea, ii multumesc colegii noastre Mariana Buzatu pentru sprijinul acordat in toata aceasta perioada.

Multumesc, de asemenea, familiei si sotului meu in special pentru intelegerea si sustinerea acordata pe parcursul elaborarii acestei teze. Le multumesc tuturor celor apropiati pentru sustinere si incurajari.

## CAPITOLUL 1

### Metode optice de caracterizare a proprietatilor neliniare ale materialelor micro-structurate

#### 1.1. Optica neliniara

##### 1.1.1. Procese optice neliniare

In prezent, optica neliniara constituie un domeniu al fizicii de sine statator, cu subdomenii bine precizate, atat in cercetarea fundamentala cat si in cea aplicativa. Optica neliniara se ocupa cu studiul fenomenelor care rezulta din interactia unui camp intens de radiatie optica coerenta cu materia. Aceasta interactie optica neliniara poate schimba caracteristicile de propagare si polarizare ale undelor incidente sau poate genera noi unde cu proprietati spatio-temporale diferite, sau cu frecvenete diferite de cele continue in campurile incidente. Acest domeniu al opticii neliniare este foarte bine tratat de mai multi autori in carti de referinta pentru acest domeniu [1-8, 24-26, 35-38, 42-43].

Principalele domenii de cercetare ale opticii neliniare (domenii care se intreprind) sunt: obtinerea de radiatii coerente cu alte frecvenete decat cele furnizate de laseri, prin generarea de armonici optice, mixaj de mai multe unde, efect Raman stimulat, difuzie stimulata Brillouin, difuzie Rayleigh, efect fotorefractiv, absorbtie multifotonica, fenomene de propagare a fasciculelor optice prin medii neliniare, studiul proprietatilor neliniare ale diferitelor materiale, optica neliniara in campuri intense.

Procesele optice neliniare pot fi abordate in doua moduri: folosind teoria semiclasica sau folosind teoria electrodinamica cuantica.

##### 1.1.2. Clasificarea fenomenelor optice neliniare

Fenomenele din optica neliniara sunt foarte variate datorita naturii diferite a sistemelor fizice, lungimii de unda a radiatiei laser ce interactioneaza cu acestea, ordinilor de neliniaritate implicate, numarului diferit de marimi ce intervin in interactiune. Criteriile de clasificare a proceselor optice neliniare care apar in urma interactiilor neliniare cu un camp optic intens depind de:

- ordinul de neliniaritate al susceptibilitatii electrice implicate in procesul neliniar (procese neliniare de ordinul doi, trei sau mai mare);
- daca exista sau nu schimb de energie intre campurile optice incidente si mediul neliniar;
- efectul interactiunii neliniare (generare de noi frecvenete optice sau de schimbare a proprietatilor de propagare ale campurilor incidente in mediul).

Cercetarile actuale in domeniul opticii neliniare urmaresc descoperirea de noi materiale cu proprietati neliniare mai pronuntate, incluzand materialele micro- si nano-structurate. Procesele optice care apar la interactia luminii cu materialele micro-structurate depind esential de caracteristicile optice ale acestor structuri, in particular cele neliniare, indicele de refractie neliniar ( $n_2$ ) si coeficientul de absorbtie neliniar ( $\alpha_2$ ). Optica neliniara aduce informatii pretioase asupra structurilor cu dimensiuni foarte mici, in particular, prin cresterea remarcabila a neliniaritatii optice datorita efectelor cuantice produse de confinare (care duce la modificarea functiilor de unda ale sistemului respectiv si, in consecinta, la modificari majore ale structurii energetice a materialului), dependente de dimensiunea materialului.

Pentru determinarea parametrilor neliniari exista o serie de metode optice. Metodele utilizate in studiile din aceasta teza sunt: metoda de scanare pe axa z (Z-scan), metoda de scanare in intensitate (I-scan), mixajul de doua si patru unde si metoda interferometrica

pentru masurarea modulatiei fazei optice in materiale neliniare utilizand extragerea directa a informatiei de faza din imagini cu franje.

### 1.1.3. Optica liniara vs optica neliniara. Polarizarea neliniara

Optica neliniara se ocupa cu studiul fenomenelor care apar in urma interactiunii unui fascicul intens de radiatie optica coherent cu materia (raspunsul neliniar al unui material la interactiunea cu un fascicul intens de radiatie electromagnetică). In urma acestor interactiuni se pot schimba caracteristicile de propagare si polarizare ale undelor incidente sau se pot genera noi unde cu aceleasi/alte frecvențe. Ca raspuns la campul electric al undei incidente, in mediul prin care se propaga aceasta se induce o polarizare electrica (moment de dipol electric pe unitatea de volum) ca rezultat al deplasarii electronilor si nucleelor. Polarizarea electrica indusa depinde atat de caracteristicile undei incidente cat si de proprietatile mediului [1].

In **optica liniara**, polarizarea  $P(\omega)$  indusa de lumina la propagarea printr-un mediu este direct proportionala cu intensitatea campului electric  $E(\omega)$  al undei incidente, osciland cu aceeasi frecventa [3]:

$$P(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) E(\omega) \quad (1.1)$$

unde  $\epsilon_0$  este permitivitatea vidului, iar  $\chi$  este susceptibilitatea liniara a mediului [4,7]. In acest caz, ecuatii Maxwell duc la un sistem de ecuatii diferențiale liniare. Astfel, nu apare nici un cuplaj intre undele care se propaga prin acel mediu.

In **optica neliniara**, cand intensitatea radiatiei incidente este suficient de mare, raspunsul mediului se schimba, dand nastere la fenomene neliniare. In acest caz, polarizarea  $P(\omega)$  indusa de lumina la propagarea printr-un mediu este reprezentata printr-o serie de termeni care implica puteri de ordinul doi sau mai mari ale intensitatii campului electric [7]:

$$P(\omega) = \epsilon_0 (\chi^{(1)}(\omega) E(\omega) + \chi^{(2)}(\omega) E(\omega) E(\omega) + \chi^{(3)}(\omega) E(\omega) E(\omega) E(\omega) + \dots) \quad (1.2)$$

unde  $\chi^{(1)}$  este susceptibilitatea liniara,  $\chi^{(2)}$  este susceptibilitatea optica neliniara de ordinul 2 si  $\chi^{(3)}$  este susceptibilitatea optica neliniara de ordinul 3. In acest caz, daca introducem valoarea polarizarii in ecuatii Maxwell obtinem un sistem de ecuatii diferențiale neliniare care contine termenii cu puteri de ordin superior ale intensitatii campului electric, care apar datorita diferitelor efecte de mixare de frecvențe optice coerente. Coeficientul de atenuare  $\alpha$ , in cazul in care intensitatea fasciculului optic este suficient de mare, nu mai este o constanta de material ci devine o variabila care depinde de intensitatea incidenta, ceea ce duce la aparitia fenomenului de absorbtie saturabila. Daca apar fenomene de absorbtie de doi, trei sau mai multi fotoni atenuarea unui fascicul intens poate fi descrisa de relatia [7]:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha \cdot I - \beta \cdot I^2 - \gamma \cdot I^3 - \dots \quad (1.3)$$

unde  $\beta, \gamma$  sunt coeficientii de absorbtie de doi, respectiv trei fotoni.

### 1.1.4. Mecanisme fizice implicate in raspunsul optic neliniar al unui mediu

Polarizarea neliniara indusa de un camp de intensitate mare se poate datora multor mecanisme fizice [1]:

- a. *Distorsiunea paturilor electronice* ale atomilor, ionilor, moleculelor.
- b. *Miscarea intramoleculara*

c. Reorientarea

d. Mecanismele induse de unde acustice

Dintre toate aceste mecanisme mentionate mai sus, singurul mecanism prezent in toate procesele optice neliniare este distorsiunea paturilor electronice, celelalte fiind dependente de proprietatile materialului sau de campul optic aplicat.

### 1.1.5. Proprietati de baza ale susceptibilitatii neliniare

O unda monocromatica de frecventa  $\omega$  induce intr-un mediu o polarizare liniara descisa de relatia [1]:

$$\vec{P}^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.4)$$

Din aceasta relatie, in aproximatie de ordinul unu putem spune ca o unda monocromatica cu frecventa  $\omega$  poate induce doar o unda secundara de radiatie cu aceeasi frecventa  $\omega$  (polarizarea este liniar proportionala cu componenta campului de aceeasi frecventa). Astfel, in optica conventionala tinand cont de acesta relatia, se pot explica proprietatile de propagare ale fasciculelor optice de intensitate scaduta cum sunt: reflexia, refractia, difractia, birefringenta, imprastierea, dispersia indicelui de refractie cu frecventa.

Polarizarea neliniara de ordinul doi indusa la incidenta a doua unde monocromatice in mediu este cauza generarii unei noi frecvente optice  $\omega = \omega_1 + \omega_2$  si poate fi scrisa ca [1]:

$$P_i^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (i, j, k = x, y, z) \quad (1.5)$$

Polarizarea neliniara de ordinul trei (cu o noua frecventa  $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ ) poate fi generata de un camp optic intens cu trei componente de frecvente ( $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ ) si poate fi scrisa astfel [1]:

$$P_i^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) \quad (i, j, k, l = x, y, z) \quad (1.6)$$

Din relatiile (1.5) - (1.6) putem spune ca parametrul cheie, care descrie cuplajul neliniar intre mai multe unde incidente cu frecvente diferite si generarea de noi frecvente prin inducerea unei polarizari neliniare, este tensorul susceptibilitatii electrice, de diferite ordine, al mediului.

### 1.1.6. Ecuatiile undelor cuplate intr-un proces optic neliniar

In teoria electromagneticica a luminii, variatia temporala si cea spatiala a campului optic pot fi descrise cu ajutorul ecuatiilor Maxwell [1]:

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{H} &= \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \end{aligned} \quad (1.7)$$

unde  $\vec{E}$  este intensitatea campului electric,  $\vec{H}$  este intensitatea campului magnetic,  $\epsilon_0, \mu_0$  sunt permitivitatea electrica, respectiv permeabilitatea magnetica, ale vidului,  $\vec{P}$  este vectorul polarizare electrica ( $\vec{P} = \epsilon_0 \chi_L \vec{E} + \vec{P}_{NL}$ , unde  $\chi_L$  este susceptibilitatea liniara al carui aspect tensorial a fost ignorat). Polarizarea neliniara  $P_{NL}$  este neglijabila in cazul in care avem un

camp optic slab, ecuatia undei reducandu-se la ecuatia liniara. Pentru a rezolva mai usor ecuatii cuplate neliniare se foloseste, de cele mai multe ori, aproximatia de unda plana cat si cea de variatie lenta a amplitudinii undei.

Ecuatia neliniara a undelor (ecuatia fundamentala pentru  $\vec{E}(\omega, r)$  si  $\vec{P}(\omega, r)$ ) este:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega, r) - \mu_0 \omega^2 \epsilon(\omega) \vec{E}(\omega, r) = \mu_0 \omega^2 \vec{P}(\omega, r) \quad (1.8)$$

unde  $\epsilon(\omega)$  este constanta dielectrica liniara cu frecventa  $\omega$ ; iar  $\epsilon_r(\omega)$  este constanta dielectrica liniara relativă.

Pentru un camp optic slab,  $\vec{P}(\omega, r) \rightarrow 0$ , ecuatia (1.8) devine ecuatia liniara a undelor [1]:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E}(\omega, r) - \mu_0 \omega^2 \epsilon(\omega) \vec{E}(\omega, r) = 0 \quad (1.9)$$

Raspunsul polarizarii mediului la o componenta monocromatica  $\vec{E}(\omega, r)$  a campului aplicat este reprezentat doar de constanta dielectrica  $\epsilon(\omega)$ . Celalte componente ale campului, cu alte frecvente, nu au nici o influenta asupra  $\vec{P}^{(1)}(\omega, r)$  sau  $\vec{E}(\omega, r)$ . Cand avem un camp laser intens, componentelete de ordinul doi si trei ale polarizarii nu mai pot fi neglijate. Ecuatia (1.8) devine o ecuatie diferențiala neliniara, iar termenul  $\vec{P}(\omega, r)$  poate fi asociat cu o sursa de radiatie.

### 1.1.7. Modificari ale parametrilor fasciculelor intense de lumina la interactia cu un mediu. Modificari ale indicelui de refractie induse de campurile optice intense

In general, in urma interactiei unui fascicul laser intens cu materia, datorita fenomenelor din optica neliniara parametru fasciculului laser la propagarea prin acel mediu se modifica. Acest efect este determinat de procesele de polarizare neliniara de ordinul trei, iar marimea modificarii indicelui de refractie este proportionala cu intensitatea fasciculului laser. In unele conditii aceasta modificare poate aparea si in urma unei interactii neliniare de ordinul doi, cand modificarea indicelui de refractie este proportionala cu amplitudinea campului optic incident. Modificarea indicelui de refractie in campuri optice intense este un proces fundamental implicat in cateva efecte optice neliniare importante: auto-focalizare, auto-cuplarea modurilor de oscilatie longitudinale in rezonatorul laser, auto-modulatie de faza, auto-largire a benzii spectrale, conjugare de faza.

In **optica liniara**, relatia care leaga vectorul inductie electrica  $\vec{D}$ , campul electric  $\vec{E}$  si vectorul polarizarii electrice  $\vec{P}$  intr-un mediu dielectric sub actiunea unui camp optic monocromatic cu frecventa  $\omega$ , de intensitate redusa, este urmatoarea [7]:

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \quad (1.10)$$

unde  $\epsilon_0$  este permitivitatea electrica a vidului. In ecuatia (1.10) [7]:

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.11)$$

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\omega) + \epsilon_0 \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) = \epsilon_0 \bar{\epsilon}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.12)$$

unde  $\bar{\chi}^{(1)}(\omega)$  este tensorul susceptibilitatii liniare, iar constanta dielectrica a mediului  $\bar{\epsilon}(\omega)$  este un tensor de ordinul doi si depinde numai de susceptibilitatea liniara. In mediile izotropice acesti tensori devin marimi scalare.

Indicele de refractie este descris de relatia (1.13) pentru mediile optice nemagnetice:

$$n(\omega) = \sqrt{\text{Re}\{\epsilon_r(\omega)\}} = \sqrt{1 + \text{Re}\{\chi^{(1)}(\omega)\}} \quad (1.13)$$

unde  $\text{Re}\{\epsilon_r(\omega)\}$  este partea reala a constantei dielectrice.  $\epsilon_r(\omega)$  este o marime reala pentru interactii nerezonante. In cazul interactiilor rezonante, aceasta marime devine complexa, partea reala reprezentand indicele de refractie liniar, iar partea imaginara reprezentand sectiunea de absorbtie liniara [1, 8].

In **optica neliniara**, contributia polarizarii neliniare la indicele de refractie nu mai poate fi neglijata [1]. Intr-un mediu izotrop in care se propaga o unda monocromatica polarizata liniar in lungul axei  $\vec{x}$ ,  $\vec{E}(\omega) = \vec{u}_x E_0(\omega)$ , polarizarea neliniara este data de relatia [1]:

$$\vec{P}(\omega) = \vec{P}^{(1)}(\omega) + \vec{P}^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \left[ \bar{\chi}^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) + \bar{\bar{\chi}}^{(3)}(\omega, -\omega, \omega) \vec{E}(\omega) \vec{E}^*(\omega) \vec{E}(\omega) \right] \quad (1.14)$$

Expresia generalizata a indicelui de refractie este [1]:

$$n(\omega) = \sqrt{\text{Re}\{\epsilon_r(\omega)\}} \approx n_0(\omega) + \frac{1}{2n_0(\omega)} \text{Re}\{\chi_e^{(3)}\} |E_0(\omega)|^2 = n_0(\omega) + n_{NL} |E_0(\omega)|^2 \quad (1.15)$$

unde  $n_0(\omega)$  este indicele de refractie liniar al mediului, iar  $n_{NL}(\omega) = \frac{1}{2n_0(\omega)} \text{Re}\{\chi_e^{(3)}\}$  este indicele de refractie neliniar al mediului.

Modificarea indicelui de refractie sub actiunea unui camp optic intens datorita efectului neliniar este [1, 7]:

$$\Delta n(\omega) = n(\omega) - n_0(\omega) = n_{NL} |E_0(\omega)|^2 \propto n_{NL} I_0(\omega) \quad (1.16)$$

unde  $I_0(\omega)$  este intensitatea undei incidente.

In Tabelul 1 am prezentat cateva procese fizice care pot modifica indicele de refractie neliniar, impreuna cu valorile tipice ale  $n_2$  si  $\chi^{(3)}$ , cat si timpul de raspuns al procesului.

Mecanismul	$n_2$ ( $\text{cm}^2/\text{W}$ )	$\chi_{1111}^{(3)}$ ( $\text{m}^2/\text{V}^2$ )	Timpul de raspuns (sec)
Polarizarea electrica	$10^{-16}$	$10^{-22}$	$10^{-15}$
Reorientarea moleculelor	$10^{-14}$	$10^{-20}$	$10^{-12}$
Electrostrictia	$10^{-14}$	$10^{-20}$	$10^{-9}$
Absorbtie atomica saturata	$10^{-10}$	$10^{-16}$	$10^{-8}$
Efecte termice	$10^{-6}$	$10^{-12}$	$10^{-3}$

**Tabelul 1.** Valori tipice ale indicelui de refractie si ale susceptibilitatii optice neliniare de ordinul trei

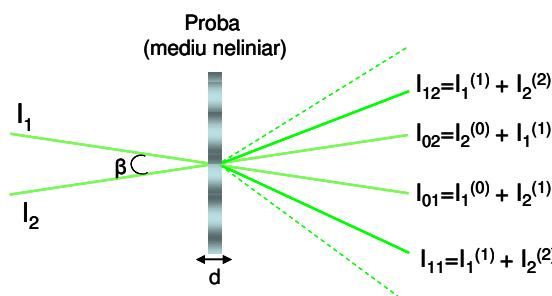
## 1.2. Metode de investigare a proprietatilor optice neliniare

Metodele optice folosite in studiile din aceasta teza pentru determinarea proprietatilor optice neliniare ale materialelor micro- si nano-structurate sunt: mixajul de doua si patru unde, metodele Z-scan si I-scan si metoda interferometrica pentru masurarea modulatiei fazei optice in materiale neliniare utilizand extragerea directa a informatiei de faza din imagini cu franje.

### 1.2.1. Mixaj de doua si patru unde

**Mixajul de doua unde (2WM)** este un proces optic neliniar important pentru optica neliniara, care utilizeaza mediile optice neliniare pentru cuplarea a doua unde electromagnetice, mai exact pentru schimbul de energie dintre cele doua unde care interfera. Cuplarea celor doua unde electromagnetice care interfera in materialul neliniar si transferul de energie intre ele sunt consecinta raspunsului materialului (posibil neloal) la iluminarea cu o distributie periodica de intensitate luminoasa. Cand nu se aplica un camp electric pe material, mecanismul principal de transport al purtatorilor de sarcina este difuzia. In acest caz, intre reteaua de indice de refractie si reteaua de intensitate luminoasa din figura de interferenta poate exista un defazaj. Ca urmare, fasciculele difractat, respectiv transmis, vor interfara constructiv intr-o directie si distructiv in cealalta directie. Rezulta ca unul din fascicule va creste in intensitate pe seama energiei preluate de la celalalt.

Procesul optic neliniar de mixaj de doua unde duce la fenomenul de autodifracție, care este ilustrat in figura 1.1.



**Fig. 1.1. Principiul fenomenului de autodifracție**

In urma fenomenului de autodifracție se pot obtine informatii despre mecanismele implicate in interactiunea dintre lumina si materialele optice neliniare. Plasarea unui material neliniar fotosensibil in regiunea de interferenta a doua fascicule laser coerente de aceeasi frecventa duce la modularea spatiala a proprietatilor optice ale acestuia (indice de refractie, coeficient de absorbtie), in material inscriindu-se o retea de difracție. Aceasta variație periodica a proprietatilor actioneaza ca o retea de difracție pe care se pot difracta chiar fasciculele laser care au indus-o (fenomenul de autodifracție) sau alte fascicule laser de proba (fenomenul de difracție). Modulatia retelei induse poate fi permanenta (retea permanenta) sau tranzitorie (retea dinamica), in functie de procesele fizice implicate in inducerea retelei in materialul investigat. In cazul in care este modulat doar indicele de refractie, se obtin retele de faza, iar daca este modulat doar coeficientul de absorbtie se obtin retele de amplitudine. Daca in urma interferentei luminoase ambii parametrii sunt modificati atunci retelele induse sunt mixte. De asemenea, in functie de contrastul figurii de interferenta luminoasa incidenta pe materialul neliniar, retelele de faza pot sa fie slab sau puternic modulate. Este important si nivelul mediu al iluminarii materialului neliniar, dependent de intensitatea luminoasa medie incidenta. In cazul in care intensitatile celor doua fascicule incidente sunt egale se obtine un contrast unitar al figurii de interferenta, modulatia retelei fiind dependenta de intensitatea acestor fascicule.

Distributia de intensitate in figura de interferenta incidenta este data de:

$$I(x) = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos(2\pi x/\Lambda) = I_0 [1 + m \cos(2\pi x/\Lambda)] \quad (1.17)$$

unde  $I_0 = I_1 + I_2$  este suma intensitatilor celor doua fascicule care interfara,  $\Lambda$  este perioada spatiala a retelei (interfranja), iar  $m = 2\sqrt{p}/(1+p)$  este contrastul franelor de interferenta.

Acesta depinde de raportul  $p$  al intensitatilor celor doua fascicule,  $p=I_1/I_2$ . Contrastul maxim in figura de interferenta se obtine cand  $p = 1$  si, in consecinta,  $m = 1$ .

Atunci cand experimental folosim pentru inscriere fascicule laser cu intensitate scazuta se obtin retele cu modulatie mica a fazei, iar cand folosim fascicule laser mai intense se obtin modulatii mari ale retelelor. Pentru modulatii mici ale fazei, daca inscriem retele cu perioada spatiala  $\Lambda$  mare (cateva linii sau zeci de linii pe mm) in probe subtiri (grosimi submilimetrice) ne situam in cazul regimului de difractie Raman-Nath. Retelele cu perioada spatiala mica (de la sute la mii de linii pe mm) inscrise in probe groase, conduc la regimul de difractie Bragg.

Retelele de faza induse luminos, pe care se difracta fasciculele care le-au inscris (fenomenul de autodifractie) sau alte fascicule (fenomenul de difractie), sunt caracterizate de urmatorii parametrii adimensionali [9, 10, 12-14]:

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi \Delta n d}{\lambda} \quad (1.18)$$

$$Q = \frac{2\pi \lambda d}{n_0 \Lambda^2} \quad (1.19)$$

unde  $\Delta n$  este amplitudinea modulatiei indicelui de refractie  $n_0$  a materialului in care se inscrie reteaua,  $\Lambda$  este perioada spatiala a retelei,  $\lambda$  este lungimea de unda a fasciculului incident (in aer), iar  $d$  este grosimea probei.

Primul parametru adimensional definit prin relatia (1.18),  $\Delta\Phi$  reprezinta modulatia fazei sau defazajul lumini care trece prin materialul investigat, iar cel de-al doilea parametru,  $Q$ , masoara corelarea fazei diferitelor fascicule difractate.

In cazul in care  $Q$  trece de la  $Q \ll 1$  (reteaua subtire) la  $Q \gg 1$  (reteaua groasa) figura de interferenta se modifica. In regimul de difractie Raman-Nath [12-15] ( $Q \leq 0.5$  si  $Q\Delta\Phi \leq 1$ , retele "subtiri"), fasciculele difractate sunt aproape sincrone astfel incat transferul de energie in diferite ordine de difractie este mare. In acest caz apar mai multe ordine de difractie, numarul si intensitatile acestora depinzand de adancimea de modulatie a fazei  $\Delta\Phi$ , pentru o valoare a lui  $Q$ .

In regimul de difractie Bragg [12-15] ( $Q \geq 10$  si  $Q/\Delta\Phi \geq 10$ , retele "groase"), fasciculele de difractie sunt nesincrone, transferul de energie in ordinele de difractie este mic si lumina tinde sa ramana in ordinul zero. La incidenta Bragg, dispare defazajul dintre primul ordin si ordinul zero, rezultand cuplarea efectiva a celor doua fascicule. In cazul difractiei Bragg, fasciculul care citeste reteaua trebuie sa indeplineasca conditia Bragg [13,14]:

$$2\Lambda \cos \alpha = \frac{\lambda_0}{n} \quad (1.20)$$

unde  $\alpha$  este unghiul pe care il face, in material, fasciculul de citire cu vectorul de unda al retelei, iar  $\lambda_0/n$  este lungimea de unda a radiatiei de citire in materialul in care este inscrisa reteaua. In cazul difractiei Bragg, spectrul de difractie este format numai din ordinul zero (unde avem lumina nedifractata) si ordinul 1 (reflexia aparenta pe planele retelei inscrise in materialul neliniar). In cazul autodifractiei, cand cele doua fascicule isi creaza singure reteaua pe care se autodifracta, conditia Bragg este automat satisfacuta si directia ordinului "1" de difractie produs de un fascicul coincide cu directia ordinului "0" de la al doilea fascicul si reciproc.

Luand in considerare cele descrise mai sus si analizand distributia de intensitate luminoasa, putem determina modulatia fazei retelei, apoi indicele de refractie neliniar si susceptibilitatea optica neliniara de ordinul trei.

In cazul regimului de difractie Raman – Nath pot aparea mai multe ordine de difractie si *intensitatea unui ordin de difractie* este data de relatia [3, 9 , 16]:

$$I_l = T \cdot I_{inc} \cdot J_l^2(\Delta\Phi) \quad (1.21)$$

unde  $T$  este transmisia retelei,  $I_{inc}$  este intensitatea fasciculului incident si  $J_l$  este functia Bessel de ordin “ $l$ ” si speta intai ce are ca argument modulatia  $\Delta\Phi$  a fazei. Intensitatea fasciculului nedifractat transmis prin retea (ordinul 0 de difractie) este  $I_0 = TI_{inc}J_0^2(\Delta\Phi)$ , iar a ordinului 1 de difractie este  $I_1 = TI_{inc}J_1^2(\Delta\Phi)$ . Eficienta la difractie a retelei in ordinul 1 este data de raportul dintre intensitatea difractata in ordinul 1 si intensitatea transmisa de proba, in absenta retelei:  $\eta_D = I_1/TI_{inc}$ . Deoarece modulatia fazei este functie de timp, eficienta la difractie este si ea dependenta de timp [3, 9]:

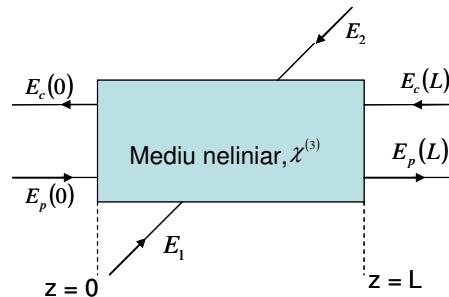
$$\eta_D(t) = J_1^2[\Delta\Phi(t)] \quad (1.22)$$

Astfel, monitorizand dependenta de timp a eficientei la difractie (echivalenta cu intensitatea ordinului 1 normata la valoarea initiala a intensitatii fasciculului nedifractat (ordinul 0)), putem determina dependenta de timp a variatiei fazei,  $\Delta\Phi(t)$ . Cunoscand variatia fazei, se determina coeficientul de refractie neliniar ( $n = n_0 + \Delta n = n_0 + n_2 I$ ), iar apoi susceptibilitatea neliniara de ordinul trei ( $\chi^{(3)}(esu) = 19n_0^2 n_2 (cm^2 / W)$ ).

### **Mixajul de patru unde (4WM). Conjugarea optica a fazei prin mixaj degenerat de patru unde.**

Configuratie de mixaj de patru unde este o extindere a configuratiei de mixaj de doua unde. Unda rezultata din interactiunea neliniara a doua unde de pompaj si a unei unde semnal in mediul neliniar rezulta a fi conjugata in faza undei semnal. Mixajul de patru unde este principala metoda experimentală de obtinere a fronturilor de unda conjugate in faza.

Mixajul de patru unde (Degenerate Four Wave Mixing – DFWM) este ilustrat in figura 1.2.



**Fig. 1.2. Geometria de baza pentru DFWM**

In urma conjugarii optice a fazei (COF) se inverseaza directia de propagare si se schimba semnul factorului de faza pentru fiecare raza dintr-un fascicul de lumina, efect care are loc la interactiunea neliniara dintre un numar de unde luminoase si un mediu neliniar optic. Unda conjugata se propaga pe aceeasi directie, dar in sens opus acestieia. La trecerea undei conjugate inapoi prin mediul prin care a trecut unda semnal, sau printr-un mediu

identic din punct de vedere al distorsiunilor de faza introduse, vor fi corectate toate aberatiile de faza induse la prima trecere, unda semnal initiala fiind reconstruita.

Expresia pentru coeficientul de reflexie cu conjugarea fazei, exprimata in functie de intensitatatile undelor de pompaj (in SI) este:

$$R^* = \omega^2 \left( \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^2 \cdot \frac{L^2}{n_0^4} \cdot [\chi^{(3)}]^2 \cdot I_{1,ef} I_{2,ef} \quad (1.23)$$

unde  $I_{1,ef}$  si  $I_{2,ef}$  sunt intensitatatile efective ale undelor de pompaj in mediul neliniar.

Marimea importanta care se determina in DFWM este reflectivitatea cu conjugarea fazei,  $R^* = I_c(0)/I_s(0)$ . Din relatia (1.23) se poate observa ca dependenta  $R^* = f(I_{1,ef} I_{2,ef})$  este o dreapta, din al carei coeficient unghiular se poate determina susceptibilitatea neliniara  $\chi^{(3)}$  a materialului neliniar utilizat.

### 1.2.2. Metodele Z-scan si I-scan

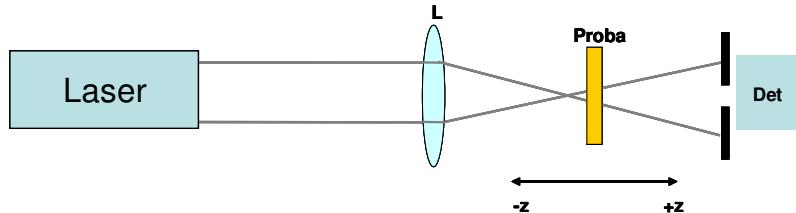
Metoda Z-scan este folosita pentru determinarea parametrilor neliniari, in particular a indicelui de refractie neliniar ( $n_2$ ) si a coeficientului de absorbtie neliniar ( $\alpha_2$ ). Cunoscand acesti parametri se poate determina susceptibilitatea de ordinul trei a materialelor investigate [37-41].

#### Principiul metodei Z-Scan:

Principiul metodei Z-scan (scanare pe axa Z) se bazeaza pe masurarea, in camp indepartat, a efectului de lentila dinamica indusa de un fascicul gaussian focalizat pe proba neliniara cand intensitatea luminii incidente pe aceasta este modificata prin deplasarea probei fata de focalul lentilei de focalizare.

Efectul de lentila de indice de refractie indus de fasciculul incident in proba este monitorizat in timpul deplasarii acesteia, cu ajutorul unui detector ce masoara semnalul, in camp indepartat, printr-o apertura plasata in fata acestuia (metoda Z-scan cu apertura inchisa).

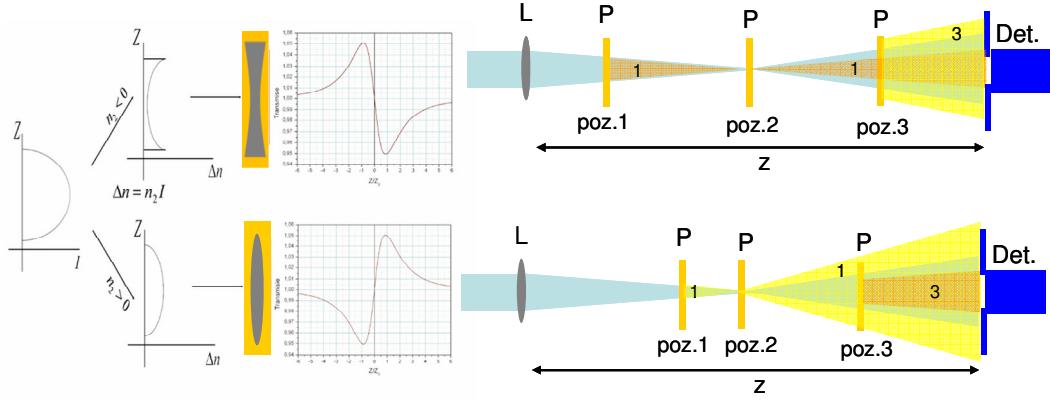
Schema de principiu a metodei Z-scan este prezentata in figura 1.3.



*Fig. 1.3. Schema de principiu a metodei Z-scan*

Lumina incidenta induce in proba optica neliniara o modificare a indicelui de refractie neliniar, care urmareste distributia gaussiana a intensitatii (proba este considerata ca fiind o lentila de indice) si / sau o modificare a coeficientului de absorbtie neliniar. Distanța focala a lentilei induse de lumina depinde de intensitatea fasciculului incident, mai exact, de pozitia probei fata de planul focal al lentilei de focalizare. Un detector (Det. din figura 1.3) monitorizeaza, printr-o apertura, modificarea transmisiei cand proba este translatata de-a lungul directiei de propagare a luminii, de o parte si de alta a focalului. In functie de diametrul aperturii din fata detectoanelor, transmisia sistemului este mai sensibila, fie la partea reala (closed-aperture), fie la cea imaginara (open-aperture) a susceptibilitatii neliniare, adica la indicele de refractie neliniar si respectiv, la absorbtia neliniara. Analizand curba de Z-Scan,

in functie de pozitia probei, putem determina indicele de refractie neliniar (closed-aperture) si coeficientul de absorbtie neliniar (open-aperture). Variatia intensitatii incidente pe proba produce, la translatia ei in jurul focalului, modificari ale frontului de unda (autofocalizarea/autodefocalizarea) datorita neliniaritatii probei. In figura 1.4 am reprezentat schematic modificarile fasciculului gaussian de lumina transmis prin proba neliniara in functie de pozitia acesteia fata de focar (poz. 1-3 din figura 1.4).



**Fig. 1.4.** Variatia intensitatii luminii incidente in functie de pozitia probei

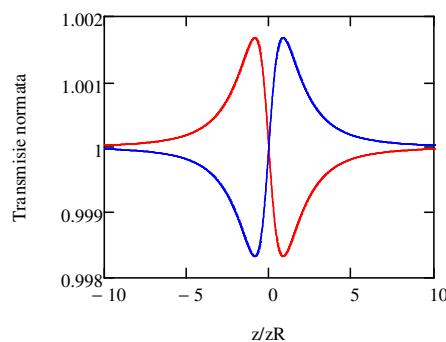
### Metoda Z-Scan prin transmisie (TZ-Scan)

Forma transmisiei (dupa apertura (neglijand absorbtia neliniara)) este data de ecuatia [22]:

$$T(x, \Delta\Phi_0) \cong 1 + \frac{4\Delta\Phi_0 x}{(x^2 + 1)(x^2 + 9)} \quad (1.24)$$

unde:  $x = z / z_R$ ,  $z_R = \frac{k w_0^2}{2}$  este lungimea de difractie a fasciculului (Lungimea Rayleigh a fasciculului),  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  este vectorul de unda,  $\Delta\Phi_0(t) = k\Delta n_0(t)L_{eff}$  este variatia fazei in focar ( $z=0$ ),  $L_{eff} = \frac{(1 - e^{-\alpha L})}{\alpha}$ ,  $L$  este grosimea probei si  $\alpha$  coeficientul de absorbtie liniar.

In figura 1.5 am prezentat curbele teoretice de transmisie, obtinute folosind ecuatia (1.24).



**Fig. 1.5.** Forma generala a curbelor de TZ-Scan cu apertura inchisa, fara absorbtie neliniara, pentru materiale cu  $n_2 < 0$  (albastru) si cu  $n_2 > 0$  (rosu)

In simularile facute, pentru aceasta reprezentare am considerat un material ipotetic cu indice de refractie neliniar pozitiv ( $n_2 = 1 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) si urmatorii parametri: indicele de refractie liniar  $n_0=2.5$ , intensitatea fasciculului de excitare  $I=100 \text{ W/cm}^2$ , lungimea de unda  $\lambda=1030 \text{ nm}$ , grosimea probei  $L=5.4 \mu\text{m}$ , coeficientul de absorbtie liniara  $\alpha=1 \text{ m}^{-1}$ . In cazul in care indicele de refractie neliniar este negativ ( $n_2 = -1 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{W}$ ), curba teoretica are o forma inversa.

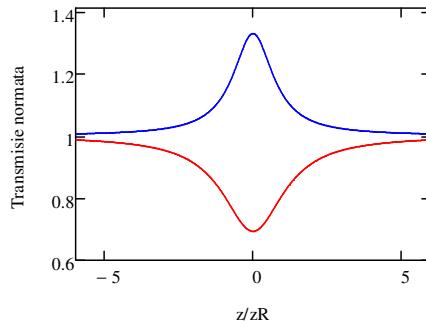
### **Coefficientul de absorbtie nelinier**

In acest caz se tine cont si de efectele absorbtiei nelineare care apar datorita absorbtiei de mai multi fotoni, care duce la atenuarea maximului si la adancirea vaili, in timp ce saturatia produce un efect invers, iar raspunsul la refractia nelineara se datoreaza complet aperturii. In cazul in care apertura este inlaturata din fata detectorului (open-aperture), semnalul detectat contine numai informatia despre absorbtia nelineara a probei. Din acest grafic se poate determina coefficientul de absorbtie nelineara.

Pentru a determina coefficientul de absorbtie nelineara in cazul Z-scan fara apertura, valoarea transmisiei se calculeaza folosind urmatoarea relatie [22]:

$$T_{absorbtie}(z) = \frac{\ln[1 + q_0(z)]}{q_0(z)} \quad (1.25)$$

unde  $q_0(z) = q_{00} \cdot \frac{1}{1 + x^2}$ ;  $q_{00} = \beta \cdot I \cdot L_{eff}$  ; este coefficientul de absorbtie nelineara.



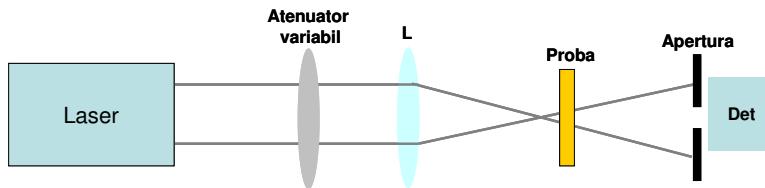
**Fig. 1.6.** Forma generala a curbelor de TZ-Scan fara apertura pentru  $\beta>0$  (rosu) si cu  $\beta<0$  (albastru)

Curba teoretica a functiei (1.25) este reprezentata in figura 1.6. In simularile facute, pentru a determina curbele teoretice, am folosit aceiasi parametri ca si in cazul anterior. In cazul in care  $\beta>0$  si considerand  $\beta I_0 L_{eff} = 1$  se obtine curba rosie, iar pentru  $\beta<0$  si considerand  $\beta I_0 L_{eff} = -0.5$  se obtine curba albastra.

### **Metoda I-Scan**

Metoda I-scan (scanare in intensitate) [25, 27] este o variatie a metodei Z-scan, unde proba nu mai este deplasata de-a lungul fasciculului, in fata si in spatele focalului, ea fiind plasata la aproximativ o lungime Rayleigh dupa planul lentilei de focalizare. Intensitatea luminoasa a fasciculului laser incident pe proba este variata in timpul experimentului prin utilizarea unor atenuatori. In acest caz materialul studiat se comporta ca o lentila (I-scan prin transmisie) sau ca o oglinda absorbanta dependenta de intensitatea incidenta (I-scan prin reflexie [32-34]).

In figura 1.7. am prezentat schema montajului experimental de I-scan.



**Fig. 1.7. Montajul experimental de I-scan prin transmisie**

In unele cazuri este de preferat ca pentru probe structurate sa utilizam tehnica I-scan deoarece prezinta unele avantaje in comparatie cu metoda Z-scan, si anume: proba studiata este iluminata in aceeasi zona in timpul masuratorilor si proba nu mai trece prin focalul lentilei ca si in cazul metodei Z-scan, evitand astfel posibilitatea de deteriorare a probei. Intr-un montaj de I-scan proba este pozitionata in zona unde neliniaritatea probei este mare, in minimul sau maximul semnalului de Z-scan la  $z = -0.85 \cdot z_0$ .

Pentru interpretarea datelor experimentale se poate deduce o relatie simplificata plecand de la formula generala de Z-scan (1.25), in care consideram pozitia probei fixa si intensitatea variabila. In cazul unei neliniaritati de ordinul trei, o astfel de ecuatie poate fi scrisa (in absenta saturatiei,  $I_{sat} \rightarrow \infty$ ) astfel [25, 32, 33]:

$$T_{closed}(z = -0.85z_0, I_{sat} \rightarrow \infty, I) \approx 1 - 0.2k \cdot n_2 \cdot I \quad , \quad (1.26)$$

de unde se poate observa ca transmisia depinde liniar de intensitatea fasciculului incident pe proba. Panta acestei dependente este proportionala cu indicele de refractie neliniar. In acelasi fel poate fi dedusa si o relatie pentru cazul unei neliniaritati saturabile [25, 32, 33]:

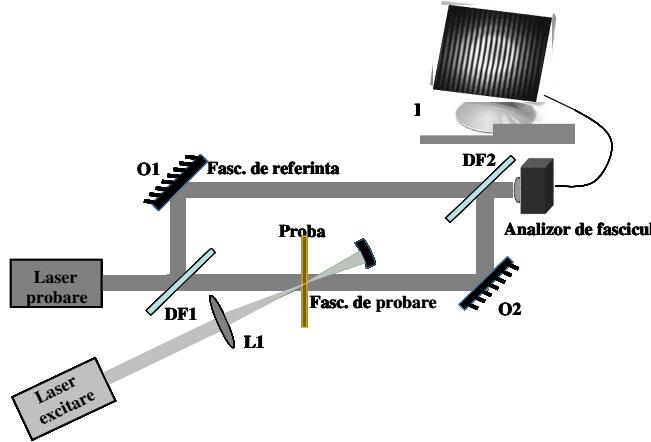
$$T_{closed}(z = -0.85z_0, I) \approx 1 + 0.2k \frac{n_2 I}{1 + I/I_{sat}} \quad (1.27)$$

### 1.2.3. Metoda interferometrica pentru masurarea modulatiei fazei optice in materiale neliniare utilizand extragerea directa a informatiei de faza din imagini cu franje

O alta metoda folosita in studiile din aceasta teza pentru determinarea parametrilor optici neliniari, introdusa de noi, este o metoda interferometrica de tip “excitare – probare”, in care se utilizeaza o metoda de extragere directa a informatiei de faza optica din imagini cu franje (“Direct Spatial Reconstruction of Optical Phase” – DSROP).

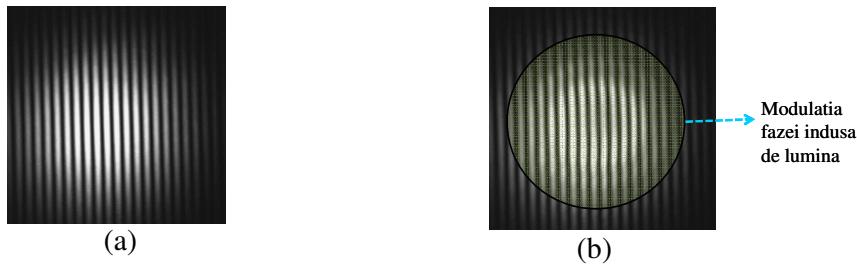
#### Principiul de determinare a indicelui de refractie neliniar prin metoda DSROP

In figura 1.8. am ilustrat schema montajul experimental utilizat pentru determinarea modificarii fazei induse de lumina in materiale neliniare. Montajul experimental se bazeaza pe un interferometru Mach-Zehnder (MZI) si este dezvoltat dupa cel utilizat in [117].



**Fig. 1.8.** Schema montajul experimental utilizat pentru determinarea modificarii fazei induse de lumina in materiale neliniare

Proba investigata este plasata in unul din bratele interferometrului. Ea este excitata local de un fascicul laser de pompaj focalizat cu lentila L1, care induce o modulatie spatiala a indicelui de refractie al acesteia. Fasciculul laser de la laserul de probare este divizat cu ajutorul unui divizor de fascicul (DF1) in doua fascicule: unul de probare (care trece prin proba) si altul de referinta (care se propaga pe celalalt brat al interferometrului). Fasciculul de probare trece prin proba si are o dimensiune transversala mai mare decat a celui de excitare in planul focal (in planul unde este plasata proba). Fasciculul laser de probare interfeera cu cel din bratul de referinta pe matricea fotosensibila a analizorului de fascicul. In figura de interferenta rezultata se gaseste informatia despre diferenta de faza dintre cele doua fascicule. Fasciculul de probare, din bratul in care este proba, se recombină dupa divizorul DF2 cu fasciculul de referinta, din celalalt brat al interferometrului si interfeira cu acesta pe matricea fotosensibila a analizorului. Imaginea cu franje formata in urma interferentei celor doua fascicule este achizitionata de calculator si contine informatia despre modificarile fazei fasciculului de probare la trecerea acestuia prin proba excitata optic de fasciculul de excitare.



**Fig.1.9.** Imagini cu franje obtinute in absenta fasciculului de excitare (a) si in prezența lui (b)

Imaginea achizitionata de calculator (figura 1.9 a) este formata din franje paralele si echidistante in momentul in care fasciculul de excitare este oprit, iar interfranja depinde de unghiul format de cele doua fascicule din interferometru, de probare si referinta. Variatia de faza optica,  $\Delta\Phi(x, y)$ , a fasciculului de probare este liniara si este data de inclinarea („tilt”) dintre cele doua fascicule ce interfereaza  $\Delta\Phi_{tilt}(x, y)$ , conform relatiei:

$$\Delta\Phi(x, y) = \Delta\Phi_{tilt}(x, y) \quad (1.28)$$

In momentul in care fasciculul laser de excitare este pornit, indicele de refractie al probei este modulat spatial in zona excitata optic, iar aceasta duce la modificarea fazei fasciculului de probare. Imaginea cu franje va fi modificata corespunzator acestei modificari a fazei (figura 1.9 b). Variatia de faza optica a fasciculului de probare din interferometru,  $\Delta\Phi(x,y)$ , va fi in acest caz suma dintre  $\Delta\Phi_{tilt}(x,y)$  si modificarea fazei optice indusa prin procese neliniare, dependente de intensitatea fasciculului de excitare,  $\Delta\Phi_{NL}(x,y)$ , conform relatiei:

$$\Delta\Phi(x,y) = \Delta\Phi_{tilt}(x,y) + \Delta\Phi_{NL}(x,y) \quad (1.29)$$

Modificarea fazei fasciculului care „citeste” modificarile induse in proba neliniara este data de urmatoarea relatie:

$$\Delta\Phi_{NL}(x,y) = \frac{2\pi \cdot \Delta n(x,y)}{\lambda} \quad (1.30)$$

In cazul excitarii neliniaritatii optice de ordinul 3, prezenta in toate materialele optice, indiferent de simetria acestora, modulatia spatiala a indicelui de refractie,  $\Delta n(x,y)$ , este proportionala cu distributia spatiala a intensitatii de excitare,  $I(x,y)$ , conform relatiei [26]:

$$\Delta n(x,y) = n_2 I(x,y) \quad (1.31)$$

unde coeficientul de proportionalitate  $n_2$  este indicele de refractie neliniar. Marimea acestuia este dependenta de neliniaritatea probei, iar semnul poate fi pozitiv sau negativ, in functie de natura probei si de lungimea de unda a fasciculului de excitare (mecanismul de neliniaritate). Distributia de indice de refractie indusa in materialul considerat este echivalenta cu inducerea de catre lumina a unor structuri optice refractive in material. Un fascicul de proba care trece prin zona iluminata de fasciculul de excitare va avea faza optica modificata in conformatitate cu modificarea indicelui de refractie indusa de fasciculul de excitare.

Prin prelucrarea unei imagini cu excitare optica se determina modulatia totala a fazei, iar prin prelucrarea uneia fara excitare se determina  $\Delta\Phi_{tilt}(x,y)$ . Scazand  $\Delta\Phi_{tilt}(x,y)$  din modulatia totala a fazei, in prezenta excitarii, se determina  $\Delta\Phi_{NL}(x,y)$ .

## CAPITOLUL 2

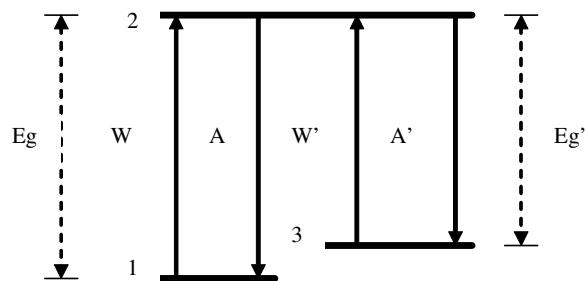
### Studiul proprietatilor optice neliniare in sticle calcogenide structurate periodic

In acest capitol prezentam un studiu experimental de difractie pe retele complexe (retele de amplitudine si retele de faza) induse cu laserul in filme amorse subtiri de trisulfura de arsen ( $As_2S_3$ ), material optic neliniar important pentru functionalitati fotonice complet optice. Pentru a explica modificarile induse de lumina ale coeficientului de absorbtie si indicelui de refractie am folosit un model simplificat al structurii benzii energetice a acestui material. Rezultatele acestui studiu indica o variație puternică a proprietăților de absorbtie si de refractie ale filmelor subtiri de  $As_2S_3$  si o eficiență mare a retelelor de faza induse cu laserul. Masurările de AFM pe aceste filme subtiri au dus la determinarea modulației reliefului in retelele induse luminos.

#### 2.1. Sticle calcogenide de $As_2S_3$

Sticlele calcogenide de  $As_2S_3$  sunt materiale optice neliniare importante, cu multiple aplicatii in fotonica (comutare, limitare, ghidare, stocare, senzori optici in domeniul spectral IR cu aplicatii in biomedicina, mediu, spatiu, etc.), datorita modificarii semnificative a proprietatilor de refractie si / sau absorbtie induse de lumina laser si a transparentei ridicate in IR (0.7-11  $\mu m$ ) [10, 48, 49, 64, 65].

$As_2S_3$  este un compus organic, insolubil in apa care face parte din grupul V/VI, fiind un semiconductor de tip *p* intrinsec care prezinta proprietati de modificare a fazei fotoinduse [50]. In general, toti semiconductoarele amorfi pot suferi schimbari ale proprietatilor lor fizice atunci cand sunt iradiati cu o lungime de unda a carei energie este apropiata sau egala cu banda interzisa a materialului. Interpretarea acestei modificari a coeficientului de absorbtie si a indicelui de refractie ale filmelor de  $As_2S_3$  iluminate cu lumina verde de la un laser Ar poate fi explicata folosind un model simplificat al structurii benzii energetice a  $As_2S_3$  [51]. Complexitatea structurii benzii energetice a  $As_2S_3$  este simplificata in diagrama nivelelor energetice prezentata in figura 2.1.



**Fig. 2.1. Modelul simplificat al structurii benzii energetice a  $As_2S_3$  amorf: nivel 3 – stare de fotointunecare; A, A' – ratele tranzitiei spontane, W, W' – ratele de pompaj**

Se presupune ca toti electronii de valenta se afla initial in starea energetica 1 (stare stationara). Cand filmul de  $As_2S_3$  este iluminat cu lumina verde ( $\lambda = 514.5 nm$ ,  $h\nu = 2.41 eV$ ), electronii de valenta sunt excitati in banda de conductie 2, datorita energiei benzii interzise,  $E_g = 2.39 eV$ , mai mica decat a fotoniilor luminoi de excitare. O parte din electronii excitati se relaxeaza in starea initiala 1, in timp ce altii se relaxeaza in starea de fotointunecare 3. Ratele de pompaj  $1 \rightarrow 2$  si  $3 \rightarrow 2$  sunt  $W$  si, respectiv,  $W'$ , in timp ce ratele tranzitiilor  $2 \rightarrow 1$  si  $2 \rightarrow 3$  sunt  $A$  si, respectiv,  $A'$ . Rata de tranzitie  $3 \rightarrow 1$  este aproape zero la temperatura camerei,

dar tranzitia  $3 \rightarrow 2 \rightarrow 1$  este permisa. Pentru electronii ajunsi in starea de fotointunecare 3, coeficientul de absorbtie si indicele de refractie sunt modificate de reducerea energiei benzii interzise  $E'_g$ .

Acest model conduce la expresii ale dependentelor de timp ale transmisiei (din care se poate determina variația coeficientului de absorbtie) și indicelui de refractie ale materialului iluminat [51].

Coefficientul de absorbtie este [51]:

$$\alpha(t) = N_1(t) \cdot \sigma + N_3(t) \cdot \sigma' = \alpha_0 + (\alpha_\infty - \alpha_0) \cdot \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\alpha_0}{\alpha_\infty} W't\right) \right] \quad (2.1)$$

unde  $N_1(t)$ ,  $\sigma$  și  $N_3(t)$ ,  $\sigma'$  sunt populațiile și secțiunile transversale de absorbtie ale starilor 1 și 3,  $\alpha_0$  și  $\alpha_\infty$  reprezintă valoarea initială și, respectiv, cea de stare stationară ale coeficientului de absorbtie, iar  $W'$  este rata de pompaj între nivelele de fotointunecare și conductie.

Dependenta de timp a transmisiei unui film cu grosimea  $d$  este data de [51]:

$$T(t) = \exp[-\alpha(t)d] = \exp(-\alpha_0 d) \cdot \exp\{-(\alpha_\infty - \alpha_0)d \cdot [1 - \exp(-(\alpha_0/\alpha_\infty)W't)]\} \quad (2.2)$$

O dependenta de timp similară cu cea a coeficientului de absorbtie o are indicele de refractie, ambele depinzand de populația nivelului de fotointunecare [51]:

$$n(t) = n_0 + (n_\infty - n_0) \cdot [1 - \exp(-(\alpha_0/\alpha_\infty)W't)] \quad (2.3)$$

în care  $n_0$  și  $n_\infty$  reprezintă valorile initială și, respectiv, de stare stationară ale indicelui de refractie.

## 2.2. Difractia pe retele dinamice induse cu laserul in filme calcogenide de $\text{As}_2\text{S}_3$

In cazul în care lumina incidentă pe filmele amorfă de  $\text{As}_2\text{S}_3$  are energia fotonilor mai mare sau egală cu banda interzisă a acestui material semiconductor optic neliniar, ea induce modificări ale proprietăților optice de refractie (indice de refractie) și absorbtie (coefficient de absorbtie), precum și ale reliefului, în funcție de profilul spatial de intensitate al fasciculului incident [53, 61, 64]. Investigarea difracției lumii pe retele holografice induse în calcogenide amorfă este importantă pentru o bună înțelegere a diferitelor efecte fotoinduse ce se gasesc în aceste materiale și, de asemenea, pentru aplicatiile lor [65].

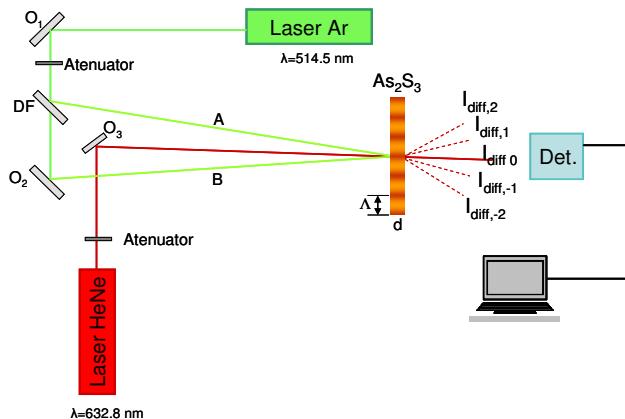
Retelele de difracție au fost induse folosind un laser cu Ar cu lungimea de undă 514.5 nm ( $h\nu = 2.41$  eV). La aceasta lungime de undă incidentă, atât coefficientul de absorbtie cât și indicele de refractie sunt modulați, ceea ce duce la înscrirea unei retele de fază și amplitudine în filmele iradiate. Experimental, am studiat modificarea coefficientului de absorbtie și evoluția sa temporală, indusa de lumina laser. Pentru a putea separa efectele difracției produsa de reteaua de fază și reteaua de amplitudine, am folosit pentru citirea retelelor un fascicul laser cu He-Ne ( $\lambda=632.8$  nm,  $h\nu=1.96$  eV). De asemenea, am investigat dinamica retelei de fază, monitorizând evoluția temporală a intensităților ordinelor de difracție diferite ale undei de citire He-Ne. În regimul Raman-Nath (retele "subtiri"), restricțiile impuse de condiția de difracție Bragg nu sunt prezente, și apar mai multe ordine de difracție în spectrul de difracție al unei de citire. Numărul și intensitatea ordinelor de difracție ale retelei depind de marimea modulației fazei induse de lumina.

Am explicat spectrul de difracție, pentru o modulație scăzută a retelei de fază, folosind predicțiile analitice ale teoriei de difracție Raman-Nath. Pentru modulații înalte ale retelei de fază, rezultatele noastre experimentale prezintă un regim intermediu între Raman-Nath și Bragg, în care aproximarea funcției Bessel a modelului Raman-Nath nu poate da o

predictie exacta a intensitatilor ordinelor de difractie. Studiul nostru indica o variație puternică a proprietăților de refracție și absorbtie ale filmelor de  $\text{As}_2\text{S}_3$  și eficiența înaltă a retelei de fază induse cu laserul.

### 2.2.1. Montajul experimental

Pentru inducerea cu laserul a retelelor în filme amoroze de  $\text{As}_2\text{S}_3$  și caracterizarea acestora prin difracție, am dezvoltat în laboratorul nostru un montaj experimental care schema este prezentată în figura 2.2.



**Fig. 2.2. Montajul experimental utilizat pentru inducerea cu laserul a retelelor în  $\text{As}_2\text{S}_3$  și caracterizarea acestora**

Un fascicul laser cu Ar ( $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ ), polarizat liniar, este divizat cu ajutorul unui divizor de fascicul (DF), în două fascicule cu intensități aproximativ egale. Cele două fascicule se suprapun sub un unghi  $\beta$  în planul în care este proba investigată și, fiind mutual coerente, interferă. Figura de interferență produsă de cele două fascicule, incidentă pe probă, duce la înscriverea unei retele de difracție în filmul de  $\text{As}_2\text{S}_3$ . Pentru investigarea proprietăților refractive ale retelei induse, am folosit un alt fascicul laser cu He-Ne ( $\lambda=632.8 \text{ nm}$ ) care se difractă pe retea. Eficiența de difracție a retelei am monitorizat-o cu ajutorul unui sistem de fotodetectie cuplat la calculator.

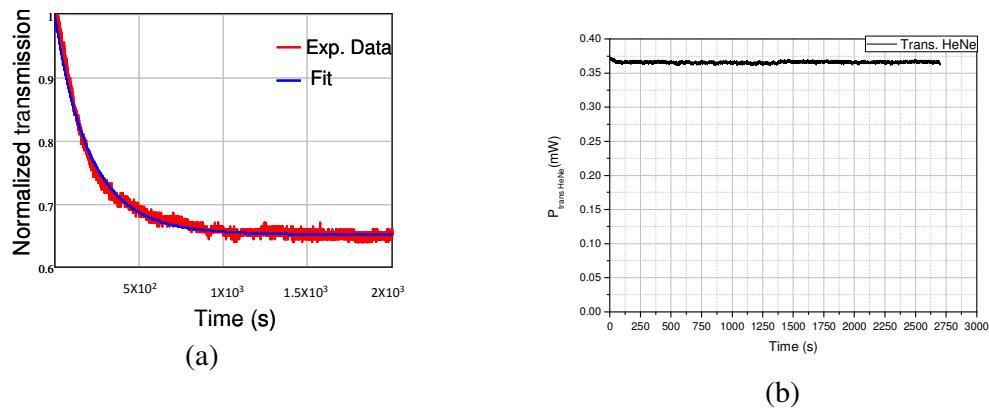
Din analiza dependenței temporale a eficienței de difracție putem determina evoluția temporală a retelei induse luminos și marimea răspunsului materialului investigat la excitarea optică. Iluminarea unui mediu optic neliniar cu o distribuție de lumina periodică spatial poate duce la înscriverea în mediu a unei retele de fază (modularea indicei de refracție și/sau a reliefului) și/sau de amplitudine (modularea coeficientului de absorbtie). Dacă modularea proprietăților optice ale mediului este tranzitorie, disparand după un timp de relaxare, retea este înscrisa dinamică. În caz contrar retea este permanentă. Caracterul dinamic sau permanent depinde de mecanismele fizice implicate, excitate de fasciculul laser care induce reteaua.

### 2.2.2. Rezultate experimentale

În continuare prezentăm rezultatele obținute în inducerea cu Ar a unor retele de difracție complexe în filme subțiri amoroze de  $\text{As}_2\text{S}_3$  și caracterizarea acestora prin difracția unui fascicul de probă de la un alt laser cu He-Ne. Probele folosite în studiile noastre au avut grosimi între 0.5 și 5.5  $\mu\text{m}$  și au fost obținute prin evaporare termică în vid pe substrat de sticlă. Indicele de refracție al filmului de  $\text{As}_2\text{S}_3$  este  $n_0 = 2.42$ .

Cele doua fascicule laser Ar ce interfiera in filmul subtire au avut puterile  $P_A \approx P_B \approx 1\text{mW}$  si puterea fasciculului laser He-Ne de “citire” a fost  $P_{\text{HeNe}}=0.5\text{ mW}$ . Variind unghiul dintre cele doua fascicule am inregistrat retele cu perioada spatiala cuprinsa intre 1 si  $2.5\mu\text{m}$ . Intensitatile celor doua fascicule ce interfiera fiind aproximativ egale, au condus la un contrast al franjelor foarte apropiat de cel maxim posibil ( $m \approx 1$ ).

Pentru a determina care sunt parametrii optici modificati de lumina cu lungimea de unda de  $514.5\text{ nm}$  (fasciculele de inscriere) am efectuat un experiment de monitorizare temporala a transmisiei filmului iradiat cu un fascicul laser Ar, pe un interval de timp aproximativ egal cu cel al experimentelor de inregistrare a retelelor. Dependenta temporala a transmisiei, normata la valoarea initiala a transmisiei, este prezentata in figura 2.3 (a). Din acest grafic rezulta clar ca iluminarea filmului de  $\text{As}_2\text{S}_3$ , la lungimea de unda de  $514.5\text{ nm}$  (energia fotonilor,  $h\nu = 2.41\text{ eV}$ , putin mai mare decat largimea benzii interzise a  $\text{As}_2\text{S}_3$ ,  $E_g = 2.39\text{ eV}$ ), modifica valoarea coeficientului de absorbtie al materialului la aceasta lungime de unda, crescandu-l. Prin urmare, iluminand filmul cu o distributie periodica de lumina, se induce in acesta o modulatie periodica a coeficientului de absorbtie, deci o retea de amplitudine.



**Fig. 2.3.** (a) Dependenta de timp a transmisiei filmului de  $\text{As}_2\text{S}_3$  iluminat cu un fascicul laser Ar (rosu) si fitarea curbei experimentale cu relatia (2.1); (b) Dependenta de timp a transmisiei filmului de  $\text{As}_2\text{S}_3$  iluminat cu un singur fascicul laser Ar, la lungimea de unda a fasciculului laser de proba (He-Ne).

Fitand curba de transmisie normata (figura 2.3(a)) cu relatia (2.2) am determinat valorile  $\alpha_0 = 8\text{ cm}^{-1}$ ,  $\alpha_\infty = 6650\text{ cm}^{-1}$ ,  $W' = 0.35\text{ s}^{-1}$ , unde  $\alpha_0$  si  $\alpha_\infty$  reprezinta valoarea initiala si, respectiv, cea de stare stationara ale coeficientului de absorbtie, iar  $W'$  este rata de pompaj intre nivelele de fotointunecare si de conductie. In urma acestui experiment am observat o crestere extrem de puternica a coeficientului de absorbtie.

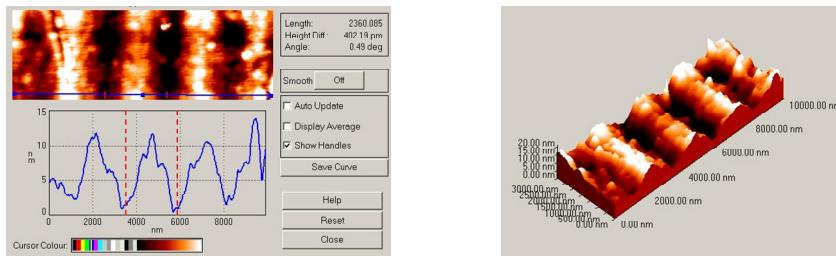
Un alt experiment a fost facut pentru a determina influenta modificarii coeficientului de absorbtie indus de fasciculul laser Ar asupra transmisiei prin film a fasciculului laser de proba (He-Ne). Rezultatele acestui experiment sunt prezentate in figura 2.3(b). Experimentul releva faptul ca transmisia filmului amorf de  $\text{As}_2\text{S}_3$ , la lungimea de unda a fasciculului de proba, de  $632.8\text{ nm}$ , nu s-a modificar in timpul iluminarii filmului cu un fascicul laser cu  $\lambda=514.5\text{ nm}$ . In urma acestor masuratori putem spune ca reteaua de difractie de amplitudine indusa in filmul de  $\text{As}_2\text{S}_3$  nu contribuie la difractia fasciculului de proba al laserului He-Ne, reteaua complexa actionand ca o retea pura de faza. Difractia acestui fascicul (figura 2.3(b)) poate avea loc doar pe componenta de faza a retelei induse in  $\text{As}_2\text{S}_3$ .

In continuare am analizat **difractia pe retelele de faza** induse de lumina in materialul investigat. Regimul de difractie pe retele de faza depinde atat de relatia dintre perioada retelei si grosimea mediului in care este inregistrata, cat si de marimea modulatiei fazei optice. Experimentele de difractie efectuate pe reteaua indusa in filmul de  $\text{As}_2\text{S}_3$  au fost in regimul de difractie Raman-Nath (reteea "subtire" - perioada spatiala a retelei este mai mica decat grosimea probei).

Tinand cont ca variatia fazei luminii ce trece prin reteaua indusa in filmul de  $\text{As}_2\text{S}_3$  poate fi datorata atat unei variatii de indice de refractie, cat si unei modulatii a reliefului, aceasta poate fi scrisa sub forma sumei a doua componente, una de indice de refractie modulat si grosime constanta si una de indice de refractie constant si grosime modulata, corespunzatoare celor doua componente posibile ale retelei de faza, de indice de refractie, respectiv relief:

$$\Delta\Phi_{(n,d)}(t) = (2\pi/\lambda)(d \cdot \Delta n(t) + \Delta d(t) \cdot n) = \Delta\Phi_n(t) + \Delta\Phi_d(t) \quad (2.4)$$

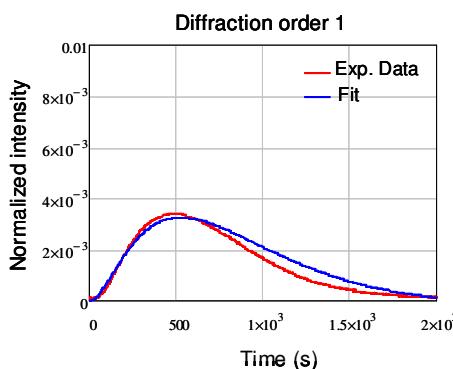
Prin masuratori topografice de AFM s-a confirmat modulatia reliefului filmului in zona retelei, demonstrand astfel existenta unei retele de relief (figura 2.4). Valoarea perioadei spatiale a retelelor inregistrate este  $\Lambda=2.36 \mu\text{m}$ , foarte apropiata cea calculata  $\Lambda=2.35 \mu\text{m}$ . Modulatia reliefului indusa de lumina verde in probele investigate a fost cuprinsa in intervalul 15-30 nm. Rezultate apropriate sunt raportate in literatura de specialitate [48-53, 61].



**Fig. 2.4.** Reteaua de relief indusa in filmul de  $\text{As}_2\text{S}_3$ , masurata prin AFM.

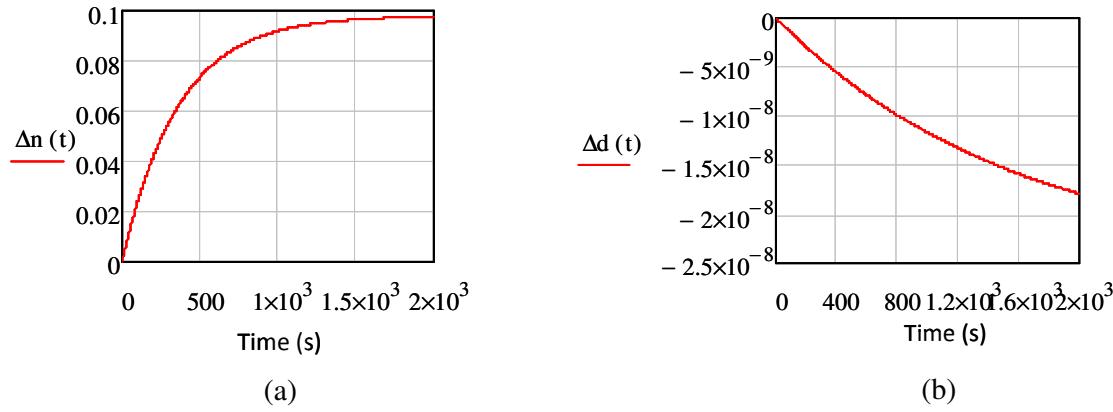
Datorita efectului de fotointunecare indus de lumina verde a laserului cu Ar, coeficientul de absorbtie al filmului de  $\text{As}_2\text{S}_3$  creste puternic in timp, conducand la o reducere in timp a grosimii efective a stratului de  $\text{As}_2\text{S}_3$  in care inscrierea retelei este eficienta.

Evolutia temporala a intensitatii normate a ordinului 1 de difractie, determinata experimental, este prezentata in figura 2.5, impreuna cu fitarea ei cu o functie de modulatie a fazei ce include atat contributia componentei de modulatie a indicelui de refractie, cat si pe cea a componentei de modulatie a reliefului.



**Fig. 2.5.** Evolutia temporala a intensitatii ordinului 1 de difractie

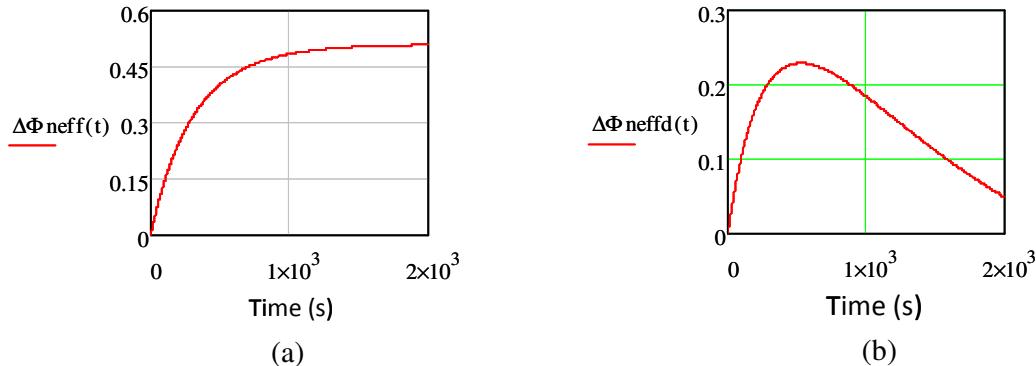
Fitarea datelor experimentale de difractie a permis determinarea valorilor de stare stationara ale modulatiei indicelui de refractie,  $\Delta n \approx 0.098$ , respectiv ale reliefului,  $\Delta d \approx 25$  nm (rezultate care sunt in buna concordanta cu cele obtinute prin masuratori AFM). Tinand cont de parametrii experimentalii si de valorile obtinute in urma fitarii datelor experimentale, in figura 2.6 am prezentat curbele teoretice ale modulatiei indicelui de refractie si respectiv ale reliefului.



**Fig. 2.6.** Evolutia temporala a indicelui de refractie(a) si a reliefului(b)

Din figura 2.6(a) se observa ca indicele de refractie al filmului de  $As_2S_3$  ajunge la stare stationara la sfarsitul perioadei de inregistrare a retelei, in timp ce din figura 2.6(b) se observa ca in acelasi interval de timp modificarea reliefului nu a atins starea stationara.

Dependenta de timp a variatiei de faza datorate doar modificarii indicelui de refractie, este prezentata in figura 2.7(a), iar cea datorata atat modificarii indicelui de refractie cat si formarrii retelei de relief este prezentata in figura 2.7(b), considerand grosimea efectiva a retelei in ambele cazuri.



**Fig. 2.7.** Variatia de faza dependenta de timp, considerand grosimea efectiva a retelei (a) si variatia efectiva a fazei datorata modificarii indicelui de refractie considerand grosimea efectiva (b)

Modelarea dinamicii acestor procese folosite in explicarea rezultatelor experimentale de absorbtie, difractie si in masuratori AFM, ale filmelor de  $As_2S_3$  investigate, care au dus la determinarea modificarii coeficientului de absorbtie, a indicelui de refractie si a reliefului retelei induse, sunt foarte utile in vederea utilizarii acestor materiale in diverse aplicatii in fotonica. Rezultatele obtinute in urma acestor studii au fost prezentate la conferinte intenionale de specialitate si urmeaza sa fie publicate.

## CAPITOLUL 3

### Studiul proprietatilor optice neliniare in cristale lichide

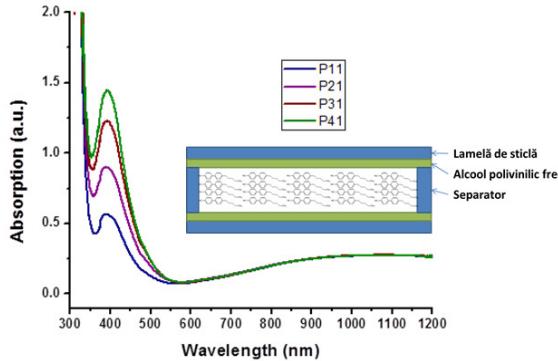
In acest capitol, studiem materiale noi, pentru fotonica, obtinute in cadrul unei colaborari cu grupul domnului Prof. Stefan Frunza din cadrul Laboratorului de “Procese Optice in Materiale Nanostructurate” din Institut National de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizica Materialelor, Bucuresti - Magurele. Scopul acestui studiu a fost dezvoltarea de noi materiale bazate pe molecule organice dopate cu diferiti coloranti care faciliteaza tranzitii apropiate de rezonanta, conducand la interactiuni optice neliniare puternic amplificate si la functionalitati importante in tehnologiile informatiei [87]. Pentru acest studiu, din diversitatea de materiale organice care prezinta potential aplicativ si care pot asigura controlul proceselor fotonice am utilizat cristalele lichide (CL) dopate cu coloranti. Cristalele lichide au un rol important in fotonica neliniara datorita posibilitatii de optimizare a proprietatilor optice neliniare prin manipularea compozitiei lor. Din literatura de specialitate este cunoscut faptul ca aceste materiale au indici de refractie neliniari foarte mari care sunt raspunzatori de diferite mecanisme implicate in raspunsul neliniar al cristalelor lichide [71, 74, 75, 78, 88-91, 93]. Mai mult, s-a constatat ca prin doparea acestora cu diversi coloranti cu proprietati optice neliniare putem sa le modificam raspunsul neliniar, acesta devenind optim la lungimile de unda de interes diferitelor aplicatii, astfel obtinand si valori mari ale indicelui de refractie neliniar la intensitati mici [68-71, 74, 75, 77-78, 82, 88-91, 93]. Procesul de fotoizomerizare a colorantului induce reorientarea moleculelor cristalului lichid, crescand astfel neliniaritatea acestuia [82, 86]. Aceasta neliniaritate este puternic dependenta de proprietatile spatiale, temporale si de polarizarea fascicului laser de excitare.

Dupa o scurta descriere a metodelor de preparare si caracterizare a cristalelor lichide, am prezentat rezultatele experimentale de optica liniara si neliniara obtinute pe aceste materiale. Am efectuat experimente de mixaj de doua unde si am studiat difractia pe retele dinamice in cristale lichide dopate cu colorant induse prin interferenta a doua fascicule laser. Rezultatele obtinute in experimentele de mixaj de unde le-am comparat cu rezultatele obtinute prin metoda I-scan [25, 79, 80, 81, 83].

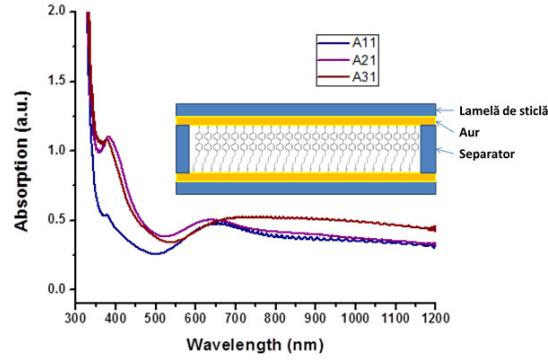
#### 3.1. Cristale lichide dopate cu coloranti: preparare si caracterizare

Cristalul lichid utilizat in experimentele noastre este un cristal lichid nematic monocomponent folosit foarte des, si anume pentilcianobifenil (5CB,  $C_{18}H_{19}N$ ). Pentru sensibilizarea cristalului lichid s-a folosit colorantul azo numit galben dispers 7 (disperse yellow 7- DY7, 4-[4-(fenilazo)fenilazo]o-crezol]).

In figurile 3.1. si 3.2. am prezentat graficele de absorbtie ale probelor investigate de cristal lichid dopat cu diferite concentratii de colorant DY7 si geometriile corespunzatoare celulelor cu CL investigate. Din graficele de absorbtie, se poate observa ca lungimea de unda folosita in experimentele de masurare a neliniaritatilor optice este pozitionata aproape de minimul de absorbtie. Absorbtia crescuta de la  $\lambda \sim 400$  nm este data de colorantul DY7. Se poate observa ca acest maxim de absorbtie creste odata cu cresterea concentratiei de DY7 in solutie.



**Fig. 3.1.** Spectrele de absorbtie ale probelor de cristal lichid dopat cu DY7, orientat perpendicular la axul optic, pentru diferite concentratii de colorant. Inset: geometriile corespunzatoare celulelor cu CL investigate



**Fig. 3.2.** Spectrele de absorbtie ale probelor de cristal lichid dopat cu DY7, orientat paralel la axul optic, pentru diferite concentratii de colorant. Inset: geometriile corespunzatoare celulelor cu CL investigate

### 3.2. Difractia pe retele dinamice induse cu laserul in cristale lichide

Difractia pe retele dinamice induse prin interferenta a doua fascicule laser este o metoda larg folosita pentru analiza proceselor induse de lumina intr-un mediu optic neliniar studiat, permitand determinarea marimii neliniaritatii optice si evolutia temporală a acesteia. Doua fascicule laser coerente (cu o distributie periodica) interfeira in mediul neliniar si moduleaza periodic proprietatile optice ale acestuia, inducand o retea de difractie. Pe aceasta retea se pot difracta insesi fasciculele laser care au generat-o prin interferenta (fenomen numit auto-difractie) sau alte fascicule de proba (fenomen numit difractie). Daca iluminarea modifica indicele de refractie al mediului excitat, reteaua indusa in acel material este o retea de indice de refractie.

Intensitatile ordinelor de difractie de ordin  $n$  sunt calculate analitic folosind urmatoarea formula [9]:

$$I_l = T \cdot I_{inc} \cdot J_l^2(\Delta\Phi) \quad (3.1)$$

unde  $T$  este transmisia retelelor,  $I_{inc}$  este intensitatea fasciculului incident si  $J_l$  este functia Bessel de speta intai si ordin " $l$ ". Pentru modulatii de faza mici, eficienta de difractie a primului ordin este [9]:

$$\eta_1 = \frac{I_1}{I_0} \approx \frac{\Delta\Phi^2}{4} \quad (3.2)$$

Din relatia 3.2 se poate determina indicele de refractie neliniar,  $n_2$  [26]:

$$n_2 = \frac{\lambda \sqrt{\eta_1}}{\pi d I_p} \quad (3.3)$$

unde  $I_p$  este intensitatea care corespunde maximului din figura de interferenta.

#### 3.2.1. Rezultate experimentale

Pentru studiul proprietatilor optice neliniare ale celulelor cu cristale lichide dopate cu colorant prin metoda retelelor dinamice induse cu laserul am realizat un montaj experimental similar cu cel prezentat in capitolul anterior. In experimentele din acest capitol, unghiul dintre

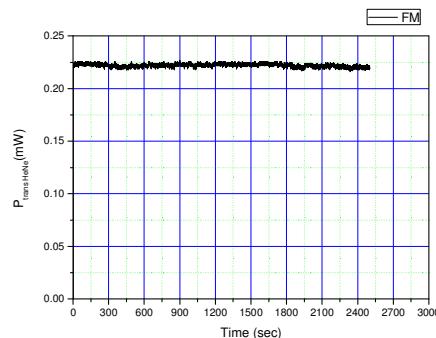
cele doua fascicule de inregistrare a fost mai mic decat in cazul anterior, pentru a satisface conditiile Raman-Nath pentru celulele cu cristal lichid investigate ( $15 \mu\text{m}$  grosime), mai groase decat filmele calcogenide investigate.

Celulele cu cristale lichide dopate cu colorant investigate sunt plasate la intersectia a doua unde laser Ar continue ( $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ ), cu puteri egale care interfiera la un unghi  $\beta = 0.012 \text{ rad}$  (in aer), care corespunde unei retele cu perioada  $\Lambda = 43 \mu\text{m}$ . Pentru a determina modificarile indicelui de refractie am folosit un fascicul laser de proba ( $\lambda=632.8 \text{ nm}$ ) care se difracta pe reteaua indusa in mediul neliniar. Intensitatea fasciculelor de inregistrare a fost de  $0.041 \text{ W/cm}^2$  si intensitatea fasciculului de citire a fost de  $0.051 \text{ W/cm}^2$ . Potrivit conditiilor noastre experimentale retelele inregistrate in celule cu cristale lichide dopate cu colorant sunt in regimul Raman-Nath, unde  $Q$  a fost mult mai mic decat unitatea ( $Q=0.0015$ ) si  $\Delta\Phi = 0.18$  (se observa mai multe ordine de difractie), iar eficienta la difractie este data in termenii functiilor Bessel. Am studiat evolutia temporala a retelelor induse in probe, monitorizand simultan ordinele 0, 1 si 2 de difractie ale unui fascicul laser He-Ne ( $\lambda=632.8 \text{ nm}$ ) care "citeste" reteaua indusa luminos in mediul neliniar.

In studiile noastre experimentale am folosit probe de cristale lichide dopate cu coloranti (DY 7) cu concentratii diferite (0.25%, 0.5%, 0.75%, 1%). Grosimea celulelor a fost de  $15 \mu\text{m}$  si moleculele de cristal lichid au fost orientate perpendicular la axul optic. Polarizarea fasciculelor laser Ar si He-Ne a fost paralela cu orientarea moleculelor de cristal lichid.

O selectie a rezultatelor obtinute in aceste studii este prezentata mai jos. Pentru a evalua tipul de retea indusa de iluminarea cu fasciculele laser Ar si citita cu fasciculul He-Ne, am monitorizat evolutia temporala a transmisiei probelor investigate. Am realizat urmatoarele experimente:

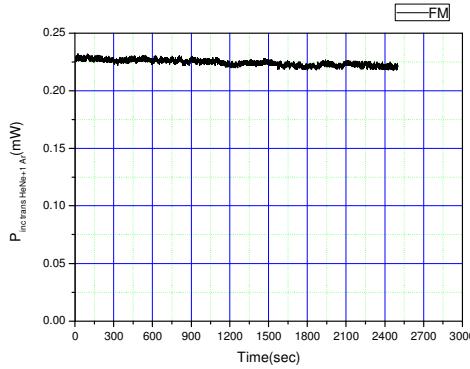
- 1) Monitorizarea evolutiei temporale a transmisiei fasciculului de proba He-Ne ( $\lambda=632.8 \text{ nm}$ ), in absenta fasciculelor laser Ar, prin probe pentru a determina daca el induce modificarile coeficientului de absorbtie al probelor, fapt ce ar putea afecta reteaua indusa luminos de fasciculele laserului Ar si vicia rezultatele experimentelor de difractie (figura 3.4).



**Fig. 3.3. Dependenta temporala a transmisiei unui fascicul laser He-Ne;**  
 $P_{inc, He-Ne}=0.4 \text{ mW}$ ; e-pol (II n) He-Ne laser

Din figura 3.3 se observa ca fasciculul laser de proba nu induce nici o modificare a coeficientului de absorbtie al cristalului lichid.

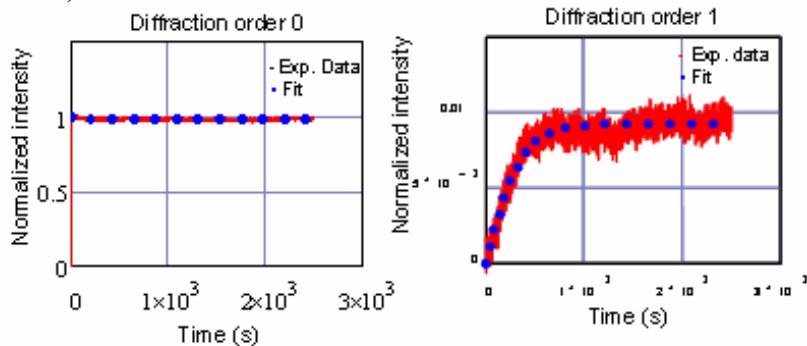
- 2) Monitorizarea evolutiei temporale a transmisiei fasciculului de proba He-Ne, in prezenta unui fascicul laser Ar, prin probe pentru a determina daca posibilele modificarile coeficientului de absorbtie induse in probe de fasciculul Ar se resfrang asupra transmisiei fasciculului He-Ne (figura 3.4).



**Fig. 3.4.** Dependenta temporala a transmisiei unui fascicul laser He-Ne in prezenta unui fascicul laser Ar ( $P_{inc, He-Ne}=0.4$  mW;  $P_{inc, Ar}=1$  mW; e-pol (II n) He-Ne laser si Ar laser)

Datele experimentale releva faptul ca transmisia cristalului lichid, la lungimea de unda a fasciculului de proba, de 632.8 nm, nu s-a modificat in timpul iluminarii filmului cu un fascicul laser cu  $\lambda=514.5$  nm. In urma acestor masuratori putem spune ca fasciculul de proba al laserului He-Ne nu vede modificarile induse de lumina laser Ar. Astfel difractia fasciculului de proba are loc pe componenta de faza a retelei induse luminos, reteau inregistrata fiind o retea pura de faza.

3) Evolutia temporala a transmisiei fasciculului de citire He-Ne prin probe, in prezenta iluminarii probelor cu un singur fascicul Ar. In acest caz se determina daca posibilele modificari ale coeficientului de absorbtie induse in probe de fascicul Ar, la  $\lambda=514.5$  nm, se rasfrang asupra transmisiei fasciculului He-Ne, la  $\lambda=632.8$  nm. In figura 3.6 prezentam evolutia temporala a ordinelor de difractie 0 si 1 si fitarea datelor experimentale pentru proba P41(5CB: DY7 1%).



**Fig. 3.6.** Evolutia temporala a ordinelor 0 si 1 de difractie a laserului He-Ne pe retele dinamice induse cu laserul cu Ar in 5CB:DY7 (1%)

Din modelul teoretic, eficiența la difractie în ordinul 1, cand reteaua ajunge în stare staționară, este  $\eta_1 = \frac{I_1}{I_0} \approx 1\%$ , care corespunde la o valoare a indicelui de refracție neliniar de  $n_2 = 8 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{W}$ . În acest caz obținem:  $\Delta n \approx 10^{-3}$ , modulația fazăi  $\Delta\Phi = 0.18$  și  $Q = 0.015$ , iar produsul  $\Delta\Phi \cdot Q = 0.0027$ , astfel condițiile de difractie Raman-Nath sunt indeplinite. O fitare bună a datelor experimentale s-a facut atunci cand am considerat două constante de timp diferite ( $\tau_1, \tau_2$ ), indicând existența a două mecanisme diferite ce concură la

modificarea totala a indicelui de refractie. Evolutia temporala a indicelui de refractie considerand cele doua constante de timp este descrisa de relatiile de mai jos:

$$\Delta n_1(t) = \Delta n_{1,\infty} \exp(1 - t / \tau_1) \quad (3.7)$$

$$\Delta n_2(t) = \Delta n_{2,\infty} \exp(1 - t / \tau_2) \quad (3.8)$$

unde  $\Delta n_{1,\infty} = 4 \times 10^{-4}$  ( $\tau_1 = 1s$ ) si  $\Delta n_{2,\infty} = 1.8 \times 10^{-3}$  ( $\tau_2 = 200s$ ).

### 3.3. Masuratori de difractie versus masuratori prin metoda I-Scan

Neliniaritatile optice ale cristalelor lichide includ efectele termice, efectele de reorientare si efectele de polarizare care au fost intins studiate prin metoda Z-scan de catre multi cercetatori [25, 79, 80, 81, 83]. Studiile acestora au demonstrat ca valorile indicelui de refractie,  $n_2$ , depind puternic de proprietatile spatiale, temporale si de polarizarea fascicului laser de excitare. Pentru a determina modificarea indicelui de refractie nelinier datorita modificarii intensitatii incidente am folosit in studiile noastre metoda I-Scan (descrisa pe larg in capitolul 1 al acestei lucrari).

Comparand rezultatele obtinute prin masuratori de difractie cu cele obtinute prin masuratori de I-scan am observat ca indicele de refractie nelinier al celulelor de cristale lichide dopate cu DY7 1% este cu doua ordine de marime mai mic cand acesta este masurat prin metoda I-Scan.

Parametrii experimentalni (constante de timp specifice ale proceselor de inregistrare si intensitatea incidenta) si rezultatele (valorile indicelui de refractie nelinier) sunt prezentate in Tabelul 1.

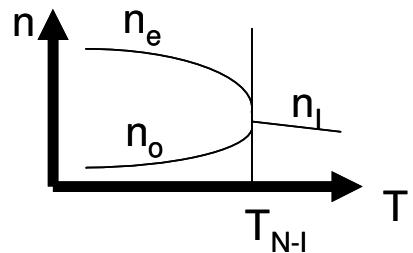
Metoda retelelor dinamice	Tehnica I-Scan
Evolutia temporala a NL ~ 2700 s	Evolutia temporala a NL ~ 1 s
$I \sim 0.15 \text{ W/cm}^2$	$I \sim 0 \div 1000 \text{ W/cm}^2$
$n_2 = 8 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{W}$	$n_2 = 1.35 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{W}$

**Tabelul 1. Masuratori de difractie versus masuratori de I-Scan**

Analizand parametrii experimentalni utilizati in cele doua studii putem spune ca metoda retelelor dinamice ofera mai multe avantaje in comparatie cu metoda I-scan, pentru studiul acestor materiale. In cazul metodei retelelor dinamice, datorita faptului ca cele doua fascicule ce interfere in proba nu sunt focalizate, intensitatea incidenta pe proba ( $I \sim 0.15 \text{ W/cm}^2$ , in experimentele noastre) este mult mai mica comparativ cu cea din experimentele de I-scan care ajunge in experimentele noastre la valoarea de  $1000 \text{ W/cm}^2$ , proba fiind pozitionata in apropierea focalului lentilei de focalizare. Aceste intensitati mari ale fascicului de excitare duc la o incalzire mai puternica a materialului, inducand astfel neliniaritati termice pronuntate. Un alt avantaj al metodei retelelor dinamice este dat de timpul in care se realizeaza experimentul si anume de evolutia temporala a neliniaritatii, care in cazul difractiei a fost de 2700 secunde pe cand in masuratorile de I-scan a fost de aproximativ 1 secunda, timp in care nu se poate dezvolta raspunsul nelinier care apare in urma mecanismelor lente de neliniaritate.

Procesul de absorbtie a luminii duce la incalzirea locala si acest lucru, la randul sau, prin efect termo-optic, conduce la schimbarea indicelui de refractie. In figura 3.7 am ilustrat

dependenta tipica de temperatura a indicilor de refractie ordinari si extraordinari ai unui cristal lichid nematic.



*Fig. 3.7. Dependenta indicelui de refractie de temperatura*

In preajma temperaturii de tranzitie  $T_{N-I}$ , indicele extraordinar are o derivata,  $dn_e/dT$ , negativa si mare, dand astfel nastere la o neliniaritate optica negativa termica mare, in timp ce indicele ordinari  $n_o$  are o derivata pozitiva,  $dn_o/dT$ , dand nastere la o neliniaritate optica pozitiva mare. Iluminarea dispozitivului cu o figura de interferenta produsa prin interferenta a doua unde plane, duce la reorientarea selectiva a cristalului lichid in zona frajelor luminoase. In cazul in care absorbtia este suficient de mare sau cristalul lichid este la o temperatura apropiata de temperatura de tranzitie, marirea neliniaritatii este data de cuplarea mai multor mecanisme (ordonare, efect termic etc) care intervin in interactiunea dintre cristalul lichid si fasciculul de excitare.

Modificarea puternica a indicelui de refractie dependenta de intensitatea fasciculului de excitare este implicata in majoritatea aplicatiilor bazate pe cristale fotonice (stocarea holografica, amplificarea optica, comutarea optica, prelucrarea semnalului).

## CAPITOLUL 4

### Studiul proprietatilor optice neliniare ale unor structuri supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti

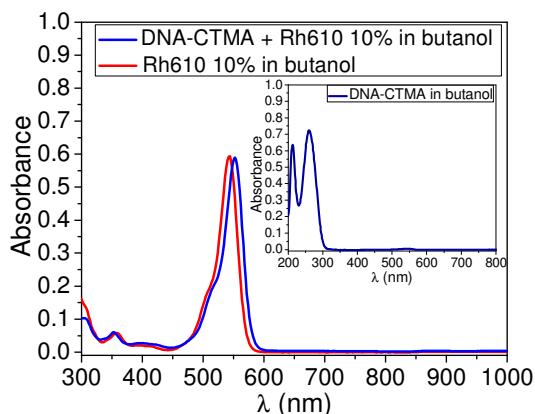
#### 4.1. Structuri supramoleculare de ADN functionalizat

Materialele bio-derivate sunt intens studiate si de mare interes in acest moment datorita proprietatilor fizice atractive si a posibilitatii de producere prin tehnologii moderne ecologice. Uenele dintre acestea sunt materialele pe baza de ADN, materiale ecologice, biodegradabile, care provin din resurse regenerabile (de exemplu deseuri din industria alimentara) avand un potential ridicat de aplicare in fotonica si electronica organica. Materialele bazate pe ADN sunt intens studiate datorita faptului ca proprietatile lor pot fi adaptate in functie de aplicatiile in care sunt utilizate. Lanturile de ADN, pot interactiona in diferite moduri cu moleculele (interactiuni fara legare si intercalari), lucru ce duce la modificarea proprietatilor moleculelor. Datorita acestor proprietati ale ADN-ului, el poate sa inlocuiasca polimeri sintetici si sa imbunatareasca proprietatile liniare si neliniare ale materialului in care este inglobat prin structura sa elicoidală specială.

Toate probele folosite in studiile noastre sunt materiale noi obtinute in cadrul unei colaborari cu grupul doamnei Prof. Ileana Rau, de la Facultatea de Chimie Aplicata si Stiinta Materialelor din Universitatea "Politehnica" Bucuresti.

In experimentele noastre am folosit probe (solutii si filme) de ADN-CTMA (clorură de cetiltrimetilamoniu) functionalizate cu cromofori de Rhodamina 610 (Rh610), Disperse Red 1 (DR1) si Disperse Orange 3 (DO3) (concentratie 5, 7.5 si 10%), dizolvate in butanol. Pentru comparatie, am investigat probe pe baza de polimer sintetic PMMA (polimetil metacrilat) dopat cu acelasi coloranti, dizolvate in tricloretan.

Spectrele de absorbtie, in domeniul vizibil, pentru urmatoarele probele de ADN-CTMA-Rh610, ADN-CTMA si Rh610, dizolvate in butanol, sunt prezentate in figura 4.1, de unde se pot observa maximele de absorbtie pentru acestea.



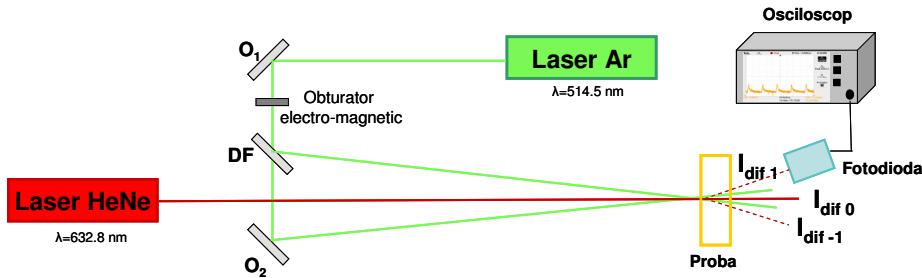
**Fig. 4.1.** Spectrele de absorbtie al probelor de ADN-CTMA-Rh610, ADN-CTMA si Rh610

#### 4.2. Studiul neliniaritatilor optice ale filmelor pe baza de ADN-CTMA functionalizat cu coloranti prin mixaj de doua si patru unde

Filmele de ADN-CTMA dopate cu coloranti au fost investigate prin masuratori de mixaj de doua si patru unde, experimente din care am determinat o serie de parametri ce caracterizeaza raspunsul optic neliniar al probelor investigate.

Metoda de investigare prin mixajul de doua unde a fost descrisa in capitolul anterior.

Montajul experimental realizat pentru studiul evolutiei temporale a raspunsului optic neliniar al filmelor pe baza de ADN-CTMA functionalizat prin metoda ***mixajului de doua unde*** este prezentat schematic in figura 4.1.

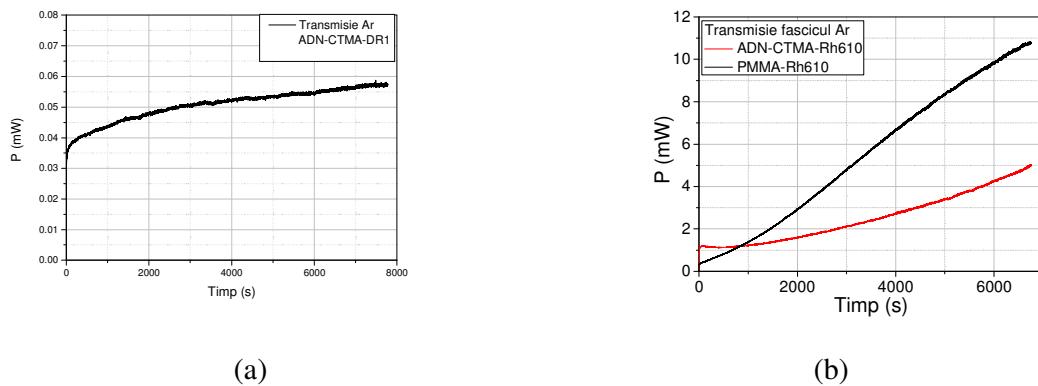


**Fig. 4.1.** Schema montajului experimental de mixaj de doua unde

Doua fascicule laser cu Ar ( $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ ) in unda continua, coerente, cu intensitatii aproximativ egale, interfara sub un unghi mic ( $\beta=0.0143 \text{ rad}$ ) in filmele investigate, inscriind o retea cu perioada  $\Lambda=36 \mu\text{m}$ . Monitorizand cu un sistem de detectie ordinele de difractie 0 si 1 ale unui fascicul laser He-Ne ( $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ ) care “citeste” reteaua indusa luminos in mediul neliniar, determinam evolutia temporală a retelei. Intensitatea fasciculelor de inscriere a fost de  $0.6 \text{ W/cm}^2$ , iar intensitatea fasciculului de citire  $0.05 \text{ W/cm}^2$ . Parametrul  $Q$  are valori mai mici decat 0.05 pentru toate probele investigate, asadar reteaua indusa luminos este in regim Raman-Nath, fapt confirmat si de aparitia mai multor ordine de difractie. Evolutia temporală a ordinului 0 (lumina nedifractata) si a ordinului 1 a fasciculului de citire au fost monitorizate pe parcursul inregistrarii retelei, cu ajutorul unor fotodetectori cuplati la calculator.

Monitorizand evolutia temporală a transmisiei filmelor subtiri, am determinat tipul de retea (mixta, de faza, de amplitudine) indusa de fasciculele laser Ar si citita cu fasciculul He-Ne. Pentru a determina ce influenta au cele doua fascicule laser (cel de inscriere si cel de citire) asupra materialului investigat am efectuat mai multe experimente:

- 1) Am monitorizat evolutia temporală a transmisiei unui fascicul laser Ar prin filmele subtiri pentru a verifica daca iluminarea la  $\lambda=514.5 \text{ nm}$  modifica coeficientul de absorbtie al materialului investigat.



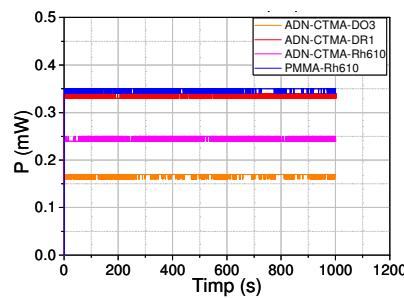
**Fig. 4.2.** Dependenta temporala a transmisiei filmelor de ADN functionalizat la  $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ : (a) ADN-CTMA-DR1, (b) ADN-CTMA-Rh610 (rosu) si PMMA-Rh610 (negru)

In figura 4.2 este prezentata dependenta temporala a transmisiei unui fascicul Ar ( $I = 7.2 \text{ W/cm}^2$ ) folosind probe de ADN-CTMA-DR1 (a), respectiv ADN-CTMA-Rh610 si

PMMA-Rh610 (b). Din aceste grafice se observa ca transmisia filmelor investigate creste in timp, datorita transparentei induse luminos a filmului investigat. Astfel coeficientul de absorbtie ale probelor investigate scade. Aceasta transparenta indusa luminos poate fi atribuita fotodegradarii colorantului. Din experimentele efectuate am observat ca in cazul filmelor de ADN-CTMA-Rh610 aceasta fotodegradare a colorantului Rh610 este mai lenta decat in cazul filmelor de PMMA-Rh610, aspect important pentru aplicatiile in fotonica ale compusului cu ADN.

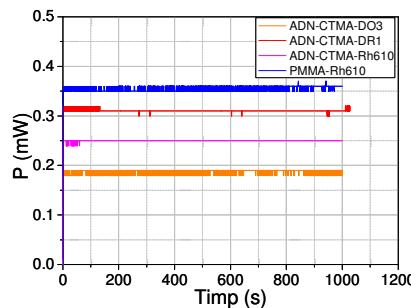
2) In cel de-al doilea experiment, am monitorizat evolutia temporala a fasciculului de "citire" He-Ne ( $\lambda=632.8$  nm) transmis prin probe, pentru a determina daca acesta induce modificari ale coeficientului de absorbtie al probelor, ce ar putea afecta reteaua indusa luminos de cele doua fascicule laser Ar si vicia rezultatele experimentelor de difractie.

Din aceste experimente (figura 4.3) am observat ca pe toata durata iradierii filmelor (1 000 s), transmisia fasciculului He-Ne prin probele investigate nu se modifica in cazul in care este singurul care ilumineaza proba. Prin urmare, coeficientul de absorbtie al probelor investigate nu se modifica la lungimea de unda a fasciculului de citire.



*Fig. 4.3. Dependenta temporala a transmisiei fascicul laser He-Ne prin probele investigate*

3) In cel de-al treilea experiment am monitorizat evolutia temporala a transmisiei fasciculului de citire He-Ne prin probe, in prezenta iluminarii probelor cu un singur fascicul Ar. In acest caz am verificat daca posibilele modificari ale coeficientului de absorbtie induse in probe de fascicul Ar, la  $\lambda=514.5$  nm, afecteaza transmisia fasciculului He-Ne, la  $\lambda=632.8$  nm.



*Fig. 4.4. Dependenta temporala a transmisiei unui fascicul laser He-Ne prin probele investigate, in prezenta unui fascicul laser Ar*

Din analiza rezultatelor experimentale (figura 4.4), am observat ca transmisia fasciculului He-Ne prin probele investigate, cand proba este iluminata simultan cu un fascicul Ar si cu fasciculul He-Ne de citire, nu se modifica. Prin urmare, modificarile absorbtiei, induse de fasciculul Ar nu se rasfrang asupra transmisiei fasciculului He-Ne.

In urma studiilor de absorbtie, putem considera ca pentru fasciculul de "citire" He-Ne retelele induse de fasciculele Ar sunt retele de faza.

Formarea retelelor induse de fasciculele laser Ar in probele investigate a fost studiata experimental monitorizand evolutia temporala a difractiei fasciculului laser He-Ne in ordinele 0 si 1 de difractie. Eficienta la difractie in ordinul 1 a fost fitata cu relatii exponentiale simple ce descriu evolutia variației amplitudinii de modulatie a fazei, de tipul:

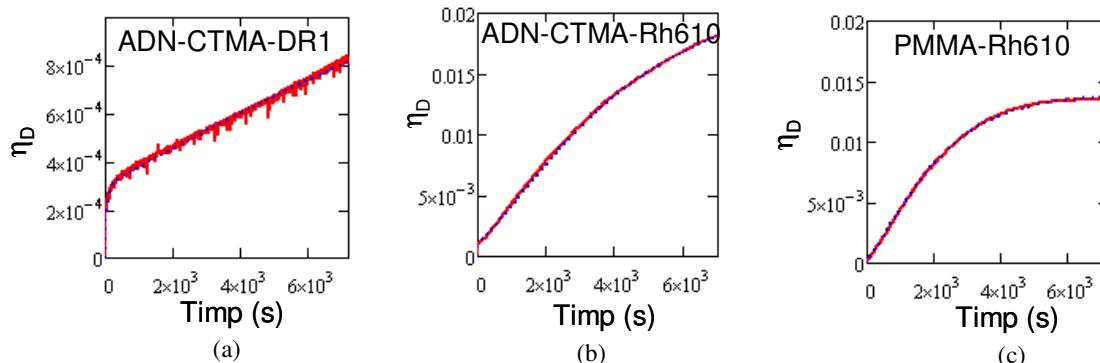
$$\Delta\Phi(t) = \Delta\Phi_f \cdot [1 - \exp(-t/\tau)] \quad (4.1)$$

unde  $\Delta\Phi_f$  reprezinta valoarea de stare stationara a modulatiei fazei,  $\tau$  este constanta de timp a procesului, iar  $t$  este timpul.

O fitare buna a curbelor experimentale a fost obtinuta doar cand s-a considerat suma a trei functii exponentiale, de forma:

$$\Delta\Phi(t) = \sum_{i=1}^3 \Delta\Phi_{fi} \cdot [1 - \exp(-t/\tau_i)] \quad (4.2)$$

cu constante  $\tau$  diferite, ce sugereaza existenta a trei mecanisme de modulatie a fazei. Cand  $t \rightarrow \infty$ ,  $\Delta\Phi(\infty) = \Delta\Phi_{f1} + \Delta\Phi_{f2} + \Delta\Phi_{f3}$ . In figura 4.5 am prezentat evolutia temporala a eficientei la difractie,  $\eta_D$ , in ordinul 1 si fitarea datelor experimentale pentru probele ADN-CTMA-DR1 (a), ADN-CTMA-Rh610 (b), PMMA-Rh610 (c).



**Fig. 4.5.** Evolutia temporala a eficientei la difractie in ordinul 1 a retelelor induse cu laserul in filme de ADN-CTMA si PMMA functionalizate. Rosu: curbe experimentale, albastru: fitari facuti cu relatiile exponentiale considerate.

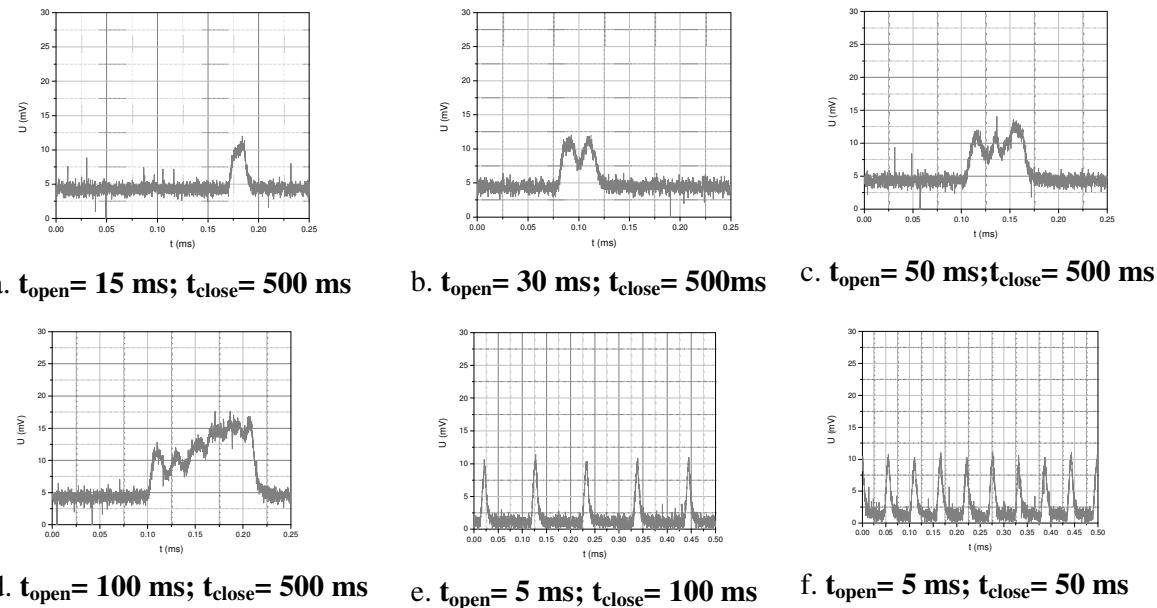
Valorile parametrilor  $\tau$ ,  $\Delta\Phi_f$  si  $\eta_D$  (valoarea finala a eficientei la difractie) determinate pentru probele investigate sunt sintetizate in tabelul de mai jos:

Proba	$\tau_1(s)$	$\Delta\Phi_{f1}$	$\tau_2(s)$	$\Delta\Phi_{f2}$	$\tau_3(s)$	$\Delta\Phi_{f3}$	$\eta_D (\%)$
ADN-CTMA-DR1	0.6	0.024	80	0.011	10000	0.044	0.08
ADN-CTMA-Rh610	0.3	0.063	80	0.005	3150	0.228	1.8
PMMA-Rh610	0.35	0.033	250	0.012	1600	0.194	1.3

Rezultatele prezentate descriu evolutia temporala a formarii retelei datorita unor procese lente (constante de timp de ordinul secunde – mii de secunde). Din aceste rezultate, remarcam faptul ca eficienta la difractie este mai mare in proba de ADN-CTMA-Rh610 decat in cea de PMMA-Rh610, desi in compusul cu ADN nu s-a ajuns inca la starea stationara dupa

cele doua ore de inscriere a retelei. Raspunsul neliniar al materialelor investigate are si contributii mult mai rapide, caracterizate de constante de timp scurte (milisecunde, masurate prin mixaj de doua unde [110, 111, 127]) si ultrascurte (experimente de generare a armonicii a treia, realizate cu pulsuri laser de ns, pentru determinarea susceptibilitatii optice neliniare,  $\chi^{(3)}$  [128]).

In continuare am prezentat rezultatele altor experimente de mixaj de doua unde, obtinute pe filme de ADN-CTMA-DR1 (concentratie DR1 10% si grosimea filmului  $\sim 20 \mu\text{m}$ ) si ADN-CTMA-DO3 (concentratie DO3 10% si grosimea filmului  $\sim 25 \mu\text{m}$ ), pentru a determina viteza limita de raspuns a filmelor la excitatia luminoasa cu fascicule laser in unda continua. Montajul experimental realizat pentru acest studiu este in mare parte asemanator cu cel descris anterior in figura 4.1. Diferentele dintre cele doua montaje experimentale constau in introducerea unui obturator electro-mecanic, pentru controlul precis al declansarii/obturarii fasciculelor de inregistrare (fascicule laser Ar) a retelei si in utilizarea pentru partea de detectie a unei fotocelule cuplate la osciloscop. In experimentele noastre am monitorizat dependenta de timp a eficientei la difractie in timpul inscrierii retelelor de catre fasciculele laser Ar si in timpul relaxarii lor, dupa obturarea fasciculele laser Ar. Perioada retelei inscrise in filmele investigate a fost  $\Lambda=36 \mu\text{m}$ . Intensitatea fiecaruia din cele doua fascicule laser Ar de inscriere a fost de  $0,6 \text{ W/cm}^2$ , iar intensitatea fasciculului laser He-Ne de citire a fost de  $0,05 \text{ W/cm}^2$ . Am masurat puterea transmisa prin filmele investigate, in absenta retelei, si am monitorizat dependenta temporală a puterii difractate in ordinul 1.



**Fig.4.7. Puterea difractata in ordinul 1 de reteaua indusa in filme de ADN-CTMA-DR1 in functie de timp**

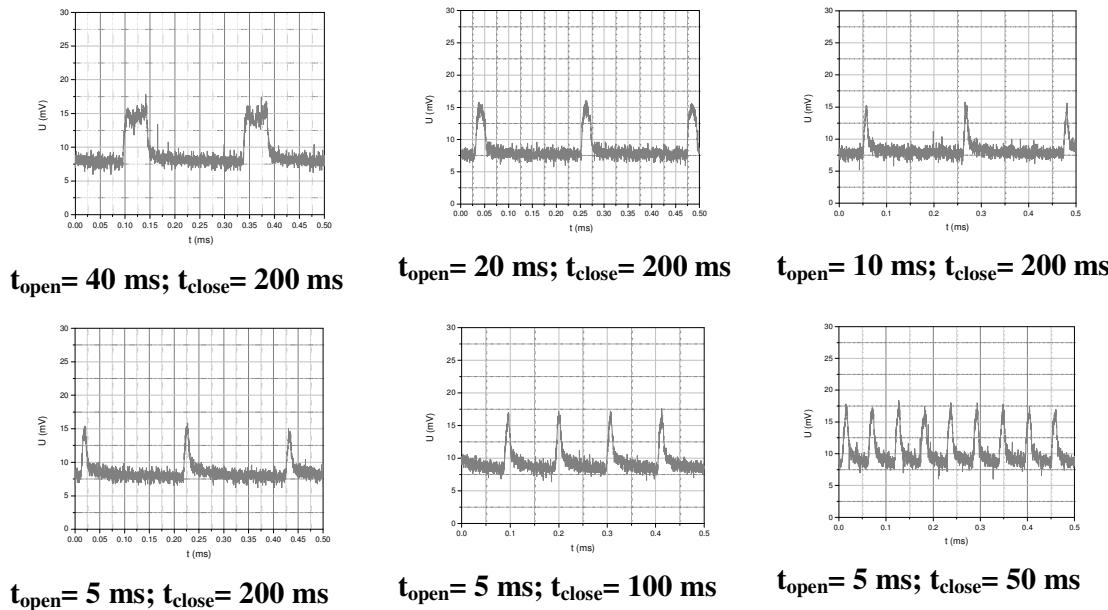
Din graficele prezентate in figura 4.7, se observa ca pentru un timp de inregistrare de 100 ms si un interval de timp de 500 ms de obturare a fasciculelor de inscriere, apar mai multe oscilatii ale ordinului 1 difractat. Acest comportament oscilant este prezent pana la valori de  $\sim 10 \text{ ms}$  ale timpului de inregistrare. Prin reducerea timpului de inregistrare se reduce si numarul de oscilatii, fara a afecta semnificativ puterea ordinului 1. In experimentele urmatoare, am redus timpul intre inregistrari pana la 50 ms pentru a determina timpul minim la care are loc relaxarea completa a retelei. Din toate aceste experimente, efectuate pe filmele

de ADN-CTMA-DR1, se poate observa ca durata minima de inregistrare este de ~ 5 ms, iar cea de relaxare totala este mai mare de 50 ms.

Pentru filmele de ADN-CTMA-DO3, curbele experimentale obtinute in urma masuratorilor de mixaj de doua unde, sunt prezentate in figura 4.8.

Din aceste experimente, efectuate pe filme de ADN-CTMA-DO3, am determinat durata minima de inregistrare care este de ~ 5 ms si cea de relaxare totala, mai mare de 100 ms.

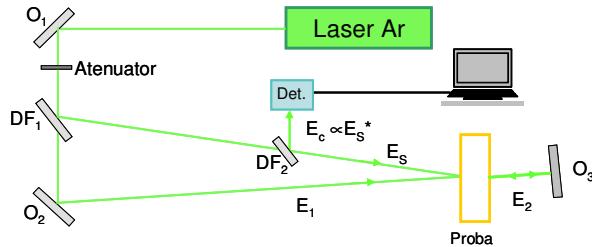
In ambele filme investigate prin metoda mixajului de doua unde, modulatia fazei indusa luminos la sfarsitul duratei minime de inregistrare este de cca. 0.02 rad.



**Fig. 4.8.** Puterea difractata in ordinul 1 de reteaua indusa luminos in filme de ADN-CTMA-DO3 in functie de timp

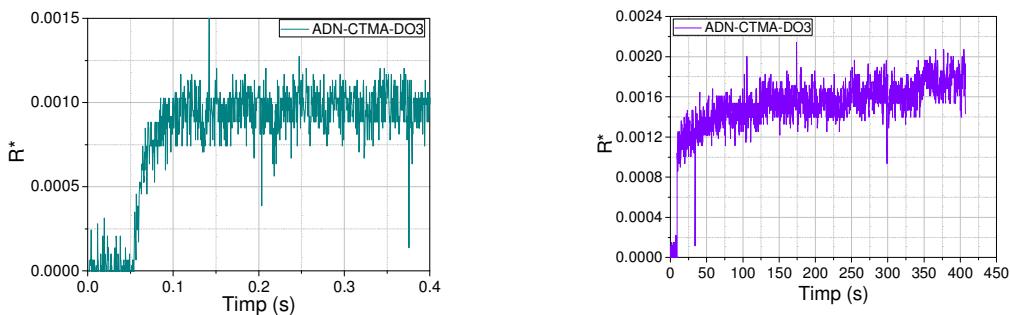
Un alt tip de experiment pe care l-am efectuat, pe filmele de ADN-CTMA functionalizat cu coloranti, este **mixajul de patru unde**. In configuratia de mixaj degenerat de patru unde (DFWM) trei fascicule coerente cu aceeasi lungime de unda (doua fascicule de pompaj,  $E_1$  si  $E_2$ , si un fascicul semnal,  $E_S$ ) interactioneaza intr-un mediu neliniar. In urma acestei interactiuni neliniare este generat al patrulea fascicul ( $E_c$ ), care se propaga pe aceeasi directie, dar in sens invers fata de fasciculul semnal si este conjugat in faza acestuia ( $E_c \propto E_S^*$ ). Prin conjugarea optica a fazei se inverseaza directia de propagare si se schimba semnul factorului de faza pentru fiecare raza dintr-un fascicul de lumina, reflexia cu conjugarea fazei diferind radical fata de reflexia obisnuita. Conjugarea de faza are numeroase aplicatii in fotonica, dintre care mentionam procesarea si amplificarea imaginilor, compensarea distorsiunilor de faza, filtrajul optic, transmiterea imaginilor prin fibre optice, fotolitografie, rezonatori cu oglinzi cu conjugare a fazei, spectroscopie neliniara [113, 116].

Montajul experimental realizat pentru experimentele de mixaj de patru unde este prezentat in figura 4.9. Fasciculul de pompaj  $E_2$  se obtine din fasciculul de pompaj  $E_1$  transmis prin proba si reflectat de oglinda  $O_3$ . Fasciculul semnal  $E_S$  este separat din fasciculul laserului Ar cu divizorul de fascicul  $DF_1$ . Divizorul  $DF_2$  extrage fasciculul conjugat, monitorizat cu un fotodetector conectat la PC.



**Fig. 4.9.** Schema montajului experimental pentru mixajul de patru unde

Rezultatele experimentale obtinute in aceste experimente, pe filme de ADN-CTMA-DO3 sunt prezentate in figura 4.10. Reflectivitatea cu conjugarea fazei,  $R^* = I_c(0)/I_s(0)$  creste rapid (in cca. 0.15 s) pana la o valoare  $R^* = 0.0009$  ( $R = 0.09\%$ ), urmata de o crestere lenta, atingand valoarea  $R^* = 0.0018$  ( $R = 0.18\%$ ) dupa cca. 400 s. Reflectivitatea cu conjugarea fazei reprezinta un parametru important pentru aplicatii in fotonica.



**Fig. 4.10.** Reflectivitatea cu conjugarea fazei pe filme de ADN-CTMA-DO3

#### 4.3. Realizarea si testarea functionalitatii unui modulator de lumina spatial complet optic (AOSLM) folosind celule si filme pe baza de ADN functionalizat

In acest subcapitol am prezentat rezultatele obtinute in analiza raspunsului unui model de modulator spatial de lumina complet optic (AOSLM – "All-Optical Spatial Light Modulator") realizat in laboratorul nostru, in materiale pe baza de ADN-CTMA functionalizat. Studiul functionalitatii fotonice de modulatie spatiala a luminii in materialele investigate are la baza modulatia proprietatilor optice (mai exact a indicelui de refractie) indusa de un fascicul de excitare in proba neliniara. Fasciculul laser de probare, care trece prin modulator, va avea faza optica modulata in conformitate cu distributia de indice de refractie indusa in proba de excitare.

In cazul excitarii neliniaritatii optice de ordinul 3, prezenta in toate materialele optice, indiferent de simetria acestora, modulatia spatiala a indicelui de refractie,  $\Delta n(x,y)$ , este proportionala cu distributia spatiala a intensitatii de excitare,  $I(x,y)$ , conform relatiei [26]:

$$\Delta n(x,y) = n_2 I(x,y) \quad (4.3)$$

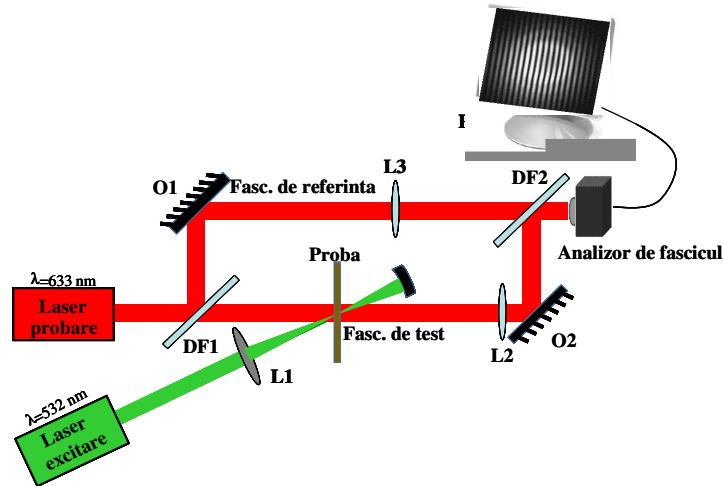
unde coeficientul de proportionalitate  $n_2$  este indicele de refractie neliniar. Marimea acestuia este dependenta de neliniaritatea probei, iar semnul poate fi pozitiv sau negativ, in functie de natura probei si de lungimea de unda a fasciculului de excitare (mecanismul de neliniaritate). Distributia de indice de refractie indusa in materialul considerat este echivalenta cu inducerea de catre lumina a unor structuri optice refractive in material. De exemplu, daca intensitatea

fasciculului de excitare este mai mare in centru decat la periferie (distributie spatiala Gaussiana), lumina va induce in materialul neliniar o lentila convergenta ( $n_2 > 0$ ), respectiv una divergenta ( $n_2 < 0$ ). Un fascicul de proba care trece prin zona iluminata de fasciculul de excitare va avea faza optica modulata in conformitate cu modulatia indicelui de refractie indusa de fasciculul de excitare. Cand proba investigata este solidă (film), in functie de natura colorantului care functionalizeaza moleculele de ADN si de lungimea de unda de excitare, pe langa modificarea indicelui de refractie al probei, se poate modifica si relieful acestora. Modificarea fazei fasciculului care „citeste” modificarile induse in proba neliniara este data de urmatoarea relatie:

$$\Delta\Phi_{NL}(x,y) = \frac{2\pi \cdot \Delta[n(x,y) \cdot d(x,y)]}{\lambda} \quad (4.4)$$

In functie de tipul colorantului, poate aparea un defazaj spatial intre modificarea indicelui de refractie si modificarea reliefului. Modulatia totala a fazei fasciculului de probare este importanta pentru aplicatii care tin cont de raspunsul modulatorului, raspuns care este consecinta unuia sau mai multor mecanisme de raspuns ale materialului neliniar optic la excitarea optica.

In figura 4.11 este ilustrat montajul experimental pe care l-am realizat pentru studiul functionalitatii de modulator optic spatial si pentru investigarea cantitativa a variatiei modulatiei de faza induse in proba de fascicul de excitare. Montajul experimental se bazeaza pe un interferometru Mach-Zehnder (MZI) si este dezvoltat dupa cel utilizat in [117].



**Fig. 4.11.** Schema montajului experimental utilizat pentru determinarea modulatiei fazei induse de lumina in materiale neliniare

Proba situata in unul din bratele interferometrului este excitata local cu un fascicul laser de pompaj. Acest fascicul laser de pompaj este focalizat cu lentila L1 si induce o modulatie spatiala a indicelui de refractie in materialul optic neliniar. Lungimea de unda a laserului de pompaj (unda continua) este  $\lambda=532$  nm, fiind situata in zona de sensibilitate spectrala a materialului pe baza de ADN. Fasciculul de probare, care trece prin proba, are lungimea de unda  $\lambda=633$  nm (laser He-Ne), care nu este in domeniul de sensibilitate al probei, si are o dimensiune transversala mai mare decat a celui de excitare in planul focal (in planul unde este plasat proba). Fasciculul laser He-Ne din bratul de probare interfeira cu cel din bratul de referinta pe matricea fotosensibila a analizorului de fascicul. In figura de

interferenta inregistrata de detector se gaseste informatia despre diferența de fază dintre cele două fascicule ce interfeză. Pentru celalalt brat al interferometrului, folosim un divizor de fascicul (DF1), care împarte fasciculul de probă în două: unul de test (care trece prin probă) și altul de referință (care se propaga pe celalalt brat al interferometrului). Fasciculul de probă de test, din bratul în care este probă, se recombine după divizorul DF2 cu fasciculul de probă de referință, din celalalt brat al interferometrului și interfeză cu acesta pe matricea fotosensibilă a analizorului de fascicul. Imaginea cu franje formată în urma interferenței celor două fascicule este achiziționată de calculator și conține informația despre modificarea fazei fasciculului de probă la trecerea acestuia prin probă excitată optic de fascicul de excitare.

Lentila L2, cu o distanță focală egală cu un sfert din distanța dintre probă și detector, este plasată pe bratul interferometrului, astfel încât ea să formeze o imagine a planului probei pe planul matricii fotosensibile a detectorului, cu o marire egală cu 1. Fără această lentilă, marimea zonei din planul de interferență în care franjele sunt distorsionate de modulația induză optic în probă poate fi diferită de marimea zonei excitate din probă. Semnul modulației fazei acestui fascicul de probă este determinat de variația pozitivă sau negativă a indicei de refracție a probei. Pentru ca cele două fronturi de undă care interfeză pe matricea fotosensibilă a camerei să permită obținerea unor franje rectilinii și paralele în absența excitării luminoase locale în probă, am introdus o alta lentilă L3, cu aceeași distanță focală ca L2, pe celalalt brat al interferometrului. Lentila L3 este plasată la aceeași distanță față de detector ca și L2. Diametrul fasciculului de excitare ( $d_{\text{pump}} = 400 \mu\text{m}$ ) în planul focal, unde este plasată probă investigată, este de ~ 4 ori mai mic decât cel al fasciculului laser de probă. Intensitatea de varf a fasciculului gaussian de excitare a fost variată doar prin modificarea puterii laserului de excitare, fără a modifica focalizarea fasciculului de excitare. Pentru fiecare dintre probe a fost selectat un interval de intensitate plecând de la o valoare minima, la care apare o distorsiune masurabilă a franjelor, până la o valoare maximă, la care distorsiunea este prea mare pentru a mai putea fi determinată corect prin metoda implementată.

#### 4.3.1. Descrierea programului de extragere directă a fazei optice

Programul DSROP ("Direct Spatial Reconstruction of Optical Phase" – DSROP) utilizat de noi implementează o metodă de extragere a informației de fază optică din imaginile cu franje [117] descrise și analizate pe larg de Vlad și Malacara [121]. Metoda, cunoscută în literatură sub numele de "Fourier Transform Method" (FTM), este una de analiză în domeniul frecvențelor spațiale (spectrul Fourier) și a fost descrisă inițial de Takeda et al. [120] și dezvoltată ulterior de Macy et al. [122]. Metoda FTM a fost folosită în foarte multe aplicații în care este necesară extragerea fazei optice [123, 125]. Limitările metodei au fost studiate în detaliu în referință [124]. În continuare este descris pe scurt principiul metodei și ulterior implementarea ei în programul DSROP.

Distribuția de intensitate dintr-o imagine cu franje, care conține informația despre diferența de fază dintre cele două fascicule care o generează, este descrisă de următoarea relație [9]:

$$I(x, y) = I_1(x, y) + I_2(x, y) + 2\sqrt{(I_1(x, y) \cdot I_2(x, y))} \cdot \cos(\Delta\Phi(x, y)), \quad (4.5)$$

unde  $I(x, y)$  este intensitatea în pixelul cu coordonatele  $(x, y)$  al imaginii cu franje,  $I_1(x, y)$  și  $I_2(x, y)$  sunt distribuțiile de intensitate ale celor două fascicule laser care interfeză,  $\Delta\Phi(x, y)$  este modulația totală a fazei, compusă din cea data de unghiul dintre cele două fascicule,  $\Delta\Phi_{\text{tilt}}(x, y)$ , și din cea induză optic în materialul neliniar,  $\Delta\Phi_{\text{NL}}(x, y)$ , conform relației:

$$\Delta\Phi(x, y) \equiv \Delta\Phi_{total}(x, y) = \Delta\Phi_{NL}(x, y) + \Delta\Phi_{tilt}(x, y) \quad (4.6)$$

Relatia (4.5) poate fi scrisa sub forma:

$$I(x, y) = A(x, y) + B(x, y) \cdot \cos(\Delta\Phi_{NL}(x, y) + k \sin(\theta_x) x), \quad (4.7)$$

unde  $A(x, y) = I_1(x, y) + I_2(x, y)$ ,  $B(x, y) = 2\sqrt{I_1(x, y) \cdot I_2(x, y)}$ , iar franjele de interferenta nemodulate (datorate unghiului dintre cele doua fascicule ce interfera pe matricea camerei) au fost considerate paralele cu directia  $y$ ,  $\theta_y \approx 0$ . Relatia (4.7) se poate scrie sub forma [120-123]:

$$I(x, y) = A(x, y) + C(x, y) \cdot e^{ik x \sin(\theta_x)} + C^*(x, y) \cdot e^{-ik x \sin(\theta_x)}, \quad (4.8)$$

$$\text{unde: } C(x, y) = (1/2) \cdot B(x, y) \cdot e^{i\Delta\Phi_{NL}(x, y)} \quad (4.9)$$

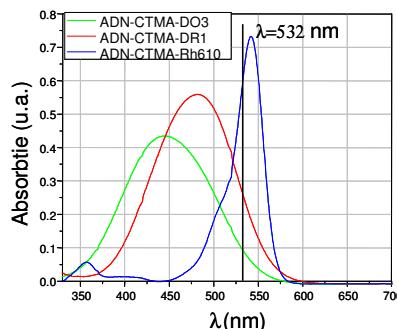
iar  $C^*$  reprezinta conjugata complexa a lui  $C(x, y)$ . Efectuand transformata Fourier a relatiei (4.8) (reprezentata cu simbolul  $\sim$ ) obtinem [120-123]:

$$\tilde{I}(u_x, u_y) = \tilde{A}(u_x, u_y) + \tilde{C}(u_x - k \sin(\theta_x), u_y) + \tilde{C}^*(u_x + k \sin(\theta_x), u_y), \quad (4.10)$$

unde  $u_x$  si  $u_y$  sunt frecventele spatiale (coordonate in spectrul Fourier). Din relatia (4.10), pentru a extrage informatia despre modulatia de faza trebuie sa folosim al doilea sau al treilea termen. Acest termen poate fi obtinut printre-un filtraj in spectrul Fourier. Efectuand o transformare Fourier inversa asupra termenului selectat, translatat in centrul spectrului, se obtine o imagine descrisa de relatia (4.9). Din aceasta relatie se determina faza optica utilizand functia arctangenta. Informatia de faza obtinuta este impachetata intr-un interval de  $2\pi$ . Pentru a obtine o distributie continua a fazei a fost implementat un algoritm de despachetare a fazei ce presupune identificarea zonelor cu salt de faza si adaugarea sau scaderea de  $2\pi$  in acele zone [117].

#### 4.3.2. Rezultate obtinute in studiul modulatiei spatiale indusa cu laserul in complexul ADN-CTMA-colorant

Rezultatele prezentate in acest subcapitol au fost obtinute in probe de ADN-CTMA (30 g/l) dopat cu colorantii Rh610, DR1 si DO3, dizolvate in butanol. Cele trei solutii au fost puse in cuve subtiri de cuart cu grosimea de  $L=0.5$  mm. Spectrele de absorbtie ale probelor investigate sunt prezentate in figura 4.12.

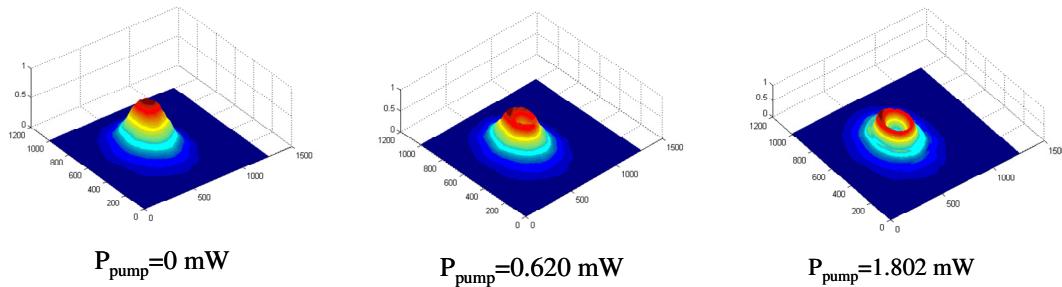


**Fig. 4.12.** Spectrele de absorbtie ale probelor ADN-CTMA-Rh610, ADN-CTMA-DR1 si ADN-CTMA-DO3 in butanol

Lungimea de unda a fasciculului laser de excitare este situata in apropierea maximului de absorbtie al probei ADN-CTMA-Rh610, fasciculul de excitare fiind practic complet absorbit in aceasta proba. Maximele de absorbtie in ADN-CTMA-DR1 si in ADN-CTMA-DO3 sunt la lungimi de unda mai mici decat lungimea de unda a fasciculului de excitare.

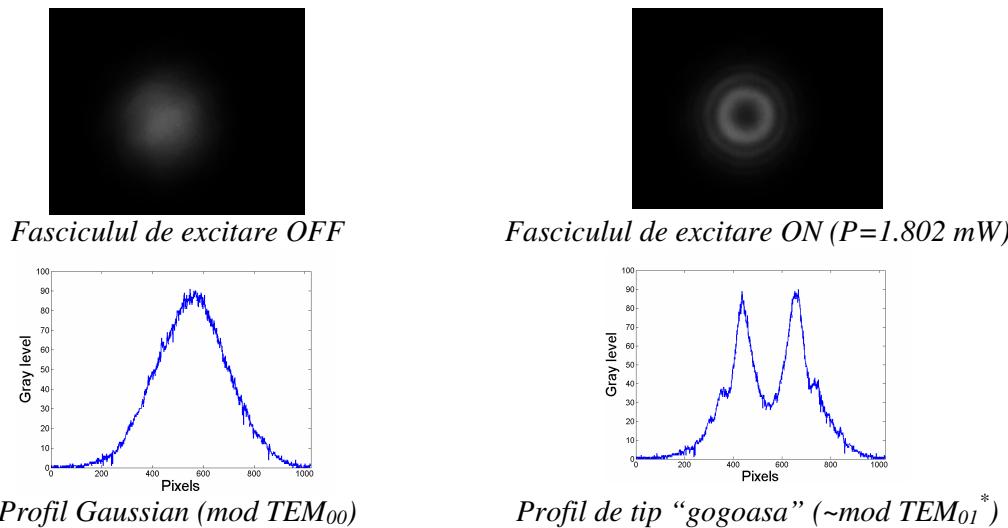
Pentru complexul ADN-CTMA-Rh610 in butanol, din masuratorile experimentale la lungimea de unda de excitare  $\lambda=532$  nm, am determinat coeficientul de absorbtie  $\alpha_{532} \approx 555$   $\text{cm}^{-1}$ . Acestei valori a coeficientului de absorbtie ii corespunde o lungime efectiva in proba de  $L_{\text{eff}}=0.018$  mm.

In figura 4.13, am prezentat profilul spatial de intensitate al fasciculului laser de test care trece prin proba investigata, in absenta excitarii si pentru diferite puteri ale fasciculului de excitare, determinat experimental.



**Fig. 4.13.** Profilul spatial 3D al fasciculului de test ce trece prin proba

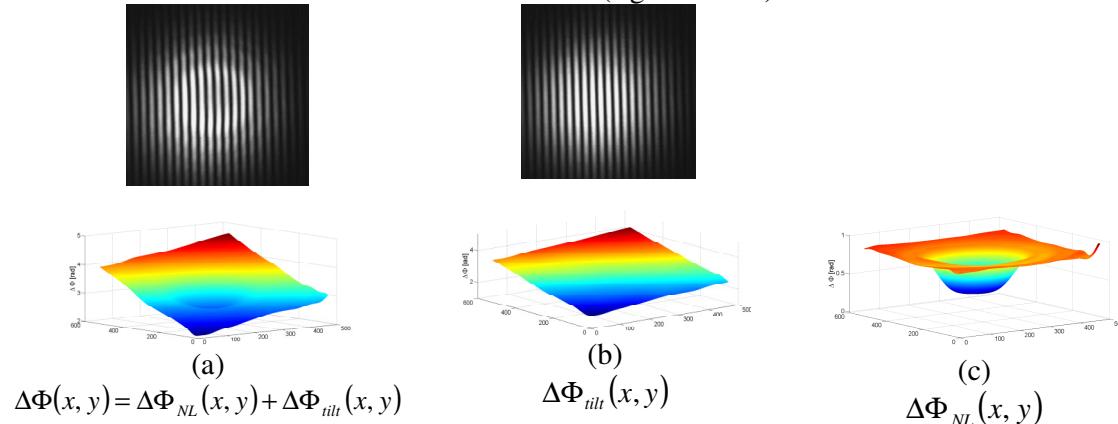
Analiza acestor imagini releva marirea modificarii distributiei de intensitate a fasciculului de test cand puterea fasciculului de excitare creste. Modificarea profilului fasciculului de test gaussian ( $\text{TEM}_{00}$ ) intr-un fascicul de tip „gogoasa” ( $\sim \text{TEM}_{01}^*$ ) in proba a carei faza a fost modulata spatial de fasciculul de excitare este evidentiata si mai bine in figura 4.13. Imaginele din figura 4.14 au fost obtinute pastrand doar fasciculul de probare ce trece prin proba (fasciculul de referinta obturat), in absenta, respectiv prezenta fasciculului de excitare.



**Fig. 4.14.** Modificarea profilului fasciculului de test gaussian ( $\text{TEM}_{00}$ ) intr-un fascicul de tip „gogoasa” ( $\sim \text{TEM}_{01}^*$ ) in proba a carei faza a fost modulata spatial de fasciculul de excitare

In urma acestor experimente, putem spune ca am demonstrat experimental modulatia spatiala a fazei de catre lumina in ADN-CTMA-Rh610, ce conduce la „modelarea” fasciculului de test.

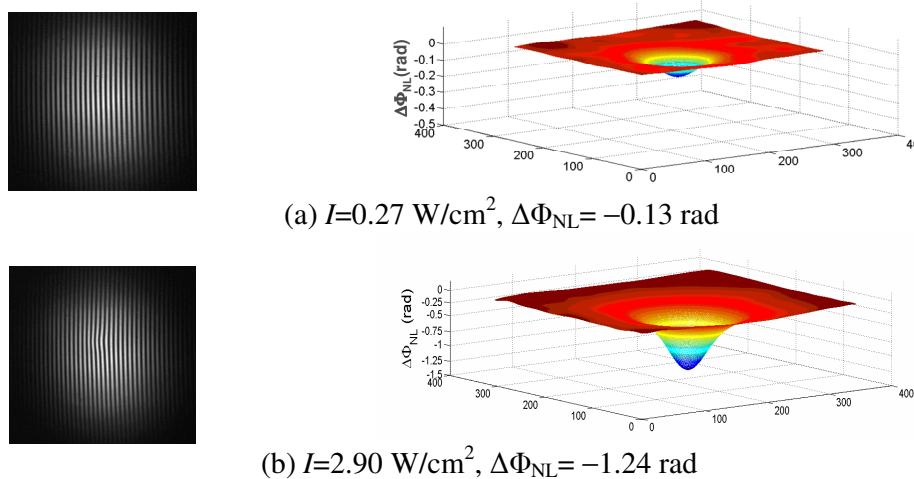
In continuare, am determinat distributia spatiala si marimea modulatiei de faza, si implicit marimea modulatiei indicelui de refractie, induse de fasciculul laser de excitare in complexul de ADN-CTMA functionalizat cu colorantii mentionati, utilizand programul DSROP. Se achizitioneaza doua imagini cu franje (figura 4.15) obtinute din interferenta fasciculelor de test si de referinta: una cu fasciculul de excitare prezent (figura 4.15 a) si una cu fasciculul de excitare obturat (figura 4.15 b). Facand diferenta dintre distributiile de faza determine din cele doua imagini achizitionate obtinem modulatia fazei,  $\Delta\Phi_{NL}(x, y)$ , induse de fasciculul de excitare in ADN-CTMA-Rh610 (figura 4.15 c).

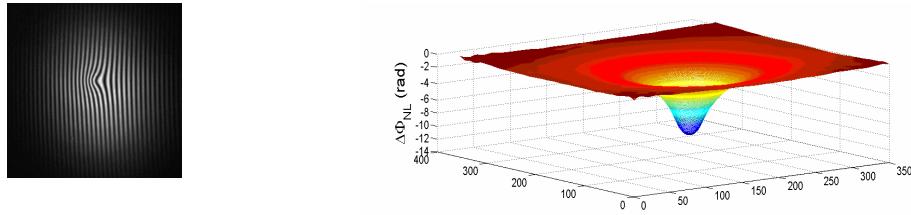


**Fig. 4.15.** Determinarea modulatiei fazei induse de fasciculul de excitare in proba utilizand programul DSROP

In continuare, am prezentat o selectie a imaginilor cu franje distorsionate local, la diferite intensitati ale fasciculului de excitare, si a profilelor 3D ale modulatiei fazei corespunzatoare lor, folosind programul DSROP implementat de noi. In figurile 4.16 - 4.18 sunt prezentate imaginile de interferenta distorsionate local si modulatiile corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , induse de fasciculul laser de excitare in probele investigate, la diferite intensitati. Marimea modulatiei fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , este determinata in centrul regiunii excitate optic de varful fasciculului de excitare.

#### ADN-CTMA-Rh610 10 % in butanol

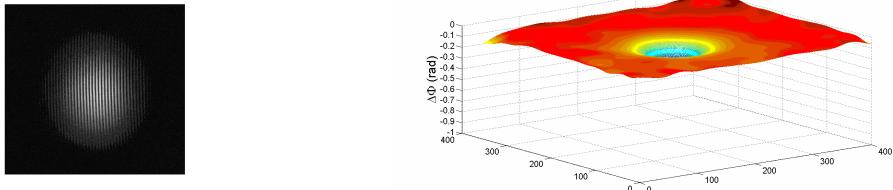




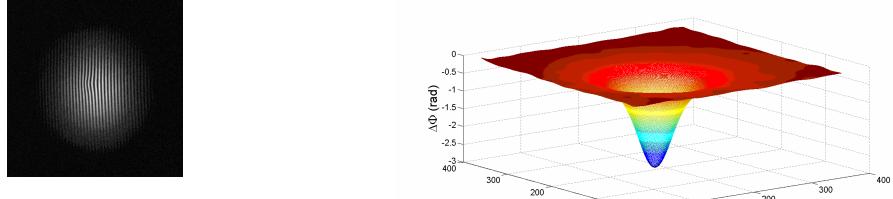
(c)  $I=22.61 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -10.58 \text{ rad}$

**Fig. 4.16.** Figurile de interferenta distorsionate local si modulatatile corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$  induse in proba ADN-CTMA-Rh610 de fasciculul de excitare, la diferite intensitati ale acestuia. Scala verticala:  $|\Delta\Phi_{NL}| < 0.5 \text{ rad}$  (a);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 1.5 \text{ rad}$  (b);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 15 \text{ rad}$  (c)

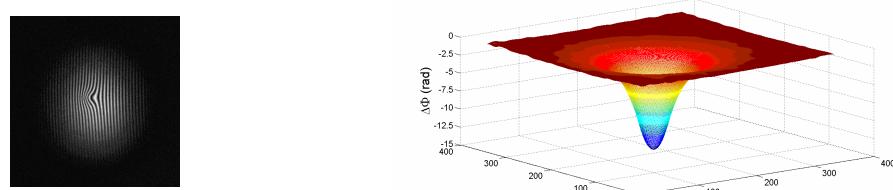
#### ADN-CTMA-DR1 10 % in butanol



(a)  $I = 0.29 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -0.25 \text{ rad}$



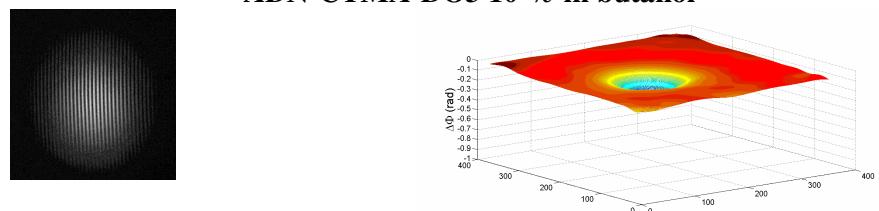
(b)  $I = 2.88 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -2.67 \text{ rad}$



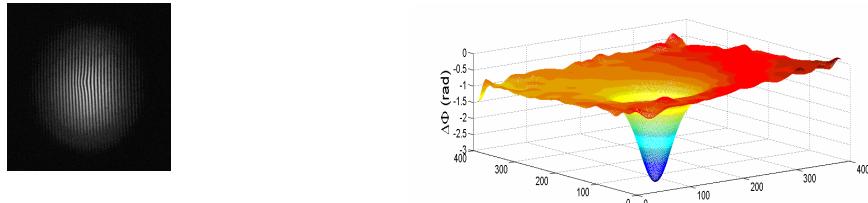
(c)  $I = 13.38 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -13.16 \text{ rad}$

**Fig. 4.17.** Figurile de interferenta distorsionate local si modulatatile corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$  induse in proba ADN-CTMA-DR1 de fasciculul de excitare, la diferite intensitati ale acestuia. Scala verticala:  $|\Delta\Phi_{NL}| < 1 \text{ rad}$  (a);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 3 \text{ rad}$  (b);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 15 \text{ rad}$  (c)

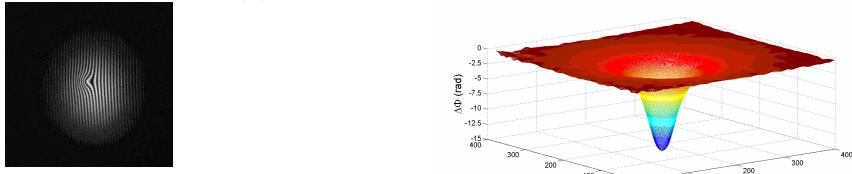
#### ADN-CTMA-DO3 10 % in butanol



(a)  $I = 0.27 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -0.26 \text{ rad}$



(b)  $I = 2.90 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -2.75 \text{ rad}$

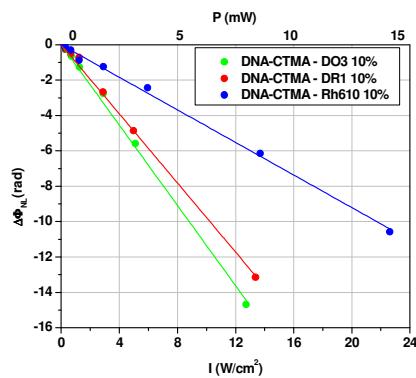


(c)  $I = 12.74 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -14.69 \text{ rad}$

**Fig. 4.18.** Figurile de interferenta distorsionate local si modulatii corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$  induse in proba ADN-CTMA-DO3 de fasciculul de excitare, la diferite intensitati ale acestuia. Scala verticala este diferita:  $|\Delta\Phi_{NL}| < 1 \text{ rad}$  (a);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 3 \text{ rad}$  (b);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 15 \text{ rad}$  (c)

Datorita absorbtiei mari in proba, intensitatea de excitare,  $I_{\text{pump}}$ , scade la propagarea prin proba, conform legii Lambert-Beer,  $I_{\text{pump}}(z) = I_{\text{pump}}(0)\exp(-\alpha z)$ , ceea ce duce la o dependenta de  $z$  de acelasi tip a modularii indicelui de refractie in proba,  $\Delta n(z) = n_2 I_{\text{pump}}(z) = \Delta n(0)\exp(-\alpha z)$ . Modulatia maxima a indicelui de refractie,  $\Delta n(0) = n_2 I_{\text{pump}}(0)$ , apare la fata de intrare in proba a fasciculului laser de excitare, pentru  $z=0$ . Din modulatia fazei fasciculului de proba,  $\Delta\Phi_{NL}(L)$ , la trecerea prin proba cu indicele de refractie modificat de fascicul de excitare,  $\Delta\Phi_{NL}(L) = k n_2 I_{\text{pump}}(0) L_{\text{eff}} = k \Delta n(0) L_{\text{eff}}$  ( $k$ - numarul de unda coresponzator lungimii de unda a fasciculului de proba, lungimea efectiva  $L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha_0 L)]$ ), se determina  $\Delta n(0) = \Delta\Phi_{NL}(L)/(k L_{\text{eff}})$  si indicele de refractie neliniar,  $n_2$ , asociat proceselor induse in proba de excitarea optica:  $n_2 = \Delta\Phi_{NL}(L)/(k I_{\text{pump}}(0) L_{\text{eff}})$ .

Din datele experimentale am determinat dependenta marimii modulatieri fazei de intensitatea de pompaj (figura 4.19). Semnul negativ al modulatiei fazei ( $\Delta\Phi_{NL}$ ) corespunde unei lentile divergente induse in proba de fasciculul de excitare.



**Fig. 4.19.** Dependenta modificarii fazei in ADN-CTMA-Rh610, ADN-CTMA-DRI si ADN-CTMA-DO3 de intensitatea fasciculului de excitare

In domeniul intensitatilor de pompaj utilizate in experimentele noastre, dependenta modulatiei fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , de intensitatea de excitare,  $I$ , este fitata bine de una liniara data de:

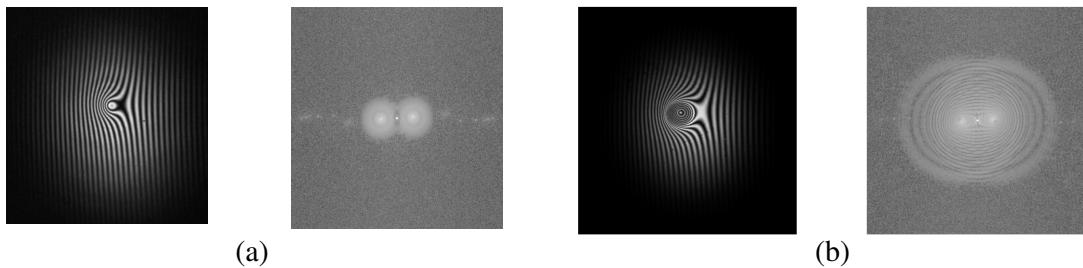
$$\Delta\Phi_{NL}(rad) = -0.460 \cdot \left( \frac{rad}{W/cm^2} \right) \cdot I(W/cm^2) \quad \text{ADN-CTMA-Rh610} \quad (4.11 \text{ a})$$

$$\Delta\Phi_{NL}(rad) = -0.977 \cdot \left( \frac{rad}{W/cm^2} \right) \cdot I(W/cm^2) \quad \text{ADN-CTMA-DR1} \quad (4.11 \text{ b})$$

$$\Delta\Phi_{NL}(rad) = -1.136 \cdot \left( \frac{rad}{W/cm^2} \right) \cdot I(W/cm^2) \quad \text{ADN-CTMA-DO3} \quad (4.11 \text{ c})$$

Rezultatele prezentate in figura 4.19 releva faptul ca modulatia fazei este liniara si reversibila in domeniul de intensitati considerat. De asemenea, am observat ca raspunsul celor trei solutii ADN-CTMA-colorant in butanol este diferit pentru aceeasi excitare luminoasa. Valorile mari ale modulatiei fazei indusa de lumina in probele investigate se datoreaza partial si grosimii celulelor cu solutie. In experimentele efectuate, modulatia fazei a fost determinata dupa atingerea starii stationare (cateva secunde de la inceputul excitarii optice).

In cazul intensitatilor prea mari (dependente de natura probei), am observat o saturatie a raspunsului neliniar al probei, iar in acest caz modulatia fazei nu mai este proportionala cu intensitatea de excitare. De asemenea, cand distorsionarea franelor de interferenta este prea mare, poate sa nu mai fie posibila prelucrarea corecta a figurii de interferenta cu metoda DSROP implementata, deoarece se produce o suprapunere a ordinului 1 cu ordinul 0 (figura 4.20). In acest caz, filtrarea ordinului 1 in spectrul Fourier nu mai poate fi completa, fara a selecta si o zona din ordinul 0 (figura 4.20 a), reconstructia fazei fiind afectata de erori, sau chiar este imposibil de delimitat spatial ordinul 1, in vederea filtrarii acestuia (figura 4.20 b).



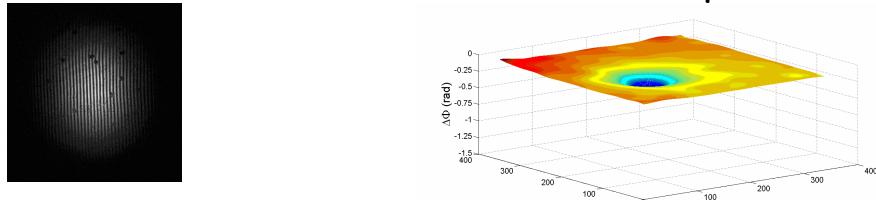
**Fig. 4.20.** Modulatii ale fazei induse de fasciculul de excitare la intensitati mari si spectrele Fourier corespunzatoare: (a) solutie ADN-CTMA-Rh610,  $P=33.2 \text{ mW}$ ,  $I=52.87 \text{ W/cm}^2$ ; (b) solutie ADN-CTMA-DO3,  $P=38.5 \text{ mW}$ ,  $I=61.31 \text{ W/cm}^2$

Am efectuat experimente similare de modulatie a fazei pe filme din sistemele ADN-CTMA-Rh610, ADN-CTMA-DR1 si ADN-CTMA-DO3. In cazul filmelor de ADN-CTMA-Rh610, datorita absorbtiei mari a lungimii de unda de excitare si a intensitatii mari datorate focalizarii fasciculului de excitare pe proba, apare o fotodegradare rapida a colorantului. Aceasta fotodegradare a fost evidentiată si in experimentele de absorbtie si mixaj de unde prezentate in acest capitol si comparata cu fotodegradarea Rh610 in polimerul sintetic PMMA. Rh610 este mai bine protejat de fotodegradare in matricea ADN-CTMA decat in PMMA, dar procesul exista si in aceasta matrice. In plus, la lungimea de unda de 532 nm a fasciculului de excitare utilizat in experimentele de modulatie, absorbtia este mai mare decat la lungimea de unda de 514 nm utilizata in experimentele de absorbtie si mixaj de unde. In solutia de ADN-CTMA-Rh610 efectele fotodegradarii Rh610 au fost neglijabile, in timp ce

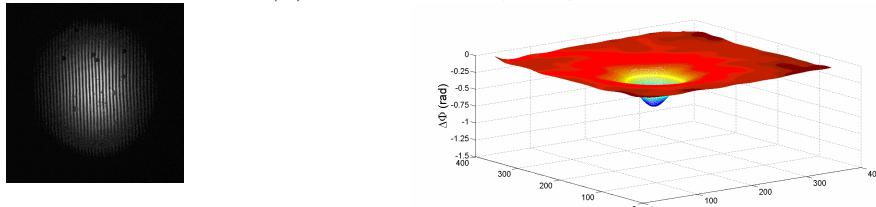
in filmele de ADN-CTMA-Rh610 nu a fost posibila investigarea variatiei modulatiei de faza, datorita fotodegradarii mari a Rh610.

In figurile 4.21 si 4.22, am prezentat o selectie a imaginilor cu franje distorsionate local, la diferite intensitati ale fasciculului de excitare, si a profilelor 3D ale modulatiei spatiale a fazei corespunzatoare lor, calculate cu programul DSROP implementat de noi. In aceste experimente am folosit un film ADN-CTMA-DR1 10% cu grosimea de  $\sim 20 \mu\text{m}$  si un film ADN-CTMA-DO3 cu grosimea de  $\sim 340 \mu\text{m}$ . Ca si in cazul solutiilor investigate, marimea modulatiei fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , este determinata in centrul regiunii excitate optic.

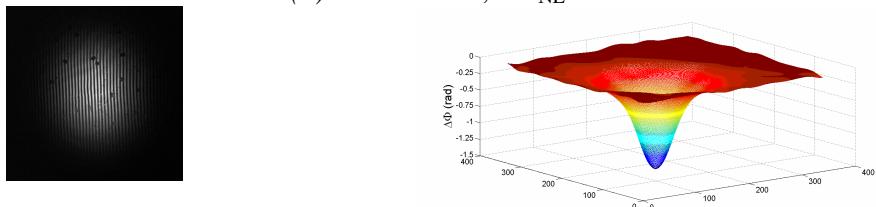
**ADN-CTMA-DR1 10% - film  $\sim 20 \mu\text{m}$**



(a)  $I = 2.88 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -0.21 \text{ rad}$



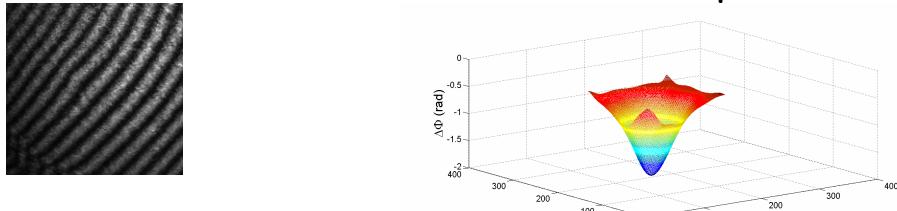
(b)  $I = 5 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -0.52 \text{ rad}$



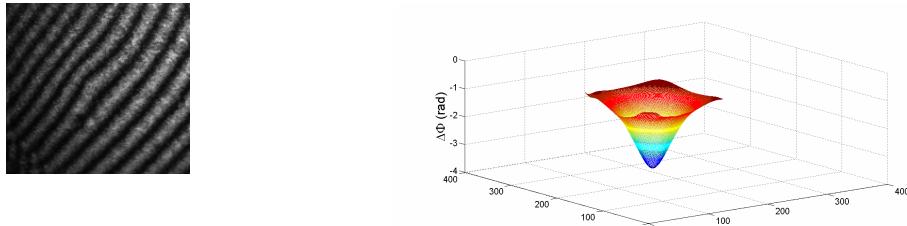
(c)  $I = 55.74 \text{ W/cm}^2$ ,  $\Delta\Phi_{NL} = -1.44 \text{ rad}$

**Fig. 4.21.** Figurile de interferenta distorsionate local si modulatile corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , induse in filmul ADN-CTMA-DR1 de fasciculul laser de excitare, la diferite intensitati ale acestuia

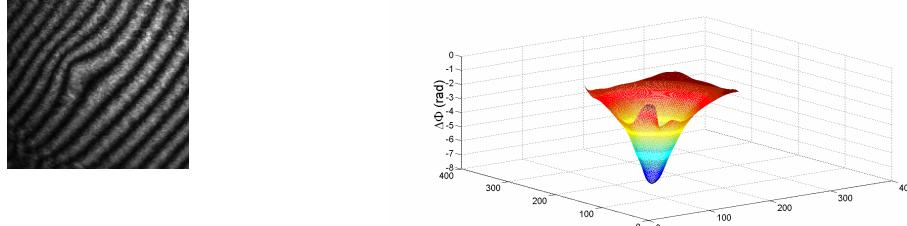
**ADN-CTMA-DO3 10% - film  $\sim 340 \mu\text{m}$**



(a)  $I = 1.8 \text{ W/cm}^2$ ;  $\Delta\Phi_{NL} = -1.43 \text{ rad}$



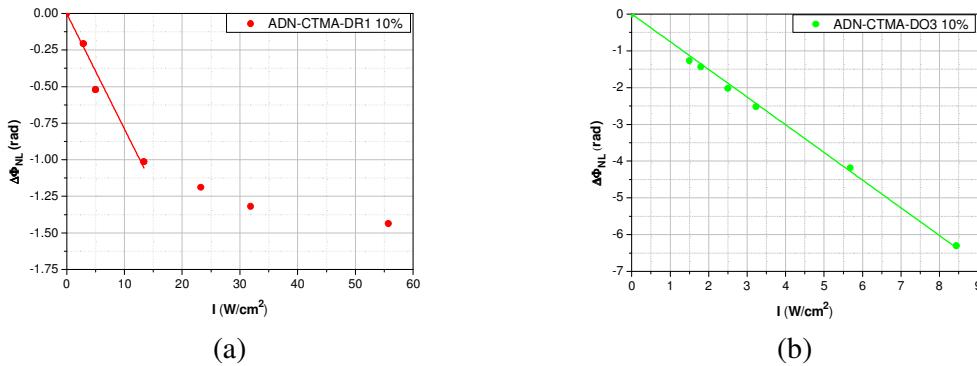
(b)  $I = 3.23 \text{ W/cm}^2$ ;  $\Delta\Phi_{NL} = -2.52 \text{ rad}$



(c)  $I = 8.44 \text{ W/cm}^2$ ;  $\Delta\Phi_{NL} = -6.3 \text{ rad}$

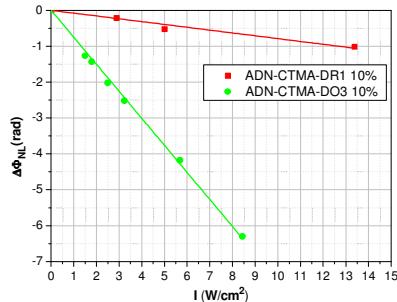
**Fig. 4.22.** Figurile de interferenta distorsionate local si modulatiile corespunzatoare ale fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , induse in filmul ADN-CTMA-DO3 de fascicul laser de excitare, la diferite intensitati ale acestuia. Scala verticala:  $|\Delta\Phi_{NL}| < 2 \text{ rad}$  (a);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 4 \text{ rad}$  (b);  $|\Delta\Phi_{NL}| < 8 \text{ rad}$  (c)

In figura 4.23 (a) am prezentat dependenta marimii modulatiei fazei de intensitatea fascicului de pompaj, determinata din datele experimentale, pentru ADN-CTMA-DR1, iar in figura 4.23 (b) pentru ADN-CTMA-DO3. Semnul negativ al modulatiei  $\Delta\Phi_{NL}$  a fazei corespunde unei lentile divergente induse in proba de fascicul de excitare.



**Fig. 4.23.** Dependenta marimii modulatiei fazei de intensitatea de pompaj in filme de ADN-CTMA-DR1 (a) si, respectiv, ADN-CTMA-DO3 (b)

Pentru ilustrare, in figura 4.23(a), au fost considerate si puncte experimentale obtinute la intensitati la care raspunsul la excitarea luminoasa a complexului ADN-CTMA-DR1 se abate de la liniaritate. In figura 4.24 sunt prezentate, pentru comparatie, dependentele liniare ale raspunsului pentru cele doua filme considerate.



**Fig.4.24.** Dependenta liniara a marimii modulatiei fazei de intensitatea de pompaj in filme de ADN-CTMA-DR1 si, respectiv, ADN-CTMA-DO3

Dependenta liniara a modulatiei fazei,  $\Delta\Phi_{NL}$ , de intensitatea fasciculului de excitare,  $I$  (in domeniul intensitatilor de excitare considerate in figura 4.24) este data de:

$$\Delta\Phi_{NL}(\text{rad}) = -0.079 \cdot \left( \frac{\text{rad}}{\text{W/cm}^2} \right) \cdot I(\text{W/cm}^2) \quad \text{film ADN-CTMA-DR1} \quad (4.12 \text{ a})$$

$$\Delta\Phi_{NL}(\text{rad}) = -0.753 \cdot \left( \frac{\text{rad}}{\text{W/cm}^2} \right) \cdot I(\text{W/cm}^2) \quad \text{film ADN-CTMA-DO3} \quad (4.12 \text{ b})$$

Si in acest caz modulatia fazei prin transformari reversibile a fost determinata dupa atingerea unei stari stationare (cateva secunde de la inceputul excitarii optice).

Toate aceste rezultate sunt importante in aplicatii ale complecsilor de ADN dopati cu coloranti in fotonica neliniara si in realizarea dispozitive bazate pe modulatia spatiala complet optica a fazei.

## CONCLUZII

In aceasta teza am prezentat un studiu privind modelarea teoretica si investigarea experimentală a raspunsului optic neliniar al unor materiale si micro-structuri importante pentru fotonica, contribuind la dezvoltarea si imbunatatirea unor metode utilizate pentru caracterizarea neliniaritatilor optice.

Pe baza analizei teoretice in domeniul opticii neliniare si utilizand metodele experimentale (mixaj de doua si patru unde, Z-scan si I-scan, metoda interferometrica pentru masurarea modulatiei fazei optice), descrise in primul capitol al aceste teze, am determinat raspunsul optic neliniar al materialelor investigate (filme calcogenide micro-structurate de  $As_2S_3$ , cristale lichide dopate cu colorant si structuri supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti), tinand cont de limitele si avantajele acestora.

Pentru a investiga procesele optice neliniare care apar in filmele calcogenide  $As_2S_3$  am micro-structurat materialul prin inducerea cu laserul a unor retele de difractie complexe ( $\Delta\alpha$  si de faza ( $\Delta n$  si de  $\Delta d$ )). Folosind un model teoretic care descrie evolutia temporală a coeficientului de absorbtie si a indicelui de refractie in timpul iluminarii, am analizat variatia proprietatilor optice absorptive si refractive ale filmelor microstructurate. Modelarea dinamicii acestor procese si a difractiei in regim Raman-Nath pe retelele de faza induse de lumina in  $As_2S_3$ , utilizate in interpretarea rezultatelor obtinute in experimentele de absorbtie si de difractie si din masuratori AFM, au dus la determinarea modificarii coeficientului de absorbtie, a indicelui de refractie neliniar si a reliefului retelei induse. Consider ca este oportuna extinderea studiului retelelor in  $As_2S_3$  la cazul generarii acestora cu pulsuri laser ultracute, explorarea mecanismelor implicate in acest caz, investigarea timpilor de formare si de viata ai retelelor induse in diferite conditii experimentale.

Am studiat difractia pe retele dinamice induse cu laserul in cristale lichide dopate cu coloranti. Am determinat indicele de refractie neliniar al cristalului lichid dopat cu colorant (5CB+DY7, 1%) si am modelat evolutia temporală a retelei de faza induse in cristalul lichid dopat cu colorant. Rezultatele obtinute in studiul proprietatilor optice neliniare prin difractia pe retele dinamice le-am comparat cu cele obtinute prin masuratori de I-scan. Din studiile noastre de difractie am determinat o valoare cu doua ordine de marime mai mare a indicelui de refractie neliniar al celulelor de cristale lichide dopate cu colorant (DY7 1%) decat atunci cand acesta este masurat prin metoda I-scan.

Am investigat, prin experimente de mixaj de doua si patru unde, inducand luminos retele de faza subtiri, neliniaritate optice in structuri supramoleculare de ADN functionalizat cu coloranti, utilizand montaje experimentale special concepute si realizate in laboratorul nostru. Din masuratorile de mixaj de doua unde, in regim Raman-Nath, am evaluat timpii de raspuns ai proceselor ce contribuie la raspunsul neliniar total al materialelor investigated si marimea acestuia (modulatia de faza indusa de lumina) corespunzatoare acestor procese. Prin masuratori de mixaj de patru unde am determinat reflectivitatea cu conjugarea fazei, parametru important pentru aplicatii in fotonica.

Am demonstrat experimental modularea spatiala a fazei, de catre lumina, in celule si filme pe baza de ADN functionalizat, utilizand o configuratie experimentală nouă si un montaj de laborator special concepute si realizate in laboratorul nostru. Am participat la realizarea si dezvoltarea unui program de reconstructie spatiala directa a fazei din imaginile cu franje (DSROP) pe care l-am folosit pentru analiza cantitativa a modulatiei optice a fazei. Am determinat experimental o serie de parametri importanti ce caracterizeaza modulatia spatiala complet optica a fazei (modulatia maxima a fazei). Toate aceste rezultate sunt importante in aplicatii ale complexilor de ADN dopati cu coloranti in fotonica neliniara si in realizarea dispozitive bazate pe modulatia spatiala complet optica a fazei. Raspunsurile optice neliniare mari si controlabile, obtinute in materialele investigated, ne permit dezvoltarea in viitor a unor noi aplicatii pentru fotonica.

## REFERINTE BIBLIOGRAFICE

1. Guang S. He and Song H. Liu, “*Physics of Nonlinear Optics*”, World Scientific Publishing Co, Singapore-New Jersey-London-Hong Kong (1999)
2. Amnon Yariv, “*Quantum Electronics*”, Third Edition, John Wiley & Sons Inc., New York-Chichester-Brisbane-Toronto-Singapore (1989)
3. Max Born and Emil Wolf, “*Principles of Optics*” (1964)
4. Y. R. Shen, “*The Principles of Nonlinear Optics*”, John Wiley & Sons Inc a Wiley Publication (2003)
5. Rober Boyd, “*Nonlinear Optics*”, Third Edition, Academic Press (2008)
6. George Nemes, “*Introducere in Optica Neliniara*”, Editura Academiei Romane (1972)
7. Razvan Dabu, “*Curs de Optica Neliniara*”, Editura Universitatii Bucuresti (2012)
8. F. Zernike, J.E. Midwinter, “*Applied Nonlinear Optics*”, Wiley, New York (1973)
9. H.J. Eichler, P. Gunther, D. W. Pohl, “*Laser induced dynamic gratings*”, Springer Verlag (1986)
10. A. Petris, “*Studii de autodifractie si conjugare optica a fazelor in materiale semiconductoare*”, Teza doctorat, Institutul de Fizica Atomica (1996)
11. Mingjun Chi, Jean-Pierre Huignard, Paul Michael Petersen, “*A general theory of two-wave mixing in nonlinear media*”, J. Opt. Soc. Am. B **26** (8), 1578-1584 (2009)
12. M.G. Moharam, T.K. Gaylord, R. Magnusson, “*Criteria for Raman-Nath regime diffraction by phase gratings*”, Optics Communications **32** (1), 19-23 (1980)
13. M.G. Moharam, T.K. Gaylord, R. Magnusson, “*Criteria for Bragg regime diffraction by phase gratings*” **32** (1), 14-18 (1980)
14. T.K. Gaylord, M.G. Moharam, “*Thin and thick gratings: terminology clarification*”, Applied Optics, **20** (19), 3271-3 (1981)
15. M.V. Berry, “*The diffraction of light by ultrasound*”, Academic Press (1968)
16. J.P. Woerdman, Philips Res. Repts. Suppl., no.7 (1971)
17. R. Fisher, Ed., “*Optical Phase Conjugation*”, Academic Press, New York (1983)
18. Jun-Ichchi Sakai, „*Phase Conjugate Optics*”, Mc. Graw-Hill, Inc., New York (1992)
19. A. Yariv, “*Phase conjugate optics and real-time holography*”, IEEE Journal of QE, QE- **14** (9), 650 (1978)
20. B. Y. Zel'dovich, N.F. Pilipetskii, V.V. Shkunov, „*Principles of Phase Conjugation*”, Springer Ser. Opt. Sci., Vol. **42**, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg (1985)
21. G. S. He, “*Optical phase conjugation: principles, techniques, and applications*”, Prog. Quantum Electron. **26**, 131–191 (2002).
22. M. Sheik-Bahae et al., “*Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam*”, IEEE Journal of Quantum Electronics **26**, 760-769 (1990)
23. M. Sheik-Bahae et al., “*Z-scan: a simple and sensitive technique for nonlinear-refraction measurement*”, Proc. SPIE **1148**, 41-51 (1990)
24. Eric W. Van Stryland, Mansoor Sheik-Bahae, “*Z-Scan Measurements of Optical Nonlinearities*”, Characterization Techniques and Tabulations for Organic Nonlinear Materials, M. G. Kuzyk and C. W. Dirk, Eds., page 655-692, Marcel Dekker, Inc., 1998
25. B. Taheri, H. Liu, B. Jassemnejad, D. Appling, Richard C. Powell, J. J. Song, “*Intensity scan and two photon absorption and nonlinear refraction of C-60 in toluene*”, Applied Physics Letters **68**(10), 1317-1319 (1996)
26. R. L. Sutherland, „*Handbook of nonlinear optics*”, Marcel Dekker Inc., New York (1996)
27. I. Dancus, V. I. Vlad, A. Petris, T. Bazaru Rujoiu, I. Rau, F. Kajzar, A. Meghea, A. Tane, “*Z-scan and I-scan methods for characterization of DNA optical nonlinearities*”, Romanian Reports in Physics **65** (3), 966 (2013)

28. A. Petris, V.I. Vlad, "Theoretical analysis of open aperture reflection Z-scan on materials with high order optical nonlinearities", ICTP Preprint, IC/2010/10 (2010)
29. I. Dancus, A. Petris, P.S. Doia, E. Fazio, V.I. Vlad, "Z-Scan Measurement of Thermal Third Order Optical Nonlinearities", Proc. SPIE **6785**, 67850T1-6 (2007)
30. T. Bazaru, I. Dancus, P.S. Doia, A. Petris, V.I. Vlad, "Multiple-pass Z-scan for Characterization of the Partial Transparent Nonlinear Optical Materials", Proc. SPIE **5581**, 649-653 (2004)
31. A. Petris, E. Fazio, T. Bazaru, M. Bertolotti, V. I. Vlad, "All optical methods for the characterization of non-linear optical materials", Romanian Reports in Physics **53** (9-10), 727-739 (2001)
32. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, P.S. Gheorghe, E. Fazio, "Describing third-order nonlinear optical properties of nanocrystalline porous silicon using Bruggeman model," Lasers and Electro-Optics 2009 and the European Quantum Electronics Conference. CLEO Europe - EQEC 2009, pp.1-1, 14-19 June 2009, doi: 10.1109/CLEOE-EQEC.2009.5191491
33. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, M. Miu, "Optical linear and third-order nonlinear properties of nano-porous Si", J. Optoelectron. Adv. M. **12** (1), 43-47 (2010)
34. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, M. Miu, "Effective nonlinear refractive index of nano-porous silicon and its dependence on porosity and light wavelength", Proc. SPIE **7469**, 74690D (2009)
35. Cid B de Araujo, Anderson S L Gomes, Georges Boudebs, "Techniques for nonlinear optical characterization of materials: a review", Rep. Prog. Phys. **79**, 036401 (30pp) (2016)
36. E. Garmire, "Nonlinear optics in daily life", Opt. Express **21** (25), 30532-30544, (2013)
37. C. Schnebelin, C. Cassagne, C. B. de Araujo, G. Boudebs, "Measurements of the third- and fifth-order optical nonlinearities of water at 532 and 1064 nm using the D4σ method", Opt. Lett. **39**, 5046 (2014)
38. M.R. Ferdinandus, H. Hu, M. Reichert, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland, "Beam deflection measurement of time and polarization resolved ultrafast nonlinear refraction", Opt. Lett. **38**, 3518 (2013)
39. J. A. D. Pintle, E. R. Lara, M. D. I. Castillo, "Sensitivity optimization of the one beam Z-scan technique and a Z-scan technique immune to nonlinear absorption", Opt. Express **21**, 15350 (2013)
40. Albert S. Reyna and Cid B. de Araújo, "Nonlinearity management of photonic composites and observation of spatial-modulation instability due to quintic nonlinearity", Phys. Rev. A **89**, 063803 (2014)
41. Mohammad Reza Rashidian Vaziri, "Z-scan theory for nonlocal nonlinear media with simultaneous nonlinear refraction and nonlinear absorption", Applied Optics **52** (20), 4843-4848 (2013)
42. S. Suresh, A. Ramanand, D. Jayaraman, P. Mani, "Review on theoretical aspect of nonlinear optics", Rev. Adv. Mater. Sci. **30**, 175-183 (2012)
43. Stegeman G.I., Stegeman R.A., "Nonlinear Optics:Phenomena, Materials and Devices", Hoboken, NJ:Wiley (2012)
44. J-I Adam and X. Zhang, "Chalcogenide Glasses: Preparation, Properties and Applications", Woodhead Publishing Limited (2014)
45. MC. Rao, K. Ravindranadh, A. Christy Ferdinand, MS. Shekhawat, "Physical Properties and Applications of Chalcogenide Glasses: A Brief Study", IJAPBC **2**(2) (2013)
46. Suresh Sagadevan, Edison Chandraseelan, "Applications of Chalcogenide Glasses: An Overview", International Journal of ChemTech Research **6**(11), pp 4682-4686 (2014)

47. Benjamin J. Eggleton, Barry Luther-Davies, Kathleen Richardson, "Chalcogenide photonics", *Nature Photonics* **5**, 141–148 (2011)
48. M. Popescu, A. Andries, V. Ciumas, M. Iovu, S. Sutov, D. Tiuleanu, "Fizica Sticlelor Calcogenice", Editura Stiintifica Bucuresti si I. E. P. Stiinta Chisinau (1996)
49. A. Zakery, S. R. Elliott, "Optical Nonlinearities in Chalcogenide Glasses and their Applications", Springer Verlag (2007)
50. [https://en.wikipedia.org/wiki/Arsenic\\_trisulfide](https://en.wikipedia.org/wiki/Arsenic_trisulfide)
51. J. H. Kwon, C. H. Kwak, S.S. Lee, "Phase conjugation in an amorphous As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> thin film", *Opt. Lett.* **10** (11), 568-570 (1985)
52. A. Petris, V. I. Vlad, "Diffraction in laser induced gratings on thin As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> films", *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials* **3** (3), 769-776 (2001)
53. Z Yang, NC Anheier, HA Qiao, P Lucas, "Sub-wavelength imaging of photo-induced refractive index pattern in chalcogenide glass films", *Optics Communications* **282**, 4370-4373 (2009)
54. Zhiyong Yang, Norman C Anheier Jr, Hong A Qiao and Pierre Lucas, "Simultaneous microscopic measurements of photodarkening and photoexpansion in chalcogenide films", *Journal of Physics D: Applied Physics* **42**, 135412 (5pp) (2009)
55. E Potanina, J Teteris, "Photo-induced formation of surface relief in amorphous As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> films", *Chalcogenide Letters* **10** (11), 449-454 (2013)
56. Ugis Gertners, Zanda Gertnere, Janis Teteris, "Optical-field induced volume- and surface-relief formation phenomenon in thin films of vitreous chalcogenide semiconductors", *Proc. SPIE* **8836** - Optomechanical Engineering, 88360X (2013)
57. Ugis Gertners, Janis Teteris, "Photo-Induced Mass Transport in Thin Films of Amorphous As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>", *Physics Procedia* **44**, 45-51 (2013)
58. Janis Teteris, Ugis Gertners, Mara Reinfelde, "Photoinduced mass transfer in amorphous As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> films", *Phys. Status Solidi C* **9**, 2780-2784 (2011)
59. Tigran V. Galstyan, J.-F. Viens, A. Villeneuve, K. Richardson, and M. A. Duguay "Photoinduced Self-Developing Relief Gratings in Thin Film Chalcogenide As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> Glasses", *Jornal of Lightwave Technology* **15** (8), 1343-1347 (1997)
60. G Boudebouz, S Cherukulappurath, H Leblond, J Troles, F Smektala, F Sanchez, "Experimental and theoretical study of higher-order nonlinearities in chalcogenide glasses", *Optics Communications* **219**(1–6), 427–433 (2003)
61. Mara Reinfelde, Janis Teteris, "Holographic recording of subwavelength structures in amorphous chalcogenide thin films", *Proc. of SPIE* **5946**, 59461J-1 (2005)
62. K. Tanaka, A. Saitoh, N. Terakado, "Giant photo-expansion in chalcogenide glass", *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials* **8** (6), 2058 – 2065 (2006)
63. Rashid A. Ganeev, "Nonlinear Optical Properties of Materials", Springer Dordrecht Heidelberg New York London (2013)
64. Rong Ping Wang, "Amorphous Chalcogenides: Advances and Applications", CRC Press, - Science - 322 pages (2014)
65. Chao Lu, Daniel Recht, Craig Arnold, "Generalized Model for Photoinduced Surface Structure in Amorphous Thin Films", *PRL* **111**, 105503 (2013)
66. C. Röling, P. Thiesen, A. Meshalkin, E. Achimova, V. Abashkin, A. Prisacar, G. Triduh, "Imaging ellipsometry mapping of photo-induced refractive index in As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> films", *Journal of Non-Crystalline Solids* **365**, 93–98 (2013)
67. Iam Choon Khoo, "Nonlinear Optics of liquid crystals", Elsevier Science Publishers B.V. (1988)
68. Iam-Choon Khoo, "Liquid Crystals: Physical Properties and Nonlinear Optical Phenomena", John Wiley & Sons, Technology & Engineering - 424 pages (2007)

69. Yue Zhao, Tomiki Ikeda, "Smart light-responsivr materials: Azobenzene-Containing Polymers and Liquid Crystals", John Wiley & Sons, Inc. Publication (2009)
70. Janossy, I., A.D. Lloyd, and B.S. Wherrett, "Anomalous Optical Freedericksz Transition in an Absorbing Liquid-Crystal", Molecular Crystals and Liquid Crystals **179**, 1-12 (1990)
71. Brzozowski, L. and E.H. Sargent, "Azobenzenes for photonic network applications: Third-order nonlinear optical properties", Journal of Materials Science-Materials in Electronics **12**(9), 483-489 (2001)
72. Hiroshi Ono, Isao Saito, "Theoretical and experimental analysis on photothermal gratings in guest-host liquid crystal film", Journal of Applied Physics **89**(1), 10-14 (2001)
73. Hiroshi Ono, Yoshiro Harato, "Higher-order optical nonlinearity observed in host-guest liquid crystals", J. Appl. Phys. **85** (2), 676-680 (1999)
74. I. Lazo-Martinez, I. Guizar-Iturbide, A. Olivares-Perez, C. G. Trevino-Palacios, R. Ramos-Garcia, "Colossal optical nonlinear effects at the nematic-isotropic temperature transition in azo dye-doped liquid crystals", Proc. SPIE **5936**, Liquid Crystals IX, 59360Y (2005)
75. S. Frunza, I. Zgura, L. Frunza, O. Rasoga, P. Gheorghe, A. Petris, V.I. Vlad, "Covering obliquely deposited Siox with Polyvinyl Carbazole changes the orientation properties", Romanian Journal of Physics **59** (7-8), 733-744 (2014)
76. Svetlana G. Lukishova, "Nonlinear optical response of cyanobiphenyl liquid crystals to high-power, nanosecond laser radiation", Journal of Nonlinear Optical Physics&Materials **9** (3), 365-411 (2000)
77. Lorenzo Marrucci, "Mechanism of giant optical nonlinearity in light-absorbing liquid crystals: a brief primer", Liquid Crystals Today **11** (3), 6-33 (2010)
78. Hui-Chi Lin, Andy Ying-Guey Fuh, "Z-scan measurements of optical nonlinearities of dye-doped liquid crystals", Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials **18** (3), 367-400 (2009)
79. Hui-Chi Lin, Chin-Hui Chen, Ting-Shan Mo, Ming-Shian Li, Chia-Rong Lee, Feng-Ming Hsieh, Jui-Hsiang Liu, Andy Ying-Guey Fuh, "Identification of optical nonlinearities of dye-doped nematic and polymer-dispersed liquid crystals using Z-scan technique", Optics Communications **283**, 323-329 (2010)
80. C. Gayathri, A. Ramalingam, "Z-scan determination of the third-order optical nonlinearities of an azo dye using diode-pumped Nd : Yag laser", Optik **119** (9), 409-414 (2008)
81. R.K. Rekha, A. Ramalingam, "Optical Nonlinear Properties and Optical Limiting Effect of Metanil Yellow", American Journal of Engineering and Applied Sciences, **2**, 285-291 (2009)
82. I. Dancus, V.I. Vlad, A. Petris, S. Frunza, T. Beica, I. Zgura, F.A. Nicolescu, V.V. Jerca, D.M. Vuluga, "Low power laser induced optical nonlinearities in organic molecules ", Romanian Reports in Physics **62** (3), 567-580 (2010)
83. F.A. Nicolescu, V.V. Jerca, D.M. Vuluga, D.S. Vasilescu, "Synthesis and characterization of side-chain poly(methacrylate)s bearing new azo-moieties", Polymer Bulletin **65**, 905-916 (2010)
84. F.A. Nicolescu, V.V. Jerca, I. Dancus, A. Petris, T.V. Nicolescu, I.B. Rau, V.I. Vlad, D.S. Vasilescu, D.M. Vuluga, "Synthesis and characterization of side-chain maleimide-styrene copolymers with new pendant azobenzene moieties", Journal of Polymer Research **18** (5), 1009-1016 (2011)
85. P. B. de Melo, A. M. Nunes, L. Omena, S. M. S. do Nascimento, M. G. A. da Silva, M. R. Meneghetti, and I. N. de Oliveira, "Thermo-optical properties and nonlinear optical

- response of smectic liquid crystals containing gold nanoparticles”, Phys. Rev. E* **92**, 042504 (2015)
86. J. D. Watson and F. H. C. Crick, “A Structure for Deoxyribose Nucleic Acid”, *Nature* **171**, 737–738 (1953)
  87. Jeroen Beeckman , Kristiaan Neyts, Pieter J. M. Vanbrabant, “Liquid-crystal photonic applications”, *Optical Engineering* 50(8), 081202 (August 2011)
  88. Sandra McConville, David Laurent, Alessio Guarino, Stefania Residori, “Measurement of the giant nonlinear response of dye-doped liquid crystals”, *Am. J. Phys.* **73** (5) (2005)
  89. Iam Choon Khoo, Shuo Zhao, “Multiple Time Scales Optical Nonlinearities of Liquid Crystals for Optical-Terahertz-Microwave Applications”, *Progress In Electromagnetics Research*, **147** (37-56) (2014)
  90. Demetrios N. Christodoulides, Iam Choon Khoo, Gregory J. Salamo, George I. Stegeman, Eric W. Van Stryland, “Nonlinear refraction and absorption: mechanisms and magnitudes”, *Advances in Optics and Photonics* **2**, 60–200 (2010)
  91. Fuli Zhao, Changshun Wang, Yi Zeng, Jinwen Zhang, “Optical Nonlinearity and Photoinduced Anisotropy of an Azobenzene-Containing Ionic Liquid Crystalline Polymer”, *J. APPL. POLYM. SCI.* (2013)
  92. Andrii Varanytsia, Hama Nagai, Kenji Urayama, Peter Palffy-Muhoray, “Tunable lasing in cholesteric liquid crystal elastomers with accurate measurements of strain”, *Scientific Nature Reports* 15:17739, DOI: 10.1038/srep17739 (2015)
  93. L. Lucchetti, M. Di Fabrizio, O. Francescangeli, F. Simoni, “Colossal optical nonlinearity in dye doped liquid crystals”, *Optics Communications* **233**, 417–424 (2004)
  94. J. D. Watson and F. H. C. Crick, “A Structure for Deoxyribose Nucleic Acid”, *Nature*, **171**, 737–738 (1953)
  95. F. H. C. Crick and J. D. Watson, “The Complementary Structure of Deoxyribonucleic Acid”, *Proc. R. Soc.* **223**, 80–96 (1954)
  96. I. Rau., J. G. Grote, F. Kajzar, A. Pawlicka, “DNA - novel nanomaterial for applications in photonics and in electronics”, *Comptes Rendus Physique* **13**, 853-864 (2012)
  97. Z. Yu, W. Li, J. A. Hagen, Y. Zhou, D. Klotzkin, J. G. Grote and A. J. Steckl, “Photoluminescence and lasing from deoxyribonucleic acid (DNA) thin films doped with sulforhodamine”, *Appl. Opt.* **46**, 1507-1513 (2006)
  98. J. A. Hagen, W. Li, A. J. Steckl and J. G. Grote, “Enhanced emission efficiency in organic light-emitting diodes using deoxyribonucleic acid complex as an electron blocking layer”, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 171109 (2006)
  99. J. Massin, S. Parola, C. Andraud, F. Kajzar and I. Rau, “Enhanced fluorescence of isophorone derivatives in DNA based materials”, *Opt. Mater.* **35** (10), 1810–1816 (2013)
  100. A.-M. Manea, I. Rau, F. Kajzar and A. Meghea, “Fluorescence, spectroscopic and NLO properties of green tea extract in deoxyribonucleic acid”, *Opt. Mater.* **36** (1), 140–145 (2013)
  101. P. Yakovchuk, E. Protozanova and M. D. Frank-Kamenetskii, “Base-stacking and base-pairing contributions into thermal stability of the DNA double helix”, *Nucleic Acids Res.* **34** (2), 564–574 (2006)
  102. R. Popescu, C. Pirvu, M. Moldoveanu, J. G. Grote, F. Kajzar and I. Rau, “Biopolymer Thin Films for Optoelectronics Applications”, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **522** (1), 529–537 (2010)
  103. T. Bazaru Rujoiu, A. Petris, V. I. Vlad, I. Rau, A.-M. Manea, F. Kajzar, “Lasing in DNA-CTMA doped with Rhodamine 610 in butanol”, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17** (19), 13104-13111 (2015)

104. F. Kajzar, O. Krupka, G. Pawlik, A. Mitus, I. Rau, "Concentration Variation of Quadratic NLO Susceptibility in PMMA-DR1 Side Chain Polymer", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **522** (1), 180/[480]– 190/[490] (2010)
105. I. Rau, A. Tane, R. Zgarian, A. Meghea, J. G. Grote and F. Kajzar, "Stability of Selected Chromophores in Biopolymer Matrix", *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **554** (1), 43–55 (2012)
106. J. Nizioł, P. Nowak, J. Kobierski, H. Haranczyk, "Temperature evolution of hydration shells in solid DNA didecyldimethylammonium chloride complex studied by  $^1\text{H}$  NMR spectroscopy", *European Polymer Journal* **66**, 301–306 (2015)
107. Y. Kawabe and K.-I. Sakai, "DNA based solid-state dye lasers", *Nonlinear Opt. Quant. Opt.* **43**, 273–282 (2011)
108. A. C. Mitus, G. Pawlik, J. Mysliwiec, L. Sznitko, K. Cyprych, A. Szukalski, F. Kajzar and I. Rau, "Random lasing in dye doped bio-organic based systems: recent experiments and stochastic approach", *Proc. SPIE* **9171**, 91710H (2014)
109. I. Rau, A. Szukalski, L. Sznitko, A. Miniewicz, S. Bartkiewicz, F. Kajzar, B. Sahraoui and J. Mysliwiec, "Amplified spontaneous emission of Rhodamine 6G embedded in pure deoxyribonucleic acid", *Appl. Phys. Lett.* **101**, 171113 (2012)
110. G. Pawlik, W. Radosz, A.C. Mitus, J. Mysliwiec, A. Miniewicz, F. Kajzar, I. Rau, "Grating inscription in DR1:DNA-CTMA thin films: theory and experiment", *Nanobiosystems: Processing, Characterization, and Applications VI*, edited by N. Kobayashi, F. Ouchen, I. Rau, *Proc. SPIE* **8817**, 88170D (2013)
111. G. Pawlik, W. Radosz, A. C. Mitus, J. Mysliwiec, A. Miniewicz, F. Kajzar, I. Rau, "Holographic grating inscription in DR1: DNA-CTMA thin films: the puzzle of time scales", *Cent. Eur. J. Chem.* **12**(8), 886-892 (2014)
112. Oksana Krupka, Abdelkrim El-Ghayoury, Ileana Rau, Bouchta Sahraoui, James G. Grote, Francois Kajzar, "NLO properties of functionalized DNA thin films", *Thin Solid Films* **516** 8932–8936 (2008)
113. Jaroslaw Mysliwiec, Lech Sznitko, Barbara Smoczyńska, Stanisław Bartkiewicz, Andrzej Miniewicz, Bouchta Sahraoui, Francois Kajzar, "Applications of the DNA-based material for lasing and dynamic holography", *Proc. of SPIE* **7213**, 72130I (2009)
114. Bouchta Sahraoui, Mindaugas Pranaitis, Konstantinos Iliopoulos, Maria Mihaly, Alina F. Comanescu, "Enhancement of linear and nonlinear optical properties of deoxyribonucleic acid-silica thin films doped with rhodamine", *Applied Physics Letters* **99**, 243304 (2011)
115. Vaidotas Kažukauskas, Mindaugas Pranaitis, Andrius Arlauskas, Oksana Krupka, Zaccaria Essaidi, Bouchta Sahraoui, Francois Kajzar, "Functional Properties of Thin Films of Deoxyribonucleic Acid with Poly(3,4-ethylenedioxythiophene) and Poly(styrenesulfonate) Complex and Bistability of Their Photocurrent", *Materials Science*, **16**, 3 (2010)
116. J. Mysliwiec, A. Miniewicz, I. Raua, O. Krupka, B. Sahraoui, F. Kajzar, J. Grote, "Biopolymer-based material for optical phase conjugation", *Journal Of Optoelectronics And Advanced Materials* **10**, 8 (2146 – 2150) (2008)
117. I. Dancus, S.T. Popescu, A. Petris, "Single shot interferometric method for measuring the nonlinear refractive index", *Optics Express* **21** (25), 31303-31308 (2013)
118. I. Dancus, S.T. Popescu, A. Petris, "Interferometric measurement of light induced refractive index changes", Fourth International Conference "Modern Lasers and Applications", Bran, Romania (2014)
119. A. Petris, S. T. Popescu, P. Gheorghe, I. Dancus, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, A. M. Manea, A. Tane, A. Meghea, "Light-induced spatial phase modulation in dye-doped DNA systems studied by a single shot interferometric method", 4<sup>th</sup> Intl. Workshop on

Advanced, Nano- and Biomaterials and Their Appl. & 3<sup>rd</sup> French-Romanian Topical Meeting on Nano and Biomaterials, Iasi, Romania (2014)

120. M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, "Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry", J. Opt. Soc. Am. **72**(1), 156–160 (1982)
121. V. I. Vlad and D. Malacara, "Direct spatial reconstruction of optical-phase from phase-modulated images", Progress in Optics **33**, 261–317 (1994)
122. W. W. Macy, "Two-Dimensional Fringe-Pattern Analysis", Appl. Optics **22**, 3898-3901 (1983)
123. M. Takeda, "Fourier fringe analysis and its application to metrology of extreme physical phenomena: a review", Appl. Optics **52**, 20-29 (2013)
124. B. Zhao, and A. Asundi, "Criteria for phase reconstruction using Fourier transformation method", Image Reconstruction from Incomplete Data **4123**, 269-278 (2000)
125. T. J. Flynn, "Two-dimensional phase unwrapping with minimum weighted discontinuity", J. Opt. Soc. Am. A **14**, 2692-2701 (1997)
126. A. Petris, P. Gheorghe, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, "Interferometric method for the study of spatial phase modulation induced by light in dye-doped DNA complexes", Romanian Reports in Physics, **67** (4), P. 1373–1382 (2015)
127. P. Gheorghe, A. Petris, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, A. M. Manea, "Temporal evolution of the laser recording of gratings in DNA-CTMA-RH610 films", Romanian Reports in Physics, **67** (4), P.1412–1420 (2015)
128. Ana-Maria Manea, "Nanostructured materials based on natural extracts with potential applications in therapy and biophotonics", PhD Dissertation, University Politehnica of Bucharest (2014)

## LISTA DE LUCRARI STIINTIFICE

### **Lucrari stiintifice publicate in reviste cotate ISI si Proceeding-uri indexate ISI:**

1. A. Petris, **P. Gheorghe**, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, "Interferometric method for the study of spatial phase modulation induced by light in dye-doped DNA complexes", Romanian Reports in Physics, **67** (4), P. 1373–1382 (2015)
2. **P. Gheorghe**, A. Petris, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, A. M. Manea, "Temporal evolution of the laser recording of gratings in dna-ctma-rh610 films", Romanian Reports in Physics, **67** (4), P.1412–1420 (2015)
3. S.T. Popescu, **P.S. Gheorghe**, A. Petris, "Measuring very low optical powers with a common camera.", Appl. Opt. **53** (24), 5460-5464 (2014)
4. S. Frunza, I. Zgura, L. Frunza, O. Rasoga, **P. Gheorghe**, A. Petris, V.I. Vlad "Covering obliquely deposited Siox with Polyvinyl Carbazole changes the orientation properties.", Romanian Journal of Physics. **59** (7-8), (2014)
5. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, **P. S. Gheorghe**, "Study of the third-order nonlinear optical properties of nano-crystalline porous silicon using a simplified Bruggeman formalism", J. Optoelectron. Adv. M. **11** (6), 820-825 (2009)
6. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, **P.S. Gheorghe**, E. Fazio, "Describing third-order nonlinear optical properties of nanocrystalline porous silicon using Bruggeman model," Lasers and Electro-Optics 2009 and the European Quantum Electronics Conference. CLEO Europe - EQEC 2009, pp.1-1, 14-19 June 2009, doi: 10.1109/CLEOE-EQEC.2009.5191491
7. I. Dancus, A. Petris, **P.S. Doia**, E. Fazio, V.I. Vlad, "Z-Scan Measurement of Thermal Third Order Optical Nonlinearities", Proc. SPIE **6785**, 67850T1-6 (2007)
8. **P. Doia**, A. Petris, I. Dancus and V.I. Vlad, "Confocal microscopy for visualization and characterization of porous silicon samples", Proc. SPIE **6785**, 67850P1-6 (2007)
9. T. Bazaru, I. Dancus, **P.S. Doia**, A. Petris, V.I. Vlad, "Multiple-pass Z-scan for Characterization of the Partial Transparent Nonlinear Optical Materials", Proc SPIE **5581**, 649-653 (2004)

### **Lucrari stiintifice prezentate la Conferinte Internationale:**

1. A. Petris, **P. Gheorghe**, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, "Interferometric method for the study of spatial phase modulation induced by light in dye-doped DNA complexes", 11<sup>th</sup> International Conference on Optics "Micro- to Nano-photonics" ROMOPTO, Bucuresti, Romania (2015)
2. **P. Gheorghe**, A. Petris, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, A. M. Manea, "Analysis of the recording process of laser induced gratings in dye-doped DNA", 11<sup>th</sup> International Conference on Optics "Micro- to Nano-photonics" ROMOPTO, Bucuresti, Romania (2015)
3. T. Bazaru Rujoiu, **P.S. Gheorghe**, I. Dancus, A. Petris, V.I. Vlad, I. Rau, A. Tane, F. Kajzar, A. Meghea, "The third-order nonlinear optical response of Rhodamine 610-doped DNA-CTMA complex" (Poster), International Conference "Modern Lasers and Applications" 4<sup>th</sup> edition, Bran, Romania (2014)
4. **P. Gheorghe**, A. Petris, V.I. Vlad, I. Zgura, S. Frunza, L. Frunza, "Diffraction on dynamic gratings induced by laser in 5CB liquid crystals doped with DY7 dye" (Poster), International Conference "Modern Lasers and Applications" 4<sup>th</sup> edition, Bran, Romania (2014)
5. S.T. Popescu, **P.S. Gheorghe**, A. Petris, "Measuring very low optical powers using a commercial CMOS camera" (Poster), International Conference "Modern Lasers and Applications" 4<sup>th</sup> edition, Bran, Romania (2014)

6. T. Bazaru Rujoiu, **P.S. Gheorghe**, I. Dancus, A. Petris, V.I. Vlad, I. Rau, A. Tane, F. Kajzar, A. Meghea, "The third-order optical nonlinearities of dye-doped DNA surfactant complex", Winter College on Optics: Fundamentals of Photonics - Theory, Devices and Applications, Trieste, Italy, (2014)
7. A. Petris, S. T. Popescu, **P. Gheorghe**, I. Dancus, V. I. Vlad, I. Rau, F. Kajzar, A. M. Manea, A. Tane, A. Meghea, "Light-induced spatial phase modulation in dye-doped DNA systems studied by a single shot interferometric method" (Invited Paper), Fourth International Workshop on Advanced, Nano- and Biomaterials and Their Applications & Third French-Romanian Topical Meeting on Nano and Biomaterials, Iasi, Romania (2014)
8. **P. Gheorghe**, A. Petris, V. I. Vlad, "Photoinduced diffraction gratings in As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>", International Student Conference on Photonics, Orastie, Romania (2014)
9. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, **P. S. Gheorghe**, E. Fazio, Describing third-order nonlinear optical properties of nanocrystalline porous silicon using Bruggeman model, 2009 Conference on Lasers & Electro-Optics Europe & 11<sup>th</sup> European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC Conference) (2009)
10. A. Petris, V.I. Vlad, **Petronela Gheorghe**, "Complex laser induced gratings in As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>", "Industrial Applications of Lasers - INDLAS 2008", Bran, Romania (2008)
11. V.I. Vlad, A. Petris, **Petronela Doia**, Ioan Dancus and Tatiana Bazaru, "Report on both platform and project oriented activities as well as main industrial interests", PhOREMOST Workshop "Advances in Nanophotonics", Rome, Italy, (2007)
12. I. Dancus, V.I. Vlad, A. Petris, N. Gaponik, A. Shavel, **Petronela Doia**, Z-Scan Measurement of the CdTe QD Nonlinear Refractive Index avoiding Thermo-Optical Effects, PhOREMOST Workshop "Advances in nanophotonics", Istanbul (Turcia) (2007)
13. V.I. Vlad, A. Petris, Tatiana Bazaru, **Petronela Doia** and I. Dancus, Report assessing the potential of different nanostructure nonlinearities in photonic functionalities, PhOREMOST Workshop "Advances in Nanophotonics", Rome, Italy, (2007)
14. V.I. Vlad, A. Petris, V. Babin, **P.S. Doia**, T. Bazaru, I. Dancus, "Report on both platform and project oriented activities as well as main industrial interests", PHOREMOST General Assembly Meeting ", Strasbourg (2006)
15. T. Bazaru, **P.S. Doia**, I. Dancus, V. Iancu, Magdalena L. Ciurea, M. Udrea, A. Petris, V.I. Vlad, "Optical studies of silicon subwavelength- and nano-structures", Proc. 2d Annual Workshop "Advances in Nanophotonics", Vilnius, Lithuania (2006)
16. I. Dancus, A. Petris, **P. Doia**, N. Gaponik, A. Shavel, E. Fazio, V.I. Vlad, "Z-scan Measurements of Third-Order Optical Nonlinearities of CdTe Colloidal Q-Dots", Proc. 2d Annual Workshop "Advances in Nanophotonics", Vilnius, Lithuania (2006)
17. **P. Doia**, A. Petris, I. Dancus, V.I. Vlad, "Confocal microscopy for visualization and characterization of porous silicon samples", Proc. SPIE "ROMOPTO 2006", Sibiu, (2006)
18. I. Dancus, A. Petris, **P.S. Doia**, E. Fazio, V.I. Vlad, "Z-Scan Measurement of Thermal Third Order Optical Nonlinearities", Proceeding SPIE "ROMOPTO 2006", Sibiu, (2006)
19. V.I. Vlad, A. Petris, V. Babin, N. Ionescu-Pallas, T. Bazaru, **P. Doia**, I. Dancus, Optical Nonlinearities in Subwavelength Structures, First Annual Workshop "Advances in Nanophotonics" Heraklion, Greece (2005)
20. T. Bazaru, I. Dancus, **P.S. Doia**, A. Petris, V.I. Vlad, "Multiple-pass Z-scan for Characterization of the Partial Transparent Nonlinear Optical Materials", 7<sup>th</sup> International Conference on Optics ROMOPTO, Constanta, Romania (2003)

#### **Lucrari stiintifice prezentate la Conferinte Nationale:**

1. T. Bazaru, V.I. Vlad, A. Petris, **P. S. Gheorghe**, "Proprietati optice neliniare de ordinul trei ale Si nanostructurat", National Seminar of Nanoscience and nanotechnologies, Bucharest, Romania (2009)