UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS

"MISTURA DE DUAS ONDAS QUASE DEGENERADAS EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS"

Josias Cavalcanti Penaforte

Tese apresentada ao Instituto de Física e Química de São Carlos, Universidade de São Paulo, para obtenção do Título de Doutor em Ciências – Física Básica

ORIENTADOR: *Prof. Dr. Sérgio Carlos Zilio*

DEPARTAMENTO DE FÍSICA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS

SÃO CARLOS

1991

[redacted]

194

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS

MEMBROS DA COMISSAO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE JOSIAS CAVALCANTE PENAFORTE APRESENTADA AO INSTITUTO DE FISICA E QUIMICA DE SAO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SAO PAULO, EM 19.12.91

COMISSAO JULGADORA:

Prof.Dr.Sergio Carlos Zilio

Prof.Dr.Lidério Citrângulo Ioriatti Junior

Prof.Dr.Hugo Luiz Fragnito

Prof.Dr.Daniel Pereira

Prof.Dr.Salomão Salvador Mizrahi

Cx. Postal, 369 - FONE (0162) 71-1016 - Fax (0162) 72-2218 - CEP 13560 - São Carlos - SP - Telex 162374 - FQSC - BR - BRASIL

À *Iolanda* pela dedicação,
compreensão e carinho,
à memória de *meu pai*,
à *minha mãe*
e à *Joelma*

AGRADECIMENTOS

- Ao *Prof. Sérgio Carlos Zilio*, pela orientação deste trabalho e principalmente pela amizade.
- Ao *Prof. José Pedro Andreeta* pelos cristais de $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, gentilmente cedidos.
- Ao *Sílvio Tonissi* pela ajuda indispensável na parte eletrônica deste trabalho, pela convivência e amizade.
- Aos amigos *E. A. Gouveia, M. J. Bell ("Pepa")* e ao *Luimar C. de Oliveira*, pelas discussões e sugestões e pela ajuda nas medidas.
- Aos amigos *José Leonil Duarte* e *Tomaz Catunda* pela convivência e incentivo.
- Aos *funcionários das Oficinas de Óptica e Mecânica* pelos cuidados e presteza na confecção de componentes e peças.
- Ao *Gilberto, Paulinho, Romão e Rui* pelo apoio técnico.
- Aos *professores e colegas do Grupo de Óptica* e à *Izabel* pela excelente acolhida que me proporcionaram.
- Aos *demais professores, colegas e funcionários do DFCM* que colaboraram na realização deste trabalho em especial às *funcionárias da Biblioteca* e à *"Tide"* pela eficiência e atenção.
- À *Irene* pela presteza, eficiência e rapidez na digitação e impressão deste trabalho.
- À *Universidade Federal da Paraíba* e à *CAPES/PICD* pelo suporte financeiro.

ÍNDICE

RESUMO I

ABSTRACT II

I – INTRODUÇÃO 01

I.1 – REFERÊNCIAS 04

II – PROCESSOS ÓPTICOS NÃO LINEARES 05

II.1 – INTRODUÇÃO 05

II.2 – ORIGENS DA NÃO LINEARIDADE 05

II.3 – DESCRIÇÃO DA NÃO LINEARIDADE 06

II.4 – CÁLCULO DOS CAMPOS 08

II.5 – PROCESSOS NÃO LINEARES ESPECÍFICOS 10

II.6 – REFERÊNCIAS 12

III – TRATAMENTO CONVENCIONAL DA M2O 13

III.1 – INTRODUÇÃO 13

III.2 – FORMAÇÃO DA REDE 14

III.3 – EQUAÇÕES BÁSICAS 17

III.4 – REFERÊNCIAS 21

IV – MISTURA DE DUAS ONDAS NÃO DEGENERADAS EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS 22

IV.1 – INTRODUÇÃO 22

IV.2 – A GRADE DE POPULAÇÃO 23

IV.3 – EQUAÇÕES BÁSICAS 26

IV.4 – A M2O COMO UM CASO PARTICULAR DA AUTO-DIFRAÇÃO 29

IV.5 – REFERÊNCIAS 33

V - DESCRIÇÃO DO EXPERIMENTO DE M2O E PROPRIEDADES DAS AMOSTRAS 34
V.1 - INTRODUÇÃO 34
V.2 - DESCRIÇÃO DA MONTAGEM EXPERIMENTAL 34
V.3 - ESTRUTURA CRISTALINA E CARACTERÍSTICAS ESPECTROSCÓPICAS DAS AMOSTRAS 39
V.3.1 - RUBI ($Al_2O_3 : Cr^{3+}$) 39
V.3.2 - ALEXANDRITA ($BeAl_2O_4 : Cr^{3+}$) 41
V.3.3 - ALUMINATO DE GADOLÍNIO DOPADO COM CROMO ($GdAlO_3 : Cr^{3+}$) 42
V.4 - REFERÊNCIAS 45
VI - RESULTADOS EXPERIMENTAIS 47
VI.1 - INTRODUÇÃO 47
VI.2 - RESULTADOS DA M2O PARA O RUBI 47
VI.3 - RESULTADOS DA M2O PARA A ALEXANDRITA 52
VI.4 - RESULTADOS DA M2O PARA O $GdAlO3 : Cr^{3+}$ 55
VI.5 - REFERÊNCIAS 61
VII - CONCLUSÕES 62
VII.1 - REFERÊNCIAS 66
APÊNDICE A 67
APÊNDICE B 73

RESUMO

Neste trabalho utilizamos a técnica de mistura de duas ondas quase degeneradas na investigação das propriedades ópticas não lineares, associadas à mudança de índice de refração com a intensidade da luz, em materiais dopados com cromo: $Al_2O_3 : Cr^{3+}$ (rubi), $BeAl_2O_4 : Cr^{3+}$ (alexandrita) e $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ (aluminato de gadolínio dopado com cromo. A não linearidade Kerr para o $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ é bastante significativa, de modo que neste material o parâmetro de ganho do feixe de prova apresenta um comportamento muito peculiar e que não encontra explicação nos tratamentos teóricos usuais do processo de mistura de duas ondas. Em particular, o ganho do feixe de prova neste material atinge percentuais superiores a 200%. Desta forma, desenvolvemos um tratamento teórico que descreve a mistura de duas ondas quase degeneradas em meios onde o índice de refração depende da intensidade ($n = n_0 + n_2 I$). Esta abordagem teórica leva em consideração os efeitos de saturação da grade de população produzida pela intersecção dos feixes de luz no meio Kerr (não harmonicidades da grade) e o processo de mistura de duas ondas é considerado como um caso particular do fenômeno da auto-difração – difração de ordem zero. Os resultados teóricos foram comparados com os resultados experimentais e várias previsões teóricas como, a dependência do parâmetro de ganho do feixe de prova com a intensidade de saturação do meio, a dependência da diferença de freqüência entre os dois feixes incidentes onde o ganho é máximo com a intensidade do feixe de bombeamento, foram confirmadas experimentalmente.

ABSTRACT

In this work nearly degenerate two-wave mixing technique is used in order to investigate nonlinear optical properties, associated to the refractive index change by incident light, in a few doped crystals: $Al_2O_3 : Cr^{3+}$ (ruby), $BeAl_2O_4 : Cr^{3+}$ (alexandrite) and $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ (gadolinium aluminate chromium doped). The Kerr nonlinearity in $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ is very high, so that the probe gain parameter has peculiar behaviour in this material and this cannot be explained by using the current approach found in the literature. In particular, the probe gain parameter in this material reaches percentuals above 200%. In this way, we develop a theoretical approach which describes nearly degenerate two-wave mixing in media where the refractive index is intensity dependent. This theoretical approach takes into account the saturation of the travelling population grating produced by two intersecting beams (anharmonicities of the population grating) and the two-wave mixing process is regarded as the zero-order self-diffraction of the incident waves in this grating. The theoretical results are compared with the experimental ones and several theoretical predictions such as, the dependence of the probe gain parameter on the medium saturation intensity were experimentally verified.

I - INTRODUÇÃO

O estudo de vários fenômenos ópticos de natureza não linear, associados à mudança de índice de refração com a intensidade da luz, tem sido motivo de investigações por diversas técnicas de espectroscopia não linear. A não linearidade do meio deve-se à diferença de susceptibilidade entre os estados fundamental e excitado e na dependência da população destes estados com a intensidade do campo de radiação. Em particular, materiais dopados com cromo têm sido amplamente estudados principalmente pelas técnicas de mistura de quatro ondas, M4O, [1-3] e mistura de duas ondas, M2O, [4-6].

A técnica de M2O, está baseada na troca de energia entre dois feixes de luz coerente que se interceptam dentro do meio não linear. A interferência entre as duas ondas resulta numa modulação espacial da susceptibilidade óptica e o processo de transferência de energia ocorre quando a grade de população induzida no meio e o padrão de interferência dos feixes estão defasados. Em materiais fotorefrativos [7], o sinal de M2O é facilmente observado pois uma defasagem de 90°, resulta do processo de formação da grade. Em meios Kerr, onde o índice de refração é dependente da intensidade, $n = n_0 + n_2 I$, com n_2 sendo uma quantidade complexa, a transferência de energia só acontece se a grade é absortiva. Por outro lado, se o índice de refração não linear do meio é um número real puro, a grade é completamente dispersiva e não há o processo de transferência de energia entre os feixes [8]. Contudo, este obstáculo pode ser contornado pela introdução artificial de uma defasagem entre os padrões da grade de população e de interferência dos feixes. A forma mais usual de produzir esta defasagem é pelo deslocamento de um espelho montado sobre um transdutor piezoelétrico (PZT), que produz via efeito Doppler uma pequena diferença de freqüência entre os dois feixes.

Do ponto de vista teórico, a M2O pode ser descrita por meio de ondas acopladas, onde um par de equações de onda escalares possui solução analítica [9], maiores detalhes desta abordagem são apresntados no capítulo III. Além desta abordagem, existem outras formas

de tratar o processo de M2O, como por exemplo, a proposta de Y. Silberberg e I. Bar-Joseph [8], ou a sua extensão no sentido da inclusão dos efeitos da absorção como considerado por M. Kramer et al [10]. Entretanto, estas abordagens não descrevem apropriadamente efeitos de saturação, como por exemplo: a saturação do índice de refração não linear ou a saturação do tempo de resposta do meio. Embora alguns resultados recentes [11-13] levem em conta esses efeitos, as suas aplicações estão restritas à descrição do parâmetro de ganho do feixe de prova em meios onde este ganho é baixo.

Um dos objetivos deste trabalho foi de investigar, via M2O, alguns materiais dopados com cromo: $Al_2O_3 : Cr^{3+}$ (rubi), $BeAl_2O_4 : Cr^{3+}$ (alexandrita) e $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ (aluminato de gadolínio dopado com cromo). Embora a alexandrita e principalmente o rubi tenham sido amplamente estudados por diversas técnicas de espectroscopia não linear, o nosso interesse foi além daquele de simplesmente reproduzir os resultados já apresentados na literatura [4,5,14]. Quanto ao $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, era de se esperar um comportamento interessante visto que, a parte imaginária do índice de refração não linear deste material é uma ordem de grandeza maior do que aquela do rubi. Portanto, este material deveria ser interessante para estudos em óptica não linear, como de fato o demonstrou ser. O comportamento do parâmetro de ganho do feixe de prova no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ [15], ao contrário do rubi e da alexandrita, mostrou-se bastante peculiar no sentido de que não só este ganho assume percentuais muito superiores aos do rubi e alexandrita, bem como à luz dos tratamentos existentes a curva de ganho só é explicada se a razão $r = n_2''/n_2'$, apresentar uma dependência com a intensidade do feixe de bombeamento. Desta forma, um outro objetivo deste trabalho tornou-se o de explicar tal comportamento, a partir de um tratamento teórico que também explicasse a dependência correta do parâmetro de ganho com a intensidade de saturação. A razão da escolha da técnica de M2O para o estudo das propriedades ópticas não lineares desses materiais, deveu-se à mesma apresentar um baixo custo operacional, além de se constituir numa ferramenta poderosa uma vez que, o sinal observado (o próprio feixe de prova transmitido), pode ter as contribuições de origem dispersiva ou absortiva determinadas separadamente [5], eliminando

portanto, qualquer ambigüidade quanto a natureza da grade induzida no meio. No capítulo II, apresentamos uma breve introdução acerca dos processos ópticos não lineares, onde discutimos a origem da não linearidade e sua manipulação matemática no cálculo dos campos. No capítulo III, fazemos uma discussão teórica do processo de M2O, baseada no modelo de relaxação de Debye, onde este fenômeno é tratado sob o ponto de vista de ondas acopladas através da susceptibilidade não linear do meio e o par de equações resultante possui solução exata [10]. No capítulo IV, apresentamos uma abordagem alternativa àquela do capítulo III, baseada no fenômeno da auto-difração [16] e cujas características principais são: (*i*) descreve o comportamento do parâmetro de ganho do feixe de prova para meios que em particular apresentam um alto fator de ganho; (*ii*) descreve corretamente a dependência do parâmetro de ganho com a intensidade de saturação do meio; (*iii*) prevê o deslocamento do pico da curva de ganho em função da intensidade do feixe de bombeamento, (*iv*) introduz naturalmente a absorção do estado excitado nos mecanismos de perda de intensidade do feixe de prova e finalmente, embora não menos importante, (*v*) simplifica fundamentalmente o tratamento matemático, visto que as equações que descrevem a evolução dos campos ao longo do meio são equações diferenciais lineares, ao contrário do que ocorre nas abordagens convencionais onde as equações resultantes são equações diferenciais não lineares acopladas. No capítulo V, descrevemos a montagem experimental e de forma muito breve, apresentamos algumas características quanto a estrutura cristalina e propriedades espectroscópicas das amostras usadas neste trabalho. No capítulo VI, apresentamos os resultados experimentais da M2O e os respectivos ajustes teóricos a partir dos quais são obtidos os valores das partes real e imaginária do índice de refração não linear, intensidade de saturação e o tempo de resposta dos materiais estudados, enquanto no capítulo VII, tecemos as considerações finais e apresentamos algumas sugestões para futuros trabalhos, onde alguns já se encontram em desenvolvimento.

I.1 – REFERÊNCIAS

[1] S. C. Weaver e S. A. Payne, Phys. Rev. B**40**, 10727 (1989)

[2] R. C. Powell e S. A. Payne, Opt. Lett. , **15**, 1233 (1990)

[3] T. Catunda e J. C. Castro, Opt. Commun. **63**, 185 (1987)

[4] I. McMichael, P. Yeh e P. Beckwith, Opt. Lett. **13**, 500 (1988)

[5] S. A. Boothroyd, . C. Chrostowski e M. S. O'Sullivan, J. Opt. Am. B**6**, 766 (1989)

[6] S. A. Boothroyd, J. C. Chrostowski e M. S. O'Sullivan, Opt. Lett. **14**, 946 (1989)

[7] D. L. Staebler e J. J. Amodei, J. Appl. Phys. **43**, 1042 (1972)

[8] Y. Silberberg e I. Bar-Joseph, J. Opt. Soc. Am. B**1**, 662 (1984)

[9] P. Yeh, J. Opt. Soc. Am. B**3**, 747 (1986)

[10] M. A. Kramer, W. R. Tompkin e R. W. Boyd, Phys. Rev. A**34**, 2026 (1986)

[11] H. Zhou, X. Mi, Q. Jiang, R. Zhang e P. Ye, Opt. Commun. **78**, 382 (1990)

[12] S. C. Zilio, J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e M. J. V. Bell, Opt. Commun. **86**, 81 (1991)

[13] H. Fujiwara, K. Shio e S. Miyanaga, J. Opt. Soc. Am. B**6**, 1740 (1991)

[14] G. D. Gilliland, A. Suchocki, K. W. Ver Steeg, R. C. Powell e D. F. Heller, Phys. Rev. B**38**, 6227 (1988)

[15] J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e S. C. Zilio, Opt. Lett. **16**, 452 (1991)

[16] H. L. Fragnito, S. F. Pereira e A. Kiel, J. Opt. Soc. Am. B**4**, 1309 (1987)

II – PROCESSOS ÓPTICOS NÃO LINEARES

II.1 – INTRODUÇÃO

As investigações em óptica não linear estão envolvidas fundamentalmente com a resposta do meio quando submetido à radiação eletromagnética muito intensa (de intensidade comparável a intensidade do campo elétrico atômico). Em outras palavras, a óptica não linear preocupa-se em descrever como as propriedades ópticas da matéria variam em função da intensidade dos campos eletromagnéticos que nela incidem e como estes campos interagem entre si através do meio.

Interações não lineares podem mudar certas características das ondas incidentes como por exemplo, direção de propagação ou podem originar o surgimento de novas ondas eletromagnéticas que oscilam em freqüências diferentes das ondas incidentes ou de novas ondas que, embora oscilando na mesma freqüência diferem daquelas incidentes quanto a direção de propagação ou polarização. Interações não lineares podem ser usadas para controlar ou mesmo variar determinadas propriedades da radiação laser tais como: duração e intensidade do pulso ("Q-switch"), comprimento de onda (Geração de harmônicos), modulação do perfil do feixe (auto-modulação de fase e auto-focalização), compensação de distorções na qualidade óptica do feixe originárias da baixa qualidade óptica do sistema (Conjugação de fase) e em especial as interações não lineares encontram forte uso em estudos espectroscópicos (Mistura de ondas).

II.2 – ORIGENS DA NÃO LINEARIDADE ÓPTICA

Quando uma onda eletromagnética se propaga através de um meio ela induz, de modo geral, uma polarização e uma magnetização resultante do movimento de cargas elétricas do

meio, em resposta ao campo eletromagnético da onda incidente. Para baixas intensidades, estas polarizações e magnetizações são proporcionais aos campos elétrico e magnético das ondas incidentes e a resposta do meio à excitação é linear. No entanto, quando a intensidade da radiação incidente é suficientemente alta para mudar a resposta do meio, com relação a seu comportamento à baixas intensidades, surgem então os efeitos não lineares. Algumas interações não lineares surgem do movimento de cargas elétricas em resposta à excitação do meio por campos fortes. Na maioria dos materiais, os elétrons e íons estão sujeitos à poços de potencial que podem ser considerados harmônicos se estas cargas se deslocam muito pouco de sua posição de equilíbrio, ou não harmônicos se o deslocamento em torno da posição de equilíbrio é grande. Se a intensidade do campo de radiação é baixa o elétron ou íon irá se movimentar na parte harmônica do poço de potencial e neste caso, as polarizações assim induzidas oscilam com a mesma freqüência da onda incidente e a resposta do meio é considerada linear. Quando a intensidade da radiação é suficientemente alta para que as cargas elétricas sejam conduzidas até a parte não harmônica do poço de potencial, a presença de termos adicionais na função energia potencial induz polarizações que podem depender de potências de ordens superior à de primeira ordem nos campos incidentes.

As propriedades ópticas de um material são descritas no limite de campo fraco e portanto, são consideradas como propriedades intrínsicas do meio. Contudo, quando o campo óptico é bastante forte, ele pode mudar determinadas características do meio que por sua vez afetam a própria onda, resultando então numa resposta não linear do meio. Um exemplo deste tipo de resposta é a mudança no índice de refração do meio induzida pela luz (efeito Kerr).

II.3 – DESCRIÇÃO DA NÃO LINEARIDADE

Como é bem conhecido, a propagação de uma onda eletromagnética num determinado meio é descrita pelas equações de Maxwell, onde estão incluídos os efeitos das polarizações

e magnetizações induzidas no meio e naturalmente a dependência destas polarizações e magnetizações com o próprio campo eletromagnético. Estas relações são denominadas de relações constitutivas. Das equações de Maxwell resulta então

$$\nabla^2\vec{E}(\vec{r},t) - \mu_0\varepsilon\frac{\partial^2\vec{E}(\vec{r},t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}(\vec{r},t)}{\partial t^2} + \frac{\partial}{\partial t}\left[\nabla X\vec{M}(\vec{r},t)\right] \tag{1}$$

onde $\vec{E}(\vec{r},t)$ é o vetor campo elétrico da onda incidente no meio, $\vec{P},(\vec{r},t)$ é a polarização elétrica generalizada (incluindo não somente a contribuição do tipo dipolo elétrico como contribuições de multipolos), $\vec{M},(\vec{r},t)$ é a magnetização do meio, μ_0 é a permeabilidade magnética do meio e ε é a permissividade dielétrica do meio. Neste trabalho, vamos considerar o meio como sendo não magnético ($\mu = \mu_0$), de modo que a contribuição magnética é nula.

O problema da propagação de uma onda num meio qualquer é completamente especificado quando a relação constitutiva entre a polarização e o campo elétrico da onda é conhecida. Em geral, esta relação é muito complicada tornando o problema de difícil solução. Entretanto, um conjunto de suposições permite que para várias situações físicas a polarização induzida no meio, seja escrita na forma de uma série de potências do campo elétrico da luz incidente

$$P = \varepsilon_0\chi^{(1)}E + \varepsilon_0\chi^{(2)}E^2 + \varepsilon_0\chi^{(3)}E^3 + \ldots \tag{2}$$

$$+\varepsilon_0 Q^{(1)}\nabla E + \varepsilon_0 Q^{(2)}\nabla E^2 + \ldots$$

Este tipo de expressão é válida quando os campos ópticos são pouco intensos comparados aos campos que aprisionam as cargas ao meio e quando os coeficientes da expansão independem, num amplo intervalo, das freqüências dos campos incidentes e das freqüências das ondas geradas. Quando a primeira destas condições não é satisfeita, como no

caso de radiação muito intensa, a série de potências não converge e se faz necessário usar todos os termos da expansão. Quando a segunda condição não é satisfeita, geralmente para os casos ressonantes, cada termo da expansão envolve produtos convolutivos dos campos incidentes. Os coeficientes da expansão da polarização, $\chi^{(n)}$, são denominados de susceptibilidade de n-ésima ordem e cuja origem reside nas interações do tipo dipolo elétrico, enquanto $Q^{(n)}$ representa a contribuição à susceptibilidade das interações quadrupolares. Para a maioria das interações não lineares as interações do tipo dipolo elétrico são dominantes, uma vez que o comprimento de onda da radiação é muito maior do que o deslocamento da carga em torno de sua posição de equilíbrio. Em algumas situações, as susceptibilidades originárias das interações quadrupolares podem fornecer uma contribuição significante como ocorre por exemplo na geração de segundo harmônico em meios que possuem simetria de inversão.

A susceptibilidade não linear tem um caráter tensorial e como tal relacionam as componentes da polarização não linear às componentes dos campos. Por exemplo, a polarização de segunda ordem é dada por

$$P_i = \varepsilon_0 \chi^{(2)}_{ijk} E_j E_k,$$

onde os índices i, j, k representam as coordenadas espaciais x, y e z. Os tensores $\chi^{(n)}$ guardam em si as propriedades de simetria do meio embora, na suposição de que o meio seja isotrópico a susceptibilidade $\chi^{(n)}$ é tratada como uma quantidade escalar.

II.4 – CÁLCULO DOS CAMPOS

A fim de calcular os campos envolvidos no processo de interação vamos supor que o campo elétrico seja descrito por uma onda plana

$$E(z,t) = \frac{1}{2}\left[\epsilon(z,t)e^{i(kz-\omega t)} + c.c\right], \tag{3}$$

onde $\epsilon(z,t)$ é a amplitude da onda que se propaga ao longo da direção z, com uma freqüência ω e um vetor de onda $k = 2\pi n/\lambda$, onde λ é o comprimento de onda no vácuo e n é o índice de refração linear do meio, enquanto $c.c$ representa o complexo conjugado. Vários efeitos não lineares envolvem a interação de dois ou mais campos de comprimento de ondas diferentes, desta forma o campo total no meio é escrito como

$$E(z,t) = \frac{1}{2}\sum_{\ell}\left[\epsilon_{\ell}(z,t)e^{i(k_{\ell}z-\omega_{\ell}t)} + c.c\right], \tag{4}$$

o índice de soma ℓ é estendido a todos os campos no problema, inclusive àqueles gerado no processo de interação.

A polarização não linear é escrita como sendo

$$P(z,t) = \frac{1}{2}\sum_{\ell}\left[P_{\ell}(z,t)e^{i(k_{\ell}z-\omega_{\ell}t)} + c.c\right], \tag{5}$$

onde $P_{\ell}(z,t)$ é a amplitude da polarização não linear com freqüência ω. A polarização não linear é determinada por meio de uma combinação apropriada entre os campos e a susceptibilidade não linear de acordo com a expansão dada em (2). A polarização atua como um termo de fonte para um determinado campo que irá conseqüentemente oscilar na mesma freqüência que ela. O vetor de onda da polarização não linear k_{ℓ}, geralmente, é diferente do vetor de onda do campo correspondente. Esta diferença tem um papel relevante na eficiência do efeito não linear.

As amplitudes das várias ondas podem ser calculadas a partir das Eqs. (1) e (2), usando os campos e polarizações dados nas Eqs. (4) e (5). Na obtenção das equações para as amplitudes, uma suposição que simplifica bastante o problema considera que o envelope

do campo $\epsilon_\ell(z,t)$ varia suavemente no tempo e no espaço, comparado à freqüência e ao comprimento de onda da radiação. Esta aproximação permite que sejam desprezadas as derivadas de segunda ordem da amplitude do campo com relação às variáveis z e t. Quando esta aproximação é feita a equação diferencial de segunda ordem (1), reduz-se a uma equação mais simples de primeira ordem

$$2ik_\ell \frac{\partial \epsilon_\ell}{\partial z} + (n_\ell/c)\frac{\partial \epsilon_\ell}{\partial t} = -\mu_0 \omega_\ell^2 P_\ell e^{-i\Delta k_\ell z}, \tag{6}$$

onde a amplitude E_ℓ pode se referir tanto a amplitude de um dos campos incidentes ou a amplitude de um dos campos gerados na interação, Δk_ℓ é o vetor da defasagem entre o campo e a polarização ("phase mismatch"), isto é, entre o ℓ-ésimo campo e a polarização que o governa. A defasagem $\Delta k_\ell = k_{\ell(\text{campo})} - k_{\ell(\text{polarização})}$. O efeito não linear em estudo tem sua eficiência máxima quando $\Delta k_\ell \equiv 0$. O conjunto das Eqs. (6), juntamente com a Eq. (2) é usada para calcular os campos na maioria dos processos não lineares.

II.5 – PROCESSOS NÃO LINEARES ESPECÍFICOS

O termo em $\chi^{(2)}$ na Eq. (2) é responsável pelos efeitos de segunda ordem que também são chamados de mistura de três ondas. Devido à restrições quanto a simetria do meio, às susceptibilidades de ordem par, originárias de interações dipolares, se anulam em meios que possuem simetria de inversão. Desta forma, os processos de interações não lineares de segunda ordem são comumente observados em materiais que não apresentam este tipo de simetria. Alguns dos efeitos de segunda ordem são

- Geração de Segundo Harmônico - $\chi^{(2)}(2\omega;\omega;\omega)$
- Mistura Paramétrica - $\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2;\omega_1,\pm\omega_2)$
- Retificação Óptica - $\chi^{(2)}(0;\omega,-\omega)$

Na geração de segundo harmônico e mistura paramétrica, a eficiência da conversão (quão eficiente a nova polarização irradia) é determinada pelas condições de casamento de fase ("phase-matching"). O processo é eficiente quando a nova polarização é modulada em freqüência apropriada (satisfaz a conservação de energia) e além disso tem vetor de onda apropriado satisfazendo a conservação de momento.

Os efeitos de terceira ordem, cuja polarização é proporcional do termo de $\chi^{(3)}$ na Eq. (2), não apresentam restrições quanto a simetria do meio. Podemos afirmar, portanto, que os efeitos não lineares podem ser observados em meios que apresentam qualquer tipo de simetria. No entanto, estes efeitos são mais estudados em materiais que apresentam simetria de inversão uma vez que nestes meios, os efeitos de terceira ordem são os de ordem mais baixa. Alguns desses efeitos são:

- Mistura Degenerada de quatro Ondas - $Re\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega)$
- Mistura não Degenerada de quatro Ondas - $\chi^{(3)}(\omega_1+\omega_2\pm\omega_3;\omega_1,\omega_2,\pm\omega_3)$
- Espalhamento Raman - $\chi^{(3)}(\omega\pm\Omega;\omega,-\omega,\omega\pm\Omega)$

Nos capítulos a seguir, trataremos de um dos mais conhecidos efeitos de terceira ordem, o processo de Mistura de duas Ondas num meio tipo Kerr.

II.6 – REFERÊNCIAS

[1] N. Bloemberger, "Nonlinear Optics". Benjamin, N. York, 1965

[2] Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics". John Wiley & Sons, N. York, 1984

[3] A. Yariv, "Quantum Electronics". John Wiley & Sons, N. York, 1967

[4] A. Yariv, "Introduction to Optical Electronics". Holt, N. York, 1971

III – TRATAMENTO CONVENCIONAL DA M2O

III.1 – INTRODUÇÃO

Na investigação das propriedades não lineares de meios que possuem índice de refração linearmente dependente da intensidade (meios tipo Kerr), a técnica da M2O tem sido amplamente utilizada em virtude da mesma ser de fácil formulação matemática [1] e de baixo custo operacional, pois não é necessário um aparato experimental sofisticado para sua realização [2]. Além disso, esta técnica permite a obtenção de várias informações importantes acerca das propriedades ópticas do meio, partes real e imaginária do índice de refração não linear, intensidade de saturação do meio e o tempo de resposta do meio.

A M2O, mostrada esquematicamente na Fig. 3.1, consiste basicamente na superposição de dois feixes de luz coerente num meio não linear. A interferência dos dois feixes produz uma modulação da susceptibilidade do meio, originando desta forma uma grade de população a partir da qual o fenômeno da auto-difração pode ocorrer [3]. O processo de interação das duas ondas através desta grade, resulta num processo de transferência de energia desde que exista uma defasagem entre a grade de população e o padrão de interferência que a originou [4]. Com exceção dos materiais fotorefrativos, onde existe uma defasagem natural entre estes padrões [5], a grade de população e o padrão de interferência, geralmente estão em fase e desta forma não há transferência de energia. Entretanto, a defasagem entre esses padrões pode ser introduzida de diversas maneiras: mistura não degenerada de duas ondas, onde a não degenerescência entre os feixes é introduzida via efeito Doppler, por meio de um PZT [6] montado no espelho que irá refletir um dos feixes, por exemplo o feixe de prova; pela movimentação do próprio meio [7]; ou ainda, como no caso dos materiais semicondutores aonde se faz uso da força de Lorentz [8].

III.2 – FORMAÇÃO DA REDE

Num meio tipo Kerr, estas duas ondas geram um padrão de interferência que pode ser estacionário ou não, dependendo se as freqüências dos campos são iguais ou diferentes entre si. O padrão de interferência é descrito pela média temporal do campo de radiação dentro do meio $\langle \vec{E}^2 \rangle$, onde $\vec{E}$ é o campo elétrico total, $\vec{E} \doteq \vec{E}_1 + \vec{E}_2$, e a média é tomada num intervalo de tempo T que corresponde a vários períodos ópticos, ou seja, $\omega T >> 1$.

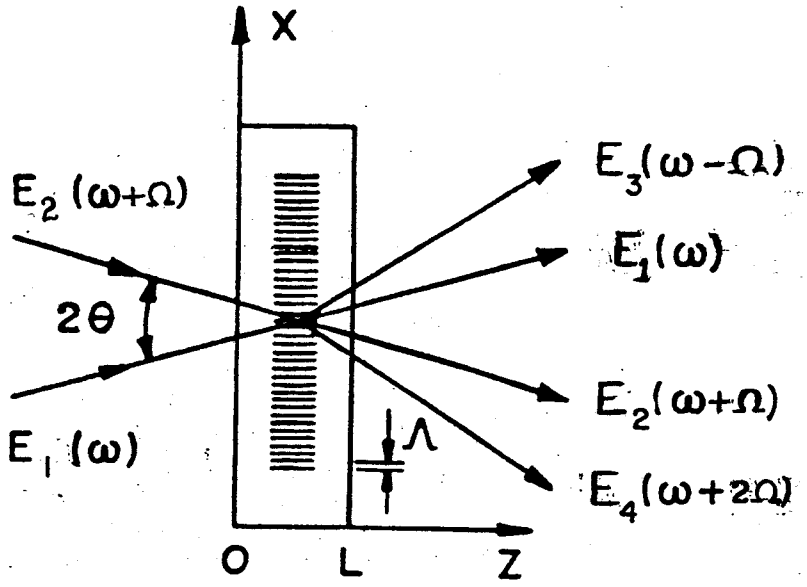


Fig. 3.1. Geometria da mistura de duas ondas. A freqüência do feixe de bombeamento, feixe 1, é ω, enquanto a freqüência do feixe de prova é $\omega+\Omega$, onde $\Omega << \omega$ é um deslocamento na freqüência do feixe de prova, introduzido de modo a induzir uma defasagem adicional entre o padrão de interferência e a grade de população. Os feixes 3 e 4 são os feixes difratados pela grade de população.

Supondo, por uma questão de simplicidade, que as duas ondas são planas e com a mesma polarização, os campos elétricos são escritos como

$$\vec{E}_j(\vec{r},t) = \frac{1}{2}\vec{E}_j(\vec{r},t)\exp\left[i(\omega_j t - \vec{k}_j.\vec{r})\right] + c.c. \ , \ j = 1,2 \tag{3.1}$$

onde $\vec{E}_j(\vec{r},t)$, representa a amplitude complexa do campo eletromagnético, ω_j e k_j são, respectivamente, a freqüência e o vetor de onda, enquanto que, *c.c.* denota o complexo conjugado de uma quantidade.

Como é bem conhecido, um meio tipo Kerr possui o índice de refração dependente da intensidade dos campos que incidem sobre ele, i.é.,

$$n = n_o + n_2 I, \tag{3.2}$$

onde, geralmente, n_2 é uma quantidade complexa e por questão de mera concordância com os resultados apresentados por I. McMichael et al [9], vamos adotar $n_2 = n_2' - in_2''$. O valor da mudança induzida no índice de refração do meio, em regime estacionário, pode ser deduzido a partir de um tratamento que considera o tempo de resposta do meio finito frente à velocidade de deslocamento do padrão de interferência [4]. A mudança induzida no índice de refração obedece a equação de relaxação de Debye [10]

$$\tau \frac{dn_{N_L}}{dt} + n_{N_L} = \tilde{n}_2 \langle E^2(t) \rangle, \tag{3.3}$$

com τ representando o tempo de relaxação da grade. A equação acima, tem como solução

$$n_{NL} = n_2 I = \frac{\tilde{n}_2}{\tau} \int_{-\infty}^{t} \langle E^2(t') \rangle \exp\left[(t'-t)/\tau\right] dt', \tag{3.4}$$

onde $\tilde{n}_2$, é o valor da mudança do índice de refração para o caso degenerado.

Substituindo $E = E_1 + E_2$, na Eq.(2.4) e realizando a integração obtemos a seguinte expressão para a componente não linear do índice de refração:

$$n_{NL} = \frac{(\tilde{n}_2' - i\tilde{n}_2'')}{2} \left[|E_1|^2 + |E_2|^2 + \left(\frac{E_1 E_2^*}{1+i\Delta} \exp[i(\Omega t - \vec{K}.\vec{r})] + c.c. \right) \right], \tag{3.5}$$

onde $\Delta = \Omega\tau = (\omega, -\omega_2)\tau$ é o produto da diferença de freqüência entre os feixes, e o tempo de resposta do meio ("detuning") e $\vec{K} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ é o vetor da grade. Os dois primeiros termos da expressão acima, representam uma mudança dc no índice de refração, enquanto os termos entre parenteses, mais conhecidos na literatura como termos holográficos, representam uma grade viajante que está fora de fase quando comparada com o padrão de interferência. Das expressões (3.5) e (3.2), temos a seguinte relação

$$n_2 \exp(i\psi) = \tilde{n}_2/(1 + i\Delta), \tag{3.6}$$

onde a fase ψ indica o grau de defasagem da grade de população com relação ao padrão de interferência. De modo geral n_2 e ψ são funções de Ω [11]. Da relação (3.6) temos ainda

$$\psi = -tg^{-1}\left(\frac{r + \Delta}{1 - r\Delta}\right), \tag{3.7}$$

com $r = \tilde{n}_2''/\tilde{n}_2'$. Note que esta defasagem está relacionada ao movimento do padrão de interferência relativo ao meio não linear e ao fato da rede possuir uma parte absorptiva.

Conforme pudemos verificar, a interação dos dois feixes num meio não linear acarreta mudanças no índice de refração do meio, ou seja, há uma modulação desta grandeza. Desta forma, podemos de antemão suspeitar que o holograma produzido no meio, uma vez possuidor do espaçamento e orientação adequadas, difratará luz de um dos feixes sobre o outro, i.é., haverá um processo de transferência de energia entre os feixes. O processo de transferência de energia, produzido por feixes interagentes num meio não linear, tem merecido uma atenção considerável. Na literatura destaca-se o tratamento apresentado por Y. Silberberg e Bar-Joseph [4], ou a sua extensão no sentido da inclusão dos efeitos da absorção através da parte imaginária do índice de refração não linear [6] e finalmente, aquele no qual P. Yeh [1] apresenta uma solução exata para a mistura de duas ondas num meio Kerr. Devemos salientar que as abordagens citadas anteriormente tratam com hologramas dinâmicos. Entretanto, A. Maruani [12], e em seguida T. H. Liu e I. C. Khoo

[13], investigaram a amplificação do feixe de prova através da mistura degenerada de ondas num meio Kerr.

III.3 – EQUAÇÕES BÁSICAS

Até agora consideramos apenas a interação dos feixes no meio. Deste ponto em diante, vamos estudar a evolução dos campos através da equação de onda. Em sua forma usual a equação de onda é uma equação diferencial de segunda ordem. Contudo, é possível reduzí-la a uma equação diferencial mais simples, de primeira ordem, usando a aproximação de que o campo eletromagnético possui a amplitude e a fase variando suavemente no tempo. Assim, a equação de onda é escrita como (em unidades CGS)

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_0}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E = -\frac{i2\pi k}{n_0^2} P_{NL}, \tag{3.8}$$

onde E e P_{NL} representam as componentes lentas do campo eletromagnético e da polarização não linear, respectivamente.

As equações de onda para os campos que correspondem aos feixes de bombeamento e prova são

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{i\omega(n_2' - in_2'')}{c.2.cos\Theta/2}\left[|E_1|^2E_1 + |E_2|^2E_1 + |E_2|^2E_1\frac{(1-i\Delta)}{(1+\Delta^2)}\right] \tag{3.9}$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -i\frac{\omega(n_2' - in_2'')}{c.2.cos\Theta/2}\left[|E_2|^2E_2 + |E_1|^2E_2 + |E_1|^2E_2\frac{(1+i\Delta)}{1+\Delta^2}\right], \tag{3.10}$$

onde supusemos que $\omega_1 \simeq \omega_2 = \omega$ e que as amplitudes $E_j = E_j(\vec{r})$ são apenas função de z, de modo a podermos desprezar a derivada temporal em (3.8). Esta última suposição é válida quando a variação na amplitude dos campos é insignificante durante o intervalo de tempo

$T = \ell n/c$ (onde ℓ é o comprimento do meio e n o seu índice de refração), que a luz gasta para atravessar o meio. Além disso, usamos na obtenção das equações acima a expressão, $\chi^{(3)} = n_0 n_2/2\pi$ como forma de relacionar a susceptibilidade de terceira ordem à componente não linear, n_2, do índice de refração.

As Eqs. (3.9) e (3.10), quando colocadas em termos das intensidades dos feixes de bombeamento e prova, resultam no seguinte par de equações acopladas (Apêndice A)

$$\frac{dI_1}{dz} = -\frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) I_1 I_2 - \alpha I_1 = -\beta I_1 I_2 - \alpha I_1, \tag{3.11}$$

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) I_1 I_2 - \alpha I_2 = \beta I_1 I_2 - \alpha I_2, \tag{3.12}$$

onde

$$\beta = \frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) \quad \text{e} \quad r = n_2''/n_2'. \tag{3.13}$$

O parâmetro β é a constante de acoplamento entre as Eqs. (3.11) e (3.12) e descreve o acoplamento entre os dois feixes dentro do meio não linear. Como pode ser facilmente visto, o segundo membro das Eqs. (3.11) e (3.12) é composto de dois termos, onde o primeiro termo em cada uma delas é responsável pelo acoplamento entre os dois feixes, enquanto que o último termo, de origem fenomenológica, representa a absorção linear do meio em função do comprimento de onda.

As Eqs. (3.11) e (3.12), foram obtidas desprezando-se os dois primeiros termos das Eqs. (3.9) e (3.10), que são responsáveis pelo fenômeno da auto-modulação de fase e pela mudança *dc* do índice de refração, respectivamente. Embora tenhamos desprezado estes termos por questão de mera concordância com os resultados apresentados nas Ref. [1] e Ref. [9], as equações para as intensidades com sua inclusão não apresentam dificuldades

maiores nas suas soluções. Além disso, o resultado final possui o mesmo comportamento em ambos os casos. No apêndice A apresentamos as soluções das Eqs. (3.11) e (3.12), bem como as equações e respectivas soluções para as fases ϕ_1 e ϕ_2 dos campos.

Para um feixe de bombeamento de intensidade I_1 interagindo com um feixe de prova de intensidade I_2, onde $I_2 << I_1$, a solução da Eq. (3.12) em $z = L$ (L é o comprimento do meio) é dada por:

$$I_2(L,\Delta) = I_2(0)\exp\left(\gamma\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2} - \alpha\right)L, \tag{3.14}$$

onde

$$\gamma = \frac{4\pi}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{1-e^{-\alpha L}}{\alpha L}\right)n_2' I_1(0). \tag{3.15}$$

O parâmetro de ganho para o feixe de prova é definido como sendo:

$$\Gamma_1 \equiv \ell n\frac{I_2(L,\Delta)}{I_2(L,0)} = \gamma L\left(\frac{\Delta + r\Delta^2}{1+\Delta^2}\right) \tag{3.16}$$

Para $r = 0$, Γ_1 é uma função anti-simétrica em Δ e isto significa que o sinal obtido da M2O tem apenas contribuição de uma grade de fase ($n_2'' = 0$). Uma grade de fase tem origem na diferença de polarizabilidade entre os estados fundamental e excitado dos íons. No entanto, para $r \neq 0$ existe uma quebra de simetria da função Γ_1 e desta forma, além da grade de fase, temos também a presença de uma grade de natureza absorptiva contribuindo para o sinal da M2O. Uma grade absortiva, resulta da diferença de seção de choque entre os estados fundamental e excitado dos íons.

Um outro parâmetro muito importante, e próprio do material, é a intensidade de saturação I_s. Para estudar o efeito da saturação que ocorre quando a intensidade do feixe

de bombeamento I_1, se torna comparável ou excede a intensidade de saturação do meio, I_s, McMichael et al [9], definiram o parâmetro de saturação do ganho Γ_2 como sendo:

$$\Gamma_2 \equiv \ell n \frac{I_2(L, \Delta = 1)}{I_2(L, \Delta = -1)} = \gamma L \frac{I_1}{(1 + I_1/I_s)^2}, \tag{3.17}$$

onde foi suposto que, para valores de $I_1 \sim I_s$, o índice de refração não linear, e por conseguinte o ganho Γ_2, são reduzidos por um fator $1/(1 + I_1/I_s)^2$. Neste ponto devemos salientar que o parâmetro de ganho Γ_2 é obtido de forma empírica, uma vez que este tratamento não leva em consideração os efeitos de saturação.

No capítulo seguinte será desenvolvido um tratamento que leva em consideração a saturação do índice de refração não linear, n_2, e do tempo de vida τ, enquanto que o coeficiente de absorção, α e a expressão do parâmetro de saturação do ganho Γ_2 serão obtidos de forma natural.

III.4 – REFERÊNCIAS

[1] P. Yeh, J. Opt. Soc. Am. B**3**, 747 (1986)

[2] S. A. Boothroyd, J. Chrostowski e M. S. O' Sullivan, J. Opt. Soc. Am. B**6**, 766 (1989)

[3] H.L.Fragnito, S.F.Pereira e A.Kiel, J. Opt. Soc. Am. B**4**, 1309 (1987)

[4] Y. Silberberg e I. Bar-Joseph, J. Opt. Soc. Am. B**1**, 662 (1984)

[5] D. Staebler e J. Amodei, J. Appl. Phys. **43**, 1042 (1972)

[6] M. Kramer, W. Tompkin e R. Boyd, Phys. Rev. A**34**, 2026 (1986)

[7] Y. Anan'ev, Sov. J. Quant. Electron **4**, 929 (1975)

[8] V. Vinetskii, N. Kukhtarev, S. Odulov e M. Soskin, Sov. Phys. Tech. Phys. **22**, 729 (1977)

[9] I. McMichael, P. Yeh e P. Beckwith, Opt. Lett. **6**, 500 (1988)

[10] Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics", (John Wiley & Sons, New York, 1984)

[11] J. P. Huignard e A. Marrakchi, Opt. Commun. **38**, 249 (1981)

[12] A. Maruani, IEEE J. Quant. Electron. **16**, 558 (1980)

[13] T. H. Liu e I. C. Khoo, IEEE J. Quant. Electron **23**, 2020 (1987)

IV – MISTURA DE DUAS ONDAS NÃO DEGENERADAS EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS

IV.1 – INTRODUÇÃO

A técnica da M2O fundamenta-se na troca de energia entre dois feixes de luz coerente que se interceptam dentro de um meio não linear. A transferência de energia entre os feixes resulta da defasagem entre o padrão de interferência formado pelos feixes e a grade de população produzida pela modulação da susceptibilidade óptica do meio.

Do ponto de vista teórico, o processo de M2O pode ser descrito por meio de uma teoria de ondas acopladas onde um par de equações, acopladas através da susceptibilidade não linear do meio, possui solução exata conforme tratamento proposto por P. Yeh [1]. Além desta abordagem, existem outras formas alternativas de tratar com o processo de M2O como por exemplo aquela apresentada por Y. Silberberg e Bar-Joseph [2], ou a sua extensão considerada por M. Kramer e colaboradores [3], que leva em consideração os efeitos da absorção. Entretanto, as abordagens acima citadas não descrevem de forma adequada efeitos de saturação tais como a saturação do índice de refração não linear e a saturação do tempo de resposta do meio. Estes efeitos mudam de forma considerável o comportamento do parâmetro de ganho da M2O. Só recentemente, uma análise teórica proposta por H. Zhou et al [4], baseada num tratamento perturbativo, veio a considerar os efeitos da saturação nos processos de M2O.

Neste capítulo apresentaremos uma descrição teórica [5], alternativa àquela apresentada na Ref. [4], aonde consideramos a M2O como um caso particular do fenômeno da auto-difração [6] (difração de ordem zero), numa grade de população induzida pela interferência dos campos incidentes no meio não linear. Este tratamento, além de considerar apropriadamente os efeitos de saturação dos parâmetros relevantes no processo de M2O,

obtém de forma natural as contribuições da absorção do estado fundamental e do estado excitado. Devido a este tratamento guardar uma semelhança com aquele da Ref. [6], faremos uso da notação e sistema de unidades (SI) usados naquele trabalho.

IV.2 – A GRADE DE POPULAÇÃO

Vamos considerar o campo total produzido pela superposição de duas ondas planas, monocromáticas, com amplitudes complexas $E_0^{\pm} = |E_0^{\pm}|\exp(i\phi_0^{\pm})$, freqüências $\omega = \omega^{\pm}$ e direção de propagação $k = k_0^{\pm}$

$$E_0 = E_0^{+}\exp\left[i(\vec{k}_0^{+}.\vec{r} - \omega^{+}t + \phi_0^{+})\right] + E_0^{-}\exp\left[i(\vec{k}_0^{-}.\vec{r} - \omega^{-}t + \phi_0^{-})\right]. \tag{4.1}$$

Na Eq. (4.1) consideramos, também, que as ondas têm mesma polarização e que interceptam, segundo um ângulo 2Θ, num meio não linear isotrópico. No caso em que as freqüências $\omega^{\pm}$ são diferentes, o padrão da interferência produzido pela superposição dos campos Fig. 4.1, é um padrão viajante cuja expressão é dada por:

$$I_0^{(0)}(x,t) = \frac{1}{2}\varepsilon_0\eta c|E_0|^2 = I_0 + I_1 cos(Kx - \Omega t + \Delta\phi), \tag{4.2}$$

onde $\Omega = \omega^{+} - \omega^{-}$, $\vec{K} = \vec{k}_0^{+} - \vec{k}_0^{-}$ e $\Delta\phi = \phi_0^{+} - \phi_0^{-}$, a direção x é definida pelo vetor da grade $\vec{K}$, ε_0 é a permissividade dielétrica do vácuo, η é o índice de refração linear do meio, $I_0 = I_0^{+} + I_0^{-}$, $I_1 = 2\sqrt{I_0^{+}I_0^{-}}$, $K = 2\pi/\Lambda$ e $\Lambda = \lambda/2sen\Theta$ é o período espacial da grade de

interferência que se desloca com uma velocidade $v = \lambda\Omega/4\pi sen\Theta$.

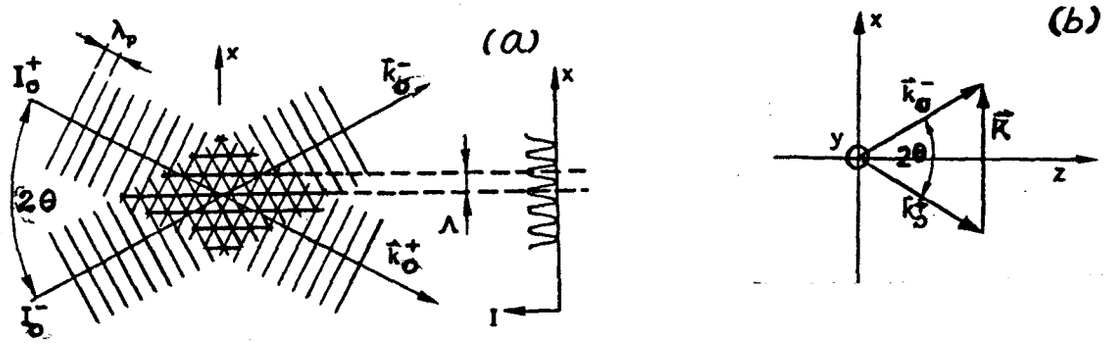


Fig. 4.1. (a) Grade produzida pela interferência de dois feixes laser com intensidades I_0^+, I_0^- e vetores de onda $k_0^\pm$, (b) Diagrama vetorial mostrando o vetor $\vec{K}$, que define a direção do eixo x

Em óptica não linear, a geração de ondas que oscilam em novas direções e/ou novas freqüências que não aquelas das ondas incidentes é descrita mediante a polarização não linear do meio. Assim, a polarização não linear do meio constituti um termo de fonte na produção de ondas espalhadas, qualquer que seja a ordem do espalhamento. Porém, antes de determinar a polarização se faz necessário descrever o meio sobre o qual as ondas $E_0^\pm$ incidem.

Vamos considerar o sistema atômico constituído de três níveis, conforme Fig. 4.2, onde a transferência de população do nível 2 para o nível 1 é extremamente rápida, com eficiência quântica da ordem de 1. A resposta deste meio a uma excitação monocromática é descrita por uma polarização do tipo

$$P = \varepsilon_0(\eta^2 - 1)E + \varepsilon_0(n_0\chi_0 + n_1\chi_1)E = P_L + P_{NL} \tag{4.3.a}$$

com

$$P_L = \varepsilon_0(\eta^2 - 1 + \chi_0)E \tag{4.3.b}$$

e

$$P_{NL} = \varepsilon_0 n_1 (X_1 - X_0) E, \tag{4.3.c}$$

onde P_L é a parte linear da polarização não ressonante e P_{NL} é a componente não linear. As quantidades $n_0 N_0$ e $n_1 N_0$, com $n_0 + n_1 = 1$, representam as populações dos estados fundamental e excitado, respectivamente. N_0 é o número de átomos ou moléculas absorvedoras por unidade de volume, enquanto $\chi_0(\chi_1)$ representa a contribuição para a susceptibilidade total do meio, que seria obtida se todos estes átomos ou moléculas estivessem no estado fundamental (excitado). A não linearidade do meio reside na diferença de susceptibilidade do estado fundamental e do estado excitado.

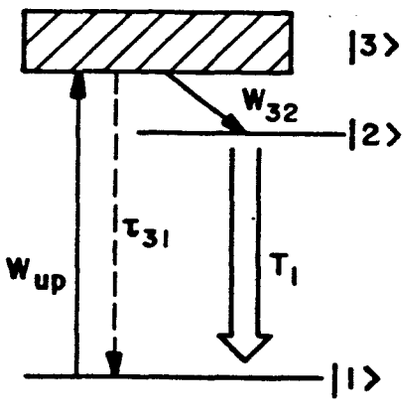


Fig. 4.2. Diagrama de níveis de energia para um sistema de três níveis. W_{up} = taxa de bombeamento, T_1 = tempo de vida do estado metaestável.

A população do estado superior n_1, estado metaestável, pode ser obtida através da equação de taxas para um sistema de três níveis

$$\frac{dn_1}{dt} = (1 - n_1) W_{up} - \frac{n_1}{T_1}, \tag{4.4}$$

onde T_1 é o tempo de relaxação longitudinal, ou seja, o tempo de vida do estado excitado, $W_{up} = \sigma_0 I / \hbar\omega$ é a taxa de bombeamento da população para o estado excitado, $\sigma_0 =$

$\mu^2\omega T_2/\hbar c\eta\varepsilon_0$ é a seção de choque, μ é o momento de dipolo elétrico e T_2 é o tempo de relaxação transversal. A taxa de bombeamento W_{up} é proporcional à intensidade de bombeamento I, que por sua vez é uma função de x e t e assim, a Eq. (4.4) transforma-se numa equação diferencial linear de coeficientes não constantes. Para resolver a Eq. (4.4), vamos expandir $n_1(x,t)$ numa série de Fourier

$$n_1(x,t) = \frac{1}{1+S_0}\sum_{n=-\infty}^{\infty} A_n e^{in(Kx-\Omega t+\Delta\phi)}, \tag{4.5}$$

onde $S_0 = I_0/I_S$ é o parâmetro de saturação e $I_S = \hbar\omega/\sigma_0 T_1$ é a intensidade de saturação do meio. Ao expandirmos $n_1(x,t)$ numa série de Fourier, estamos considerando não harmonicidades da rede. Os termos não harmônicos da rede são responsáveis pela difração de ordens superiores às dos feixes incidentes. Considerando $I_1 << I_0$, que é o caso no experimento de M2O, os coeficientes da expansão, A_n, em regime estacionário, i.é., $t >> T_1$, são dados como a seguir

$$A_0 = S_0 \tag{4.6.a}$$

$$A_n = (-1)^{n+1}\left(\frac{S_1/2}{1+S_0}\right)^{|n|}\left[\Pi_{m=1}^{|n|}(1 - i\ sign(n)m\Omega T_1')\right]^{-1}, n \neq 0 \tag{4.6.b}$$

com $S_1 = I_1/I_S$ e $T_1' = T_1/(1+S_0)$. Maiores detalhes acerca da obtenção dos coeficientes A_n são fornecidos no Apêndice B.

Portanto, uma vez conhecido o comportamento da grade de população, a polarização não linear Eq. (4.3), fica bem determinada.

IV.3 – EQUAÇÕES BÁSICAS

A propagação de um campo eletromagnético num meio qualquer é descrita pela

equação de onda, onde devem ser incluídos os efeitos das polarizações induzidas e a especificação da dependência destas polarizações com os campos que estão presentes no meio. A equação de onda para o campo elétrico total dentro do meio é escrita na forma

$$\left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \nabla^2 E + \left[\eta^2 + \chi_0 + \frac{1}{1+S_0}\sum_{n=-\infty}^{\infty} \chi_{NL} A_n e^{in(Kx-\Omega t+\Delta\phi)}\right] E = 0, \tag{4.7}$$

onde definimos χ_{NL} como sendo igual a diferença de susceptibilidade entre os níveis excitado e fundamental, i.é, $\chi_{NL} = \chi_1 - \chi_0$ e usamos $P_{NL} = \sum_n P_{NL}(nK, n\Omega)$ como termo de fonte na equação de onda. No caso geral, $\chi_{NL} = \chi'_{NL} + i\chi''_{NL}$ é uma quantidade complexa onde a parte real, χ'_{NL}, contribui aos efeitos da dispersão e, a grade por ela formada é denominada de grade de fase, enquanto a parte imaginária, χ''_{NL}, contribui para o coeficiente de absorção e a grade a qual ela origina é chamada de grade de absorção ou grade absortiva.

Com a finalidade de resolver a equação de onda acima, vamos fazer uso da abordagem usada na Ref. [6], onde o campo elétrico é expandido numa série de Fourier

$$E = E_0 + \delta E = \sum_{n=0}^{\infty} \left[\epsilon_n^+ e^{i[(n+1/2)Kx-(n+1)\Omega t]} + \epsilon_n^- e^{-i[(n+1/2)Kx-n\Omega t]}\right] e^{i\beta n z}, \tag{4.8}$$

onde $\epsilon_n^{\pm}$ são as componentes lentas do campo elétrico e representam a amplitude da n-ésima onda difratada. A medida que uma onda atravessa a grade de população, tanto a frente de onda como a amplitude são moduladas ao longo da direção x e desta forma, poderíamos ser levados a escrever o vetor de propagação da n-ésima ordem difratada como sendo $k_n^{\pm} = k_0^{\pm} \pm n(k_0^+ - k_0^-)$ e assim teríamos $k_{nx}^{\pm} = \pm(n+1/2)K$ e $k_{nz}^{\pm} = (\omega\eta/c)cos\Theta$. Contudo, este vetor de propagação não satisfaz a relação de dispersão do meio $(k_{nx}^{\pm})^2 + (k_{nz}^{\pm})^2 = (\omega\eta/c)^2$. Por esta razão, vamos definir o vetor de propagação $\beta_n = (\omega\eta/c)\sqrt{1-(2n+1)^2 sen^2\Theta}$ de modo que a relação de dispersão $(k_{nx}^{\pm})^2 + \beta_n^2 \equiv (\omega\eta/c)^2$ é agora automaticamente satisfeita.

Substituindo a expressão para o campo elétrico dada por (4.8), na equação de onda (4.7) e considerando $\partial\epsilon_n^{\pm}/\partial x = \partial\epsilon_n^{\pm}/\partial y = 0$ e $\partial\epsilon_n^{\pm}/\partial z << \beta_n\epsilon_n^{\pm}$, a equação que descreve a

evolução espacial da componente lenta, $\epsilon_n^{\pm}(z)$, do campo elétrico torna-se

$$2i\left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \sum_{n=0}^{\infty} \beta_n \left[\frac{d\epsilon_n^+}{dz} e^{i[(n+1/2)Kx-(n+1)\Omega t]} + \frac{d\epsilon_n^-}{dz} e^{-i[(n+1/2)Kx-n\Omega t]}\right] e^{i\beta_n z}$$

$$= -\left(\chi_0 + \frac{1}{1+S_0}\sum_{\ell=-\infty}^{\infty} \chi_{NL} A_\ell e^{i\ell(kx-\Omega t+\Delta\phi)}\right) \sum_{n'=0}^{\infty} \left[\left(\epsilon_{n'}^+ e^{i[(n'+1/2)Kx-(n'+1)\Omega t]} + \right.\right.$$

$$\left.\left. + \epsilon_{n'}^- e^{-i[(n'+1/2)Kx-n'\Omega t]}\right) e^{i\beta n' z}\right]. \qquad (4.9)$$

Os termos proporcionais a A_ℓ são responsáveis pelo espalhamento direto na grade não harmônica. A interação entre as diversas ordens geradas pela difração na grade de população e as ondas incidentes (feixes de bombeamento e prova), introduzem uma modulação adicional na grade de população [6] e se estes termos fossem considerados neste tratamento a solução da Eq. (4.4) não seria tão simples como aquela que foi obtida. De qualquer forma, estas contribuições tornam-se importantes apenas para valores de intensidades acima da intensidade de saturação, de modo que justifica-se tê-los negligenciados. Considerando, a partir da Eq. (4.9), os termos com a mesma dependência em x e t, obtém-se o seguinte par de equações acopladas.

$$\frac{d\epsilon_n^+}{dz} = \frac{i}{2\beta_n}\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left\{\chi_0\epsilon_n^+ + \frac{1}{1+S_0}\sum_{\ell=0}^{\infty}\left[\left(\chi_{NL} A_{\ell-n}^* \epsilon_\ell^+ e^{-i(\ell-n)\Delta\phi} + \right.\right.\right.$$

$$\left.\left.\left. + \chi_{NL} A_{\ell+n+1} \epsilon_\ell^- e^{i(\ell+n+1)\Delta\phi}\right) e^{i(\beta_\ell-\beta_n)z}\right]\right\}, \qquad (4.10.a)$$

$$\frac{d\epsilon_n^-}{dz} = \frac{i}{2\beta_n}\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left\{\chi_0\epsilon_n^+ + \frac{1}{1+S_0}\sum_{\ell=0}^{\infty}\left[\left(\chi_{NL} A_{\ell+n+1}^* \epsilon_\ell^+ e^{-i(\ell+n+1))\Delta\phi} + \right.\right.\right.$$

$$\left.\left.\left. + \chi_{NL} A_{\ell-n} \epsilon_\ell^- e^{i(\ell-n)\Delta\phi}\right) e^{i(\beta_\ell-\beta_n)z}\right]\right\}, \qquad (4.10.b)$$

onde usamos $A_{-\ell} = A_\ell^*$.

As Eqs. (4.10.a-b) podem ser resolvidas, em princípio, para qualquer ordem dos feixes difratados. A vantagem deste tratamento sobre aquele apresentado na Ref. [1], reside na linearidade das nossas equações em contraposição àquelas apresentadas lá.

IV.4 – A M2O COMO UM CASO PARTICULAR DA AUTO-DIFRAÇÃO

Nesta seção, vamos considerar a M2O não degeneradas, onde apenas os feixes ϵ_0^+ (feixe de bombeamento) e ϵ_0^- (feixe de prova), em (4.10.a-b), são importantes. Termos de ordem superior não são considerados e assim, o processo de M2O, torna-se um caso particular da auto-difração – difração de ordem zero. Desta forma, as Eqs. (4.10.a-b) tornam-se

$$\frac{d\epsilon_0^+}{dz} = \frac{i}{2\beta_0}\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left\{\left(\chi_0 + \frac{\chi_{NL}A_0}{1+S_0}\right)\epsilon_0^+ + \frac{\chi_{NL}A_1}{1+S_0}\epsilon_0^- e^{i\Delta\phi}\right\}, \tag{4.11.a}$$

$$\frac{d\epsilon_0^-}{dz} = \frac{i}{2\beta_0}\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left\{\frac{\chi_{NL}A_1^*}{1+S_0}\epsilon_0^+ e^{-i\Delta\phi} + \left(\chi_0 + \frac{\chi_{NL}A_0}{1+S_0}\right)\epsilon_0^-\right\}. \tag{4.11.b}$$

Observe que as amplitudes $\epsilon_0^\pm$ são proporcionais a $e^{i\phi_0^\pm}$, respectivamente e assim, a dependência das Eqs. (4.11.a-b) com esta fase é cancelada. Definindo $\gamma = \frac{1}{2\beta_0}(\frac{\omega}{c})^2$ e lembrando que $A_0 = A_0^*$, as soluções das Eqs. (4.11.a-b) são escritas como a seguir

$$\epsilon_0^+(z) = \epsilon_0^+(0)\exp\left\{i\gamma\left(\chi_0 + \frac{\chi_{NL}A_0}{1+S_0}\right)z\right\} \tag{4.12.a}$$

e

$$\epsilon_0^-(z) = \epsilon_0^-(0)\left\{1 + i\gamma\frac{\chi_{NL}A_1^*}{(1+S_0)}\left|\frac{\epsilon_0^+(0)}{\epsilon_0^-(0)}\right|z\right\}\exp\left[i\gamma\left(\chi_0 + \frac{\chi_{NL}A_0}{1+S_0}\right)z\right], \tag{4.12.b}$$

a solução (4.12.a) é obtida desprezando-se a contribuição do termo proporcional a ϵ_0^- na Eq. (4.11.a). A intensidade do feixe de prova, após este atravessar a amostra, de espessura L, é dada por

$$I_0^-(z=L) = \frac{1}{2}\varepsilon_0\eta c|\epsilon_0^-(L)|^2 = I_0^-(0)e^{-\alpha_{eff}L}\left\{1 + gL\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) + \left(\frac{gL}{2}\right)^2\left(\frac{1+r^2}{1+\Delta^2}\right)\right\}, \tag{4.13}$$

onde

$$g = \frac{4\pi n_2' I_0^+/I_S}{\lambda cos\Theta(1+S_0)^2}, \tag{4.14}$$

e

$$\alpha_{eff} = \frac{\alpha/cos\Theta}{1+S_0}\left(1 + \frac{\alpha' S_0}{\alpha}\right), \tag{4.15}$$

com $\Delta = \Omega T_1' = \Omega T_1/(1+S_0)$, $n_2 = n_2' + in_2'' = n_2'(1+ir)$ e $r = n_2''/n_2'$. Na obtenção da intensidade do feixe de prova $I_0^-(L)$, Eq. (4.13), usamos $\alpha = (\omega\eta/c)\chi_0''$ e $\alpha' = (\omega\eta/c)\chi_1'$ como definições para os coeficientes de absorção do estado fundamental e do estado excitado, respectivamente. Além disso, usamos as definições das quantidades γ, β_0, A_0 e A_1, anteriormente declaradas, bem como fizemos uso da relação $\chi_{NL} = 2\eta n_2$ entre a susceptibilidade e o índice de refração não linear.

Note que a Eq. (4.15), prediz um aumento da absorção do estado excitado proporcional a intensidade do feixe de bombeamento I_0^+ e atinge a saturação para valores da intensidade I_0^+ próximos da intensidade de saturação I_S em conformidade com os resultados experimentais apresentados por Andrews e colaboradores [7]. Embora, tenhamos usado n_2 como sendo independente da intensidade, para fins de comparação com os valores encontrados na literatura vamos definir $n_{20} = n_2/I_S$.

Na Ref. [5], fizemos a aproximação $1+x \simeq e^x$ na Eq. (4.12.b) e desta forma perdemos a informação da dependência do parâmetro r com a intensidade do feixe de bombeamento. Neste ponto, vamos definir o parâmetro de ganho do feixe de prova como sendo

$$\Gamma_1(\Delta) \equiv \ell n \left(\frac{I_0^-(L,\Delta)}{I_0^-(L,0)} \right) = \ell n \left(\frac{1 + gL\left(\frac{r_{eff}-\Delta}{1+\Delta^2}\right)}{1 + gLr_{eff}} \right), \tag{4.16}$$

onde

$$r_{eff} = -r + \frac{gL}{4}(1+r^2). \tag{4.17}$$

No caso em que a constante do acoplamento, g, assume valores pequenos pelo fato do meio ser opticamente fino, ou porque estamos trabalhando com valores da intensidade de bombeamento bem abaixo da intensidade de saturação, i. é., $I_0^+ << I_S$, podemos reescrever a expressão (4.16) como sendo

$$\Gamma_1(\Delta) = \ell n \left(\frac{I_0(L,\Delta)}{I_0(L,0)} \right) = gL \left(\frac{\Delta - r_{eff}\Delta^2}{1+\Delta^2} \right), \tag{4.18}$$

de modo a recuperarmos a forma funcional da expressão do parâmetro de ganho apresentando por I. McMichael et al [8]. Para $r = 0$, Γ_1 em função de Δ é uma curva anti-simétrica enquanto que para $r \neq 0$, existe uma assimetria que deve ser interpretada como proveniente da presença de uma grade de natureza absortiva contribuindo para o parâmetro de ganho Γ_1.

A fim de descrever o efeito da saturação da absorção e conseqüentemente a saturação do ganho, vamos definir um outro parâmetro de ganho

$$\Gamma_2(\Delta) \equiv \ell n \left(\frac{I_0^-(L,+\Delta)}{I_0^-(L,-\Delta)} \right) = \frac{4\pi n'_{20} L}{\lambda cos\Theta} \left(\frac{2\Delta}{1+\Delta^2} \right) \frac{I_0^+}{(1+S_0)^2} = gL \left(\frac{2\Delta}{1+\Delta^2} \right). \tag{4.19}$$

Neste ponto gostaríamos de ressaltar alguns aspectos importantes nas expressões (4.18) e (4.19), a saber: (i) a expressão (4.18) exibe a dependência correta com o parâmetro de saturação do ganho, S_0, que está contido na constante de acoplamento g; (ii) em conseqüência do item acima o parâmetro de ganho Γ_2, Eq. (4.10), pôde ser obtido naturalmente ao contrário do que ocorre no tratamento usual da M2O; (iii) a expressão do ganho Γ_1, Eq. (4.18), depende do parâmetro r_{eff} (sem similar na literatura), que por sua vez é uma função da intensidade. Esta dependência com a intensidade torna-se mais marcante à medida que o terceiro termo em (4.13) venha a ser comparável àqueles que o antecedem; (iv) a expressão (4.18) prediz a saturação da curva de ganho, i. é., para intensidades $I_0^+ << I_S$ o parâmetro de ganho varia linearmente com a intensidade I_0^+ e para intensidades $I_0^+ \geq I_S$, o ganho diminui com o valor de I_0^+ e (v) uma vez que T_1' varia com intensidade, o pico da curva de ganho Γ_1 (que ocorre em $|\pm\Delta| = 1$) também varia com a intensidade do feixe de bombeamento.

IV.5 – REFERÊNCIAS

[1] P. Yeh, J. Opt. Soc. Am. B**3**, 747 (1986)

[2] Y. Silberberg e I. Bar-Joseph, J. Opt. Soc. Am. B**1**, 662 (1984)

[3] M. A. Kramer, W. R. Tompkin e R. W. Boyd, Phys. Rev. A**34**, 2026 (1986)

[4] H. Zhou, X. Mi, Q. Jiang, R. Zhang e P. Ye, Opt. Commun. **78**, 382 (1990)

[5] S. C. Zilio, J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e M. J. Bell, Opt. Commun. **86**, 81 (1991)

[6] H. L. Fragnito, S. F. Pereira e A. Kiel, J. Opt. Soc. Am. B**4**, 1309 (1987)

[7] L. J. Andrews, S. M. Hitelman, M. Kokta e D. Gabbe, J. Chem. Phys. **84**, 5229 (1986)

[8] I. McMichael, P. Yeh e P. Beckwith, Opt. Lett. **13**, 500 (1988)

V – DESCRIÇÃO DO EXPERIMENTO DE M2O E PROPRIEDADES DAS AMOSTRAS

V.1 – INTRODUÇÃO

A técnica de M2O tem sido amplamente utilizada no estudo de propriedades opticamente não lineares dos mais diversos meios: (*i*) meios fotorefrativos [1], (*ii*) meios semicondutores [2] e mais recentemente em (*iii*) absorvedores saturáveis [3-6]. Uma das vantagens no uso da técnica de M2O, reside no seu baixo custo operacional em virtude do reduzido número de componentes e equipamentos para sua realização, conforme mostraremos na seção seguinte. Outra vantagem da técnica de M2O é a de que o sinal a ser analisado, o próprio feixe de prova transmitido através do meio, satisfaz automaticamente à condição de Bragg, enquanto, por exemplo, na Mistura de Quatro Ondas o sinal observado resultante do espalhamento do feixe de prova na grade população, necessita satisfazer a condição do espalhamento de Bragg (condição de casamento de fase) [7].

Neste capítulo faremos uma descrição do aparato experimental usado no processo de M2O, onde ressaltamos alguns pontos cuja observação durante a montagem do experimento e aquisição do sinal de M2O, tem um papel relevante na confiabilidade dos resultados obtidos com esta técnica interferométrica. Apresentaremos também, a estrutura cristalina e algumas características espectroscópicas das amostras (rubi, alexandrita e $GdA\ell O_3 : Cr^{3+}$) utilizadas como meio não linear nas medidas de M2O.

V.2 – DESCRIÇÃO DA MONTAGEM EXPERIMENTAL

A Fig. 5.1 é uma representação esquemática de nosso aparato experimental. O experimento consiste na superposição de dois feixes de luz coerente (feixe de bombeamento

e feixe de prova) num meio não linear. Os feixes são provenientes de um laser de Argônio com etalon, operando em 514.5 nm. O uso do etalon deve-se à finalidade de garantir a operação do laser em regime mono-modo. Além disso, o feixe de laser antes de ir para o sistema passa através de um filtro espacial a fim de eliminar possíveis distorções e acentuar a natureza gaussiana de seu perfil. Na entrada do sistema, conforme Fig. 5.1, uma lâmina de vidro comum, de boa qualidade óptica, atua como um divisor de feixes (B.S.) separando o feixe laser em dois. O feixe de prova é atenuado por meio de um conjunto de filtros, de modo que a relação de intensidades entre os feixes de bombeamento e de prova é mantida em aproximadamente 100:1. Após a passagem através de uma lente, L, com distância focal $f = 0.6m$, os feixes são focalizados produzindo uma mancha focal cujo diâmetro, medido com um "pin-hole", é de 260 μm. O ângulo de cerca de 2° entre os feixes origina uma grade de espaçamento $\Lambda \sim 15\mu m$ no interior do meio

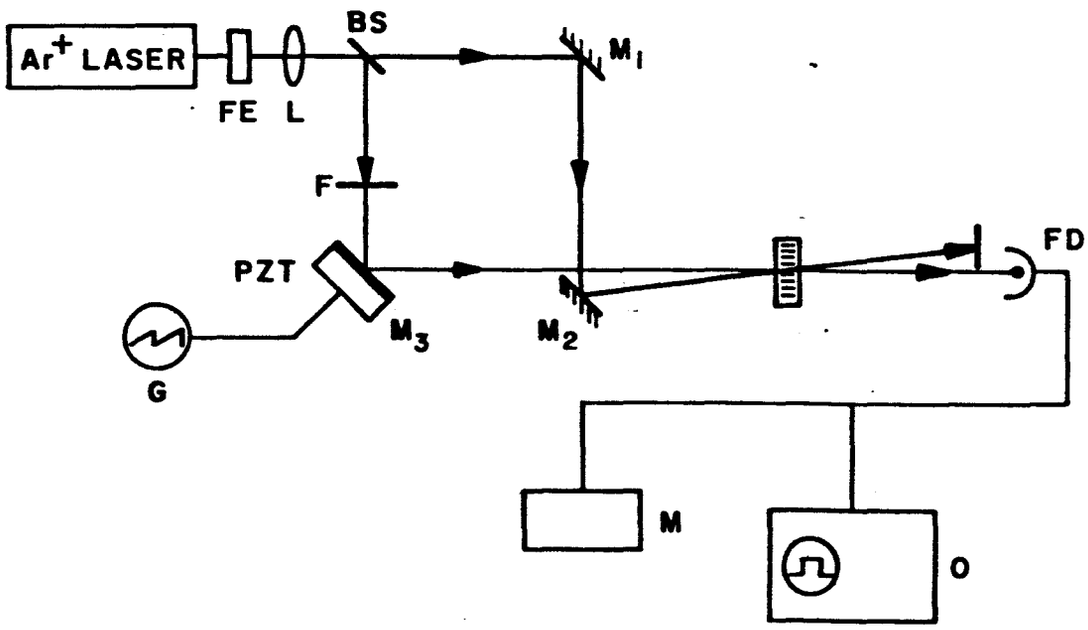


Fig. 5.1. Representação esquemática da montagem experimental usada na M2O. FE é um filtro espacial, BS é uma lâmina de vidro comum (divisor de feixe); F conjunto de filtros, L lente de distância focal $f \sim 0.6m$; $M_{1,2,3}$ são espelhos de $R \sim 100\%$ com M_3 montado sobre um transdutor piezoelétrico (PZT); FD é um fotodetetor de silício, M é um multímetro, G

é um gerador de funções com saída amplificada e O é um osciloscópio usado na monitoração do sinal de M2O.

A não degenerescência entre os feixes é introduzida via efeito Doppler, através do deslocamento em freqüência do feixe de prova, a partir de uma cerâmica piezoelétrica (PZT) montada no espelho M_3 e excitada pelo gerador de sinal G, conforme Fig. 5.1. A amplitude do deslocamento do espelho M_3 é fixada em $\lambda/2$ de modo a produzir uma diferença de freqüência entre os feixes igual à freqüência da rampa usada na excitação do PZT. Para determinar a tensão que, uma vez aplicada ao PZT, produziria o deslocamento correto fizemos uso de um interferômetro de Michelson cujo sinal de saída tinha as características mostradas na figura abaixo.

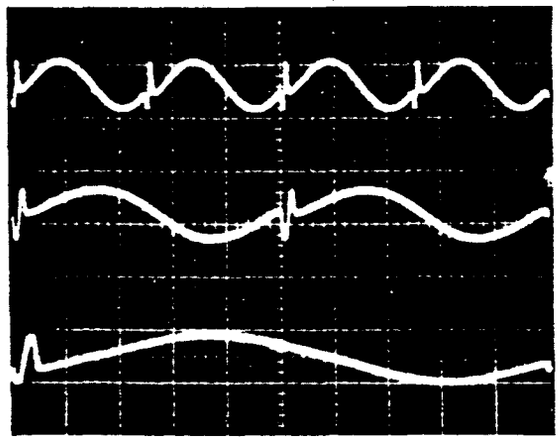


Fig. 5.2. Sinal de saída do interferômetro de Michelson, quando uma rampa de tensão variável é aplicada sobre o PZT. A forma senoidal garante o valor da tensão que faz o espelho deslocar-se de $\lambda/2$ e a linearidade no deslocamento do espelho. As curvas (a), (b) e (c) têm freqüências de 200, 100 e 50 Hz, respectivamente.

A uniformidade no deslocamento do espelho é de fundamental importância na variação da freqüência do feixe de prova. De modo a garantir esta uniformidade e minimizar os possíveis efeitos do retorno do PZT ("flyback") [8], usamos na excitação do PZT uma rampa cujo tempo de descida é da ordem de 4% do tempo de subida. Também é necessário

garantir uma boa estabilidade do aparato experimental a fim de evitar ressonâncias no espelho montado sobre o PZT e por conseguinte, a introdução de erros sistemáticos durante a aquisição do sinal da M2O. A aquisição deste sinal, conforme está mostrado na Fig. 5.1 é feita bloqueando-se o feixe de bombeamento transmitido, enquanto o feixe de prova é detectado por um fotodiodo de silício. Quando o PZT move-se para adiante, a freqüência do feixe de prova sofre um aumento. Assim, para um "detuning" definido como $\Delta = (\omega^+ - \omega^-)\tau$, temos $\omega^+ < \omega^-$ e portanto, Δ é negativo. No caso em que o PZT desloca o espelho M_3 no sentido oposto ao descrito acima, a freqüência do feixe de prova sofre uma diminuição e desta forma Δ é positivo.

Durante uma seqüência de pulsos com o PZT sendo excitado por uma rampa positiva (tensão crescente sobre o PZT), temos $\Delta < 0$ e assim, o valor médio do sinal visto pelo fotodetetor corresponde à intensidade $I_0^-(L, -\Delta)$, do feixe de prova transmitido através do meio. Em seguida, invertendo a forma da rampa, i.é, excitando o PZT com uma rampa negativa, temos $\Delta > 0$ e portanto, a média do sinal agora visto pelo fotodetetor corresponde à intensidade $I_0^-(L, +\Delta)$ do feixe de prova. Antes de cada uma das seqüências de pulsos procedemos a medida do sinal $I_0^-(L, \Delta = 0)$, que corresponde ao caso degenerado, onde o espelho montado sobre o PZT permanece fixo visto que, nesta situação não há tensão sendo aplicada ao PZT. Com estas informações podemos obter, separadamente, as contribuições das grades de fase e absorção. A contribuição de uma grade de fase no sinal da M2O é anti-simétrica, com relação à Δ, enquanto a contribuição absortiva é simétrica com respeito a Δ. Subtraindo cada um dos valores de $I_0^-(L, -\Delta)$ do seu correspondente em $+\Delta$ $\left(I_0^-(L, +\Delta)\right)$ e dividindo por 2, temos a contribuição anti-simétrica em Δ (grade dispersiva). A contribuição simétrica em Δ (grade absortiva) é obtida tomando a soma de $I_0^-(L, +\Delta)$ e $I_0^-(L, -\Delta)$ e dividindo por 2.

Vamos agora discutir alguns detalhes (alinhamento dos feixes no meio e maximização do sinal), concernentes ao experimento da M2O. Nos materiais que utilizamos (cristais dopados com cromo) é fácil de verificar a superposição dos feixes, pois nesta situação

o padrão dos campos a distância ("far-field pattern") apresenta o fenômeno da auto-modulação transversal [9]. Entretanto, em alguns outros materiais como filmes de corantes e vapor de sódio tivemos de usar um "pin-hole" para garantir a superposição dos feixes. A maximização do sinal da M2O, numa potência qualquer do feixe de bombeamento, é realizada excitando o PZT com uma onda triangular de freqüência mais baixa do que aquela em que $\Delta = (\omega^+ - \omega^-)T_1' = 1$ (condição de máxima transferência de energia) de modo a permitir que a grade produzida no interior da amostra se desenvolva por completo. Portanto, monitorando no osciloscópio o sinal do fotodetetor realizamos o alinhamento dos feixes no meio não linear até alcançarmos a maximização do sinal visto pelo fotodetetor. Quanto ao sinal da M2O assim produzido, este deve apresentar uma forma retangular, Fig. 5.3, bem definida. Esta forma do sinal somente é conseguida na situação em que, a tensão aplicada ao PZT é exatamente aquela que faz o espelho M_3, Fig. 5.1, deslocar-se de $\lambda/2$ e a amostra necessariamente possua uma boa qualidade óptica e um excelente grau de polimento.

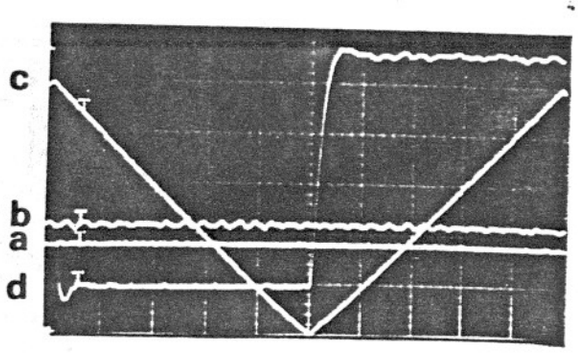


Fig. 5.3. Fotografia da tela do osciloscópio onde o traço (a) representa o feixe de prova transmitido, na ausência do feixe de bombeamento; o traço (b) é o feixe de prova transmitido na presença do feixe de bombeamento; o traço (b) é o feixe de prova transmitido na presença do feixe de bombeamento. A curva (c) representa a onda usada na excitação do PZT durante o alinhamento do sinal da M2O e o traço (d) é o sinal da M2O.

V.3 – ESTRUTURA CRISTALINA E CARACTERÍSTICAS ESPECTROSCÓPICAS DAS AMOSTRAS

V.3.1 – RUBI (Al_2O_3:Cr^{3+})

O rubi consiste de uma matriz de safira (Al_2O_3), na qual uma pequena percentagem de íons Al^{+3} são substituídos por íons de Cr^{3+}. O íon Cr^{3+} tem a mesma estrutura eletrônica do Ar e mais três elétrons de valência na camada externa 3d. A substituição do íon Al^{3+} pelo íon Cr^{3+}, é feita pela adição de pequenas quantidades de Cr_2O_3 ao fundido de alumina altamente pura. O cristal hospedeiro (Al_2O_3) é uniaxial e possui uma célula unitária hexagonal, Fig. 5.4, cuja diagonal principal define um eixo de simetria chamado eixo-c.

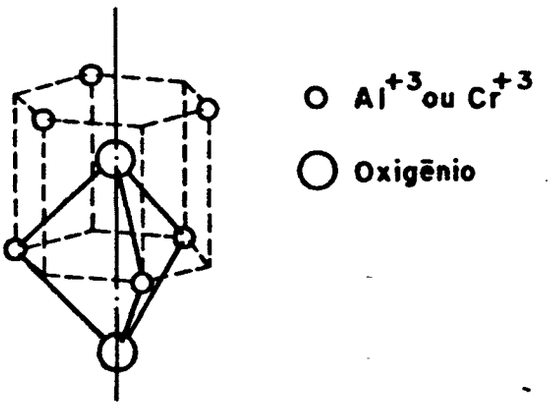


Fig. 5.4. Estrutura cristalina da safira.

Os níveis de energia do Cr^{3+} são bem conhecidos tanto para o íon livre [10], como para o íon na matriz hospedeira [11,12]. O diagrama de nívies de energia do rubi, juntamente com o espectro de absorção são apresentados na Fig. 5.5. O espectro de absorção do rubi, Fig. 5.5(a), na região do visível, consiste de duas bandas largas medindo cerca de 1000Å de largura e vários conjuntos de linhas. As bandas de absorção $^4T_2$ e $^4T_1$ estão localizadas em torno de 18.000 cm^{-1} e 25.000 cm^{-1}, respectivamente. Na região do ultra-violeta o rubi tem uma banda de absorção bastante larga situada em torno de 39.000 cm^{-1} e além desta

banda existe uma outra muito intensa em torno de 48.000 cm^{-1}, denominada de banda de transferência de carga (CT) [13].

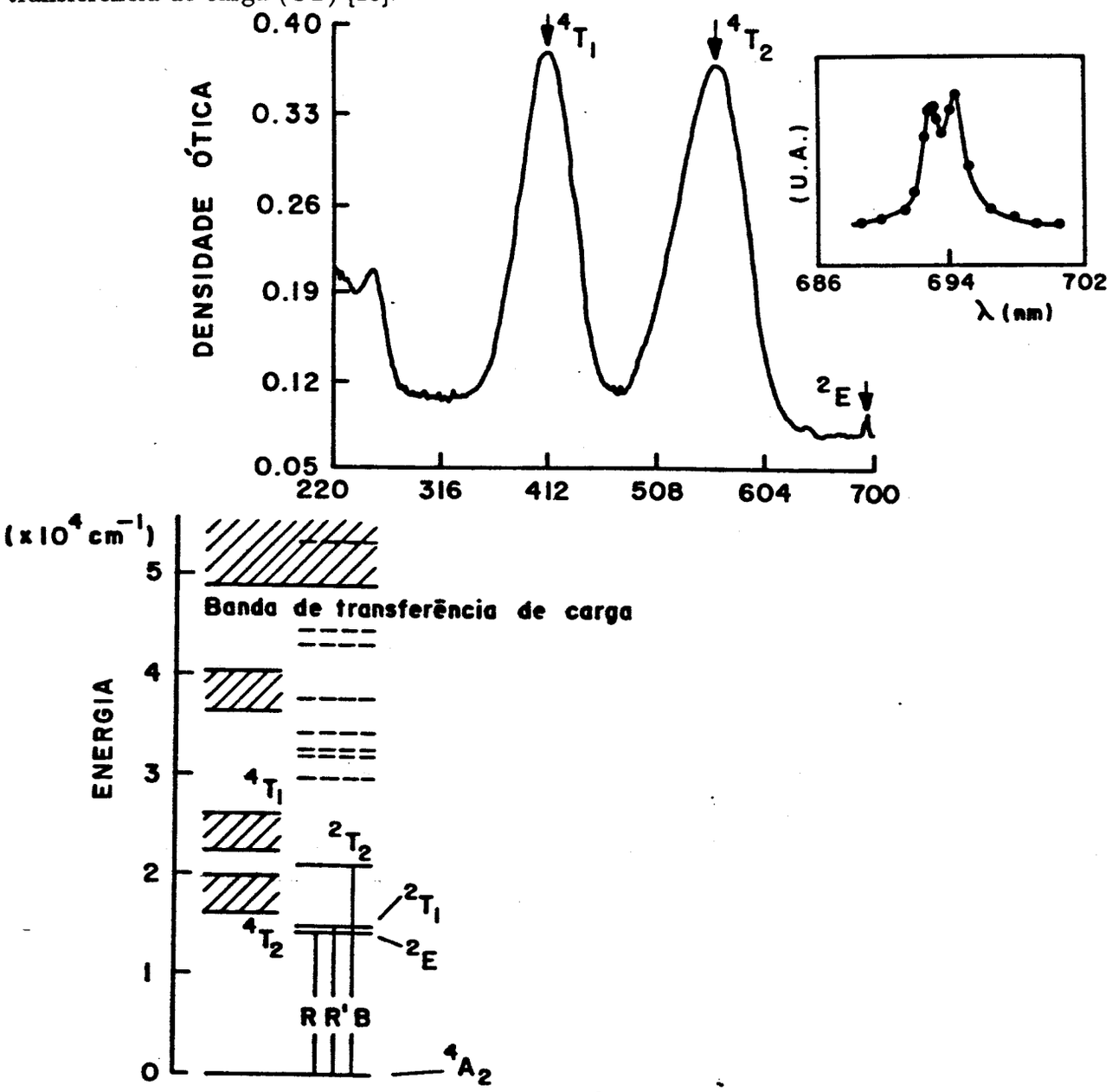


Fig. 5.5-(a). Espectro de absorção do rubi. A figura inserida é uma ampliação do espectro de absorção da região onde estão localizadas as linhas R_1 e R_2 que correspondem em notação espectroscópica aos níveis $\overline{E}$ e $2\overline{A}$, cuja separação em energia é de cerca de 29 cm^{-1}.

(b). Diagrama de níveis de energia do rubi. Figura obtida da Ref. [11]

No rubi, a inversão de população com respeito ao nível ^2E é obtida pelo bombeamento

óptico dos íons Cr^{3+} a partir do estado fundamental $^4A_2$, para as bandas $^4T_2$ e $^4T_1$. O tempo de relaxação da população nestas bandas é extremamente curto, aproximadamente $5\times10^{-8}s$ e portanto a eficiência quântica da transição $^4T_2, ^4T_1 \rightarrow ^2E$ tem valor próximo de 1. Conforme podemos verificar na inserção da Fig. 5.5(a) o nível ^2E é composto de dois níveis separados de $\Delta E \approx 29\text{cm}^{-1}$.

V.3.2 – ALEXANDRITA ($BeAl_2O_4$:Cr^{3+})

A matriz hospedeira, $BeAl_2O_4$ (Chrysoberil), tem uma estrutura hexagonal compacta, conforme mostra a Fig. 5.6. Os íons Al^{3+}, ocupam duas posições não equivalentes da rede, a saber: sítios com simetria tipo espelho que pertencem ao grupo de simetria pontual C_s e os sítios com simetria de inversão que pertencem ao grupo pontual C_i. Os íons Cr^{3+} substituem os íons Al^{3+} na seguinte proporção 78% dos íons Cr^{+3} ocupam os sítios com simetria tipo espelho, enquanto o restante ocupa os chamados sítios de inversão [14].

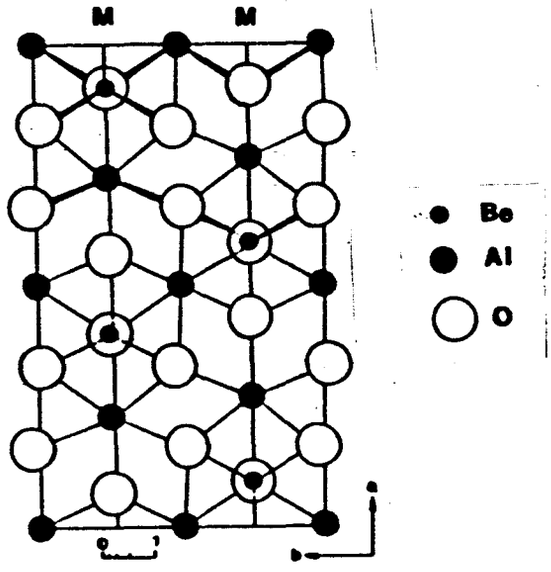


Fig. 5.6. Vista ao longo do eixo C da estrutura do Chrysoberil (figura retirada da Ref. [14], M representa os planos da simetria tipo espelho.

A Fig. 5.7 mostra o espectro de absorção da alexandrita à temperatura ambiente. A

principal característica deste espectro é dada pelos íons Cr^{+3} e consiste em duas bandas largas centradas em torno de 420 e 580 nm que correspondem às transições do estado fundamental $^4A_2$ para os estados $^4T_1$ e $^4T_2$, respectivamente. Além disso, há também três conjuntos de linhas, bem estreitas, localizadas próximo de 680,650 e 470 nm e estão associadas às transições $^4A_2 \rightarrow^2 E$ (linhas R), $^4A_2 \rightarrow^2 T_1$ (linhas S) e $^4A_2 \rightarrow^2 T_2$ (linhas B) [14]. Para a alexandrita a separação em energia das linhas R é de aproximadamente 40 cm^{-1}.

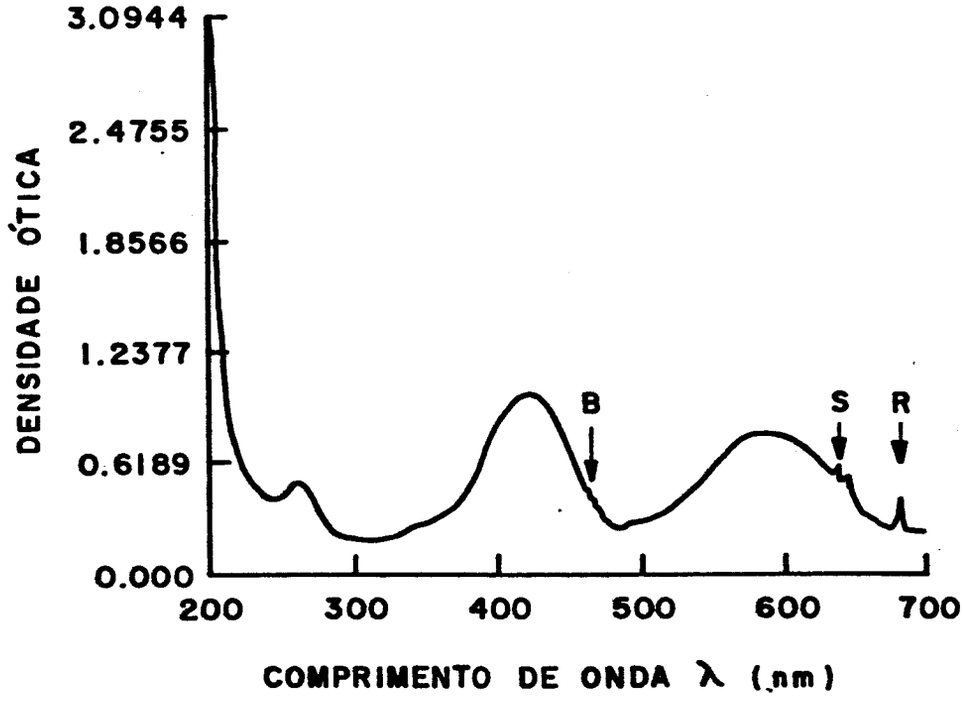


Fig. 5.7. Espectro de absorção da alexandrita à temperatura ambiente.

V.3.3 – ALUMINATO DE GADOLÍNIO DOPADO COM CROMO ($GdAlO_3$:Cr^{3+})

– O aluminato de gadolínio ($GdAlO_3$), pertence à classe de substâncias cuja composição é do tipo ABX_3 que, em geral possuem uma estrutura cristalina do tipo perovskita. Na sua forma ideal, a estrutura perovskita [15], Fig. 5.8, consiste de cubos formados por três

elementos químicos distintos (A, B e X), presentes na razão de 1:1:3. Os átomos A e B são cátions e os átomos do tipo X são anions. O cátion do tipo A situa-se no centro do cubo e os cátions do tipo B ocupam os vértices, enquanto que os anions X estão dispostos nos pontos médios das 12 (doze) arestas do cubo, conforme é mostrado na Fig. 5.8(a). Os anions X, mais próximos de um determinado cátion B, constituem os vértices de um octaedro formado ao redor desse cátion, conforme Fig. 5.8(b). Assim, podemos considerar também o modelo no qual a unidade estrutural básica é formada pelos octaedros, ligados pelos vértices, em torno do cátion A, conforme Fig. 5.8(c).

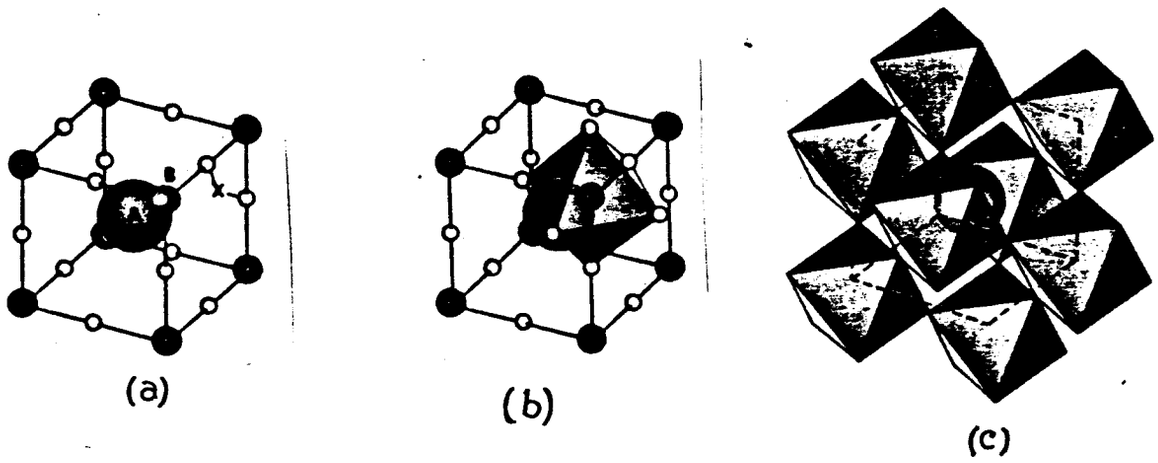


Fig. 5.8. (a) célula da estrutura perovskita ideal. (b) representação do octaedro formado pelos anions X em torno de um cátion B. (c) célula unitária representada por oito octaedros, unidos entre si pelos vértices, em torno do cátion A. (As figuras 5.8, foram reproduzidas da Ref. [15])

Muitos cristais, entre eles o $GdAlO_3$, apresentam uma estrutura perovskita distorcida. Esta distorção tem origem na relação entre os rais iônicos dos íons A e B, o raio iônico do cátion A é maior do que o raio iônico do cátion B, conforme estudos cristalográficos empreendidos por Geller [16], em aluminatos de terras raras.

Estudos espectroscópicos, na região do visível, para o $GdAlO_3:Cr^{3+}$ foram realizados inicialmente por Murphy e Ohlman [17] e mais recentemente por Basso e colaboradores

[18]. A distribuição dos níveis de energia para o $GdAlO_3:Cr^{3+}$ é basicamente igual àquela apresentada pelo rubi, com exceção da banda de absorção do íon Gd^{3+} cujo máximo de absorção situa-se em torno de 290 nm. As características predominantes do espectro de absorção deste material são fornecidas pelo íon Cr^{3+}, de modo que este apresenta uma certa semelhança àqueles do rubi e da alexandrita. Conforme podemos observar o espectro de absorção $GdAlO_3:Cr^{3+}$, Fig. 5.9, mostra a presença de duas bandas largas, $^4T_2$ e $^4T_1$, situadas em torno de 560 nm e 415 nm, respectivamente. Além destas bandas temos também em torno de 700 nm a banda que corresponde à transição $^4A_2 \rightarrow ^2T_1$ e as linhas R, que correspondem ao nível duplamente degenerado ^2E, situadas em torno de 723 nm. A separação em energia entre os níveis $2\overline{A}$ e $\overline{E}$ (linhas R) é de aproximadamente $\Delta E \approx 18\text{cm}^{-1}$.

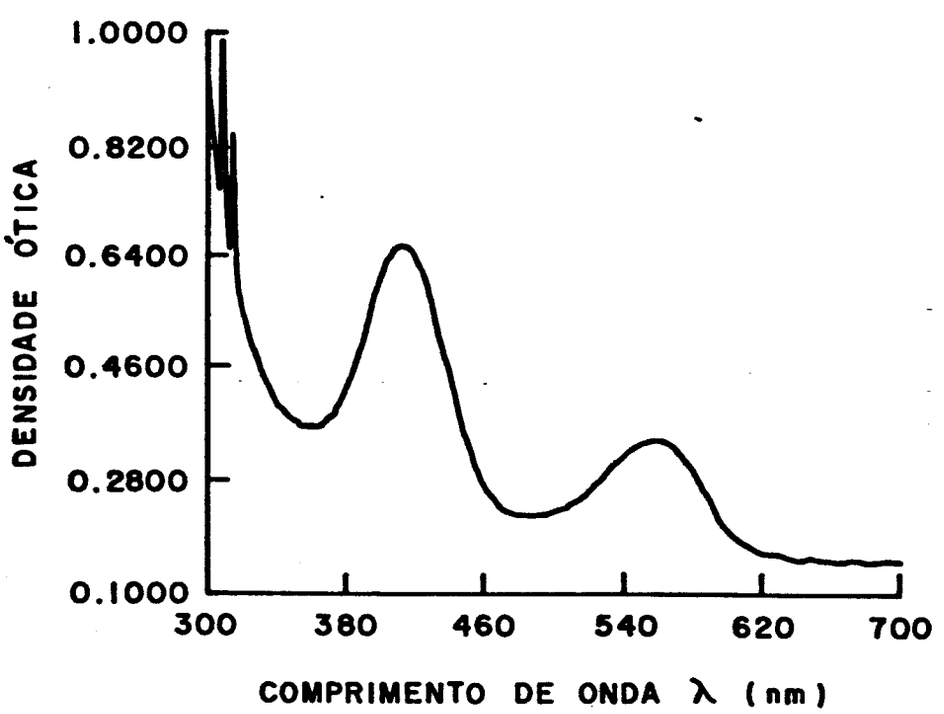


Fig. 5.9. Espectro de absorção do $GaAlO_3:Cr^{3+}$ à temperatura ambiente.

V.4 – REFERÊNCIAS

[1] P. Gunter e J. P. Huinard, eds. "Photorefractive materials and their applications I", vol. 61, Topics in Applied Physics, Springer-Verlag, Berlim (1988)

[2] V. Vinetskii, N. Kukhtarev, S. Odulov e M. Soskin, Sov. Phys. Tech. Phys. **22**, 729 (1977)

[3] W. R. Tompkin, R. W. Boyd, D. W. Hall e P. A. Tick, J. Opt. Soc. Am. B**4**, 1030 (1987)

[4] I. McMichael, P. Yeh e P. Beckwith, Opt. Lett. **13**, 500 (1988)

[5] H. Zhou, X. Mi, Q. Jiang, R. Zhang e P. Ye, Opt. Commun. **74**, 382 (1990)

[6] J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e S. C. Zilio, Opt. Lett. **16**, 452 (1991)

[7] A. Yariv e P. Yeh, "Optical Waves in Crystals", John-Wiley & Sons, N. York (1984)

[8] S. A. Boothroyd, J. Chrostowski e M. S. O'Sullivan, J. Opt. Soc. Am. B**6**, 766 (1989)

[9] T. Catunda e L. A. Cury, J. OPt. Soc. Am. B**7**, 1445 (1990)

[10] G. F. Imbush, "Luminescence of Inorganic Solids", cap. 4, ed. por B. Di Bartolo, Plenum Press, N. York (1978)

[11] Y. Tanabe e S. Sugano, J. Phys. Soc. Japan **9**, 753 (1954)

[12] Y. Tanabe e S. Sugano, J. Phys. Soc. Japan **9**, 766 (1954)

[13] G. Gliemann, "Ligand Field Concept", Encyclopedia of Physical Science and Technology, Vol. 7, Academic Press, London (1987)

[14] R. C. Powell, L. Xi, X. Gang, G. J. Quarles e J. C. Walling, Phys. Rev. B **32**, 2788 (1985)

[15] R. M. Hazen, Scientific American **52**, junho (1988)

[16] S. Geller, J. Chem. Phys. **24**, 1236 (1956)

[17] J. Murphy e R. C. Ohlmann, "Spectrum of Cr^{3+} in $GdAlO_3$:Cr^{3+}" em: "Optical Properties of Ions in Crystals", Iterscience Publishers, John Wiley & Sons, N. York (1967)

[18] H. C. Basso, "Propriedades Óticas dos íons isolados e dos pares de Cr^3 em $GdAlO_3$:Cr^{3+}", dissertação de mestrado apresentada ao Instituto de Física e Química de São Carlos, USP, 1980

VI – RESULTADOS EXPERIMENTAIS

VI.1 – INTRODUÇÃO

Neste capítulo vamos apresentar e discutir os resultados obtidos com a técnica da M2O para as amostras de rubi, alexandrita e $GdAlO_3 : Cr^{3+}$. Embora a alexandrita e principalmente o rubi constituam meios largamente estudados por diversas técnicas de espectroscopia não linear [1-3], inclusive a M2O [4,5], o nosso interesse nesses meios foi de não somente reproduzir aqueles resultados encontrados na literatura, mas, também entender alguns detalhes importantes que se fazem presentes durante a obtenção e análise dos resultados e que de alguma forma foram negligenciados ou não puderam ser obtidos no tratamento convencional da M2O. Por sua vez, o aluminato de gadolínio dopado com cromo ($GdAlO_3 : Cr^{3+}$), naturalmente tornou-se alvo maior de nossas investigações pelo fato do mesmo apresentar um comportamento muito peculiar e bastante diferente daqueles apresentados pelo rubi e alexandrita.

VI.2 – RESULTADOS DA M2O PARA O RUBI

Os resultados a seguir foram obtidos para uma amostra de rubi de espessura 0.57 cm e coeficiente de absorção $\alpha = 0.85\text{cm}^{-1}$, na linha 514,5 nm do laser de argônio. O procedimento para obtenção dos pontos experimentais referentes ao parâmetro de ganho Γ_1, consiste em variar a freqüência da rampa usada na excitação do PZT e para cada freqüência tomar os valores de $I_0^-(L,+\Delta)$, $I_0^-(L,-\Delta)$ e $I_0^-(L,0)$, valores médios da intensidade do feixe de prova, com a intensidade do feixe de bombeamento mantida constante. Embora, tenhamos realizado medidas do ganho Γ_1 para várias intensidades do feixe de bombeamento desde $I_0^+ = 0.1kW/cm^2$ até $I_0^+ = 1.47kW/cm^2$, na Fig. 6.1, apresentamos apenas a curva do

ganho Γ_1 para o valor extremo do intervalo de intensidades acima mencionado. Conforme pode ser verificado da Fig. 6.1 o valor máximo da transferência de energia entre os feixes $(I_0^-(L)/I_0^-(0))$ é de cerca de 37%.

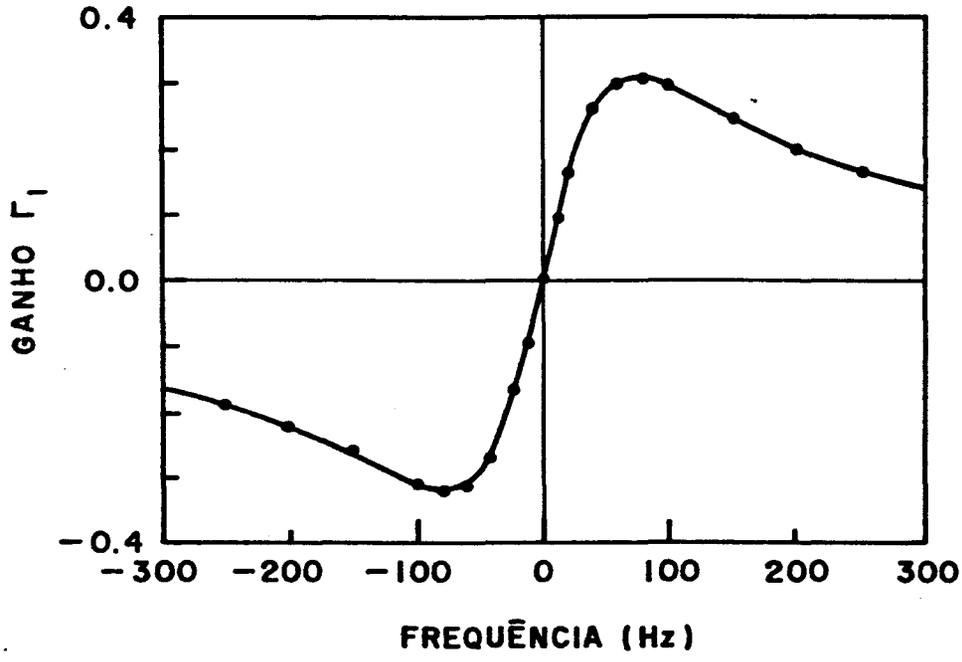


Fig. 6.1. Parâmetro de ganho Γ_1, em $\lambda = 514.5nm$, versus diferença de freqüência $|\omega^+ - \omega^-|/2\pi$ com a intensidade do feixe de bombeamento $I_0^+ = 1.47kW/cm^2$. Os círculos representam os pontos experimentais e a linha o ajuste teórico obtido com a expressão 4.16, com $r = 0.03$, $n_2' = 10^{-5}cm^2/kW$ e $I_S = 1.6kW/cm^2$.

Na Fig. 6.2 temos as curvas Γ_1 para intensidades do feixe de bombeamento de $I_0^+ = 0.1kW/cm^2$ e $I_0^+ = 1.47kW/cm^2$, ambas normalizadas à unidade. A normalização foi feita com o intuito de ressaltar que, conforme previsão teórica realizada ao final do capítulo IV, o pico de máximo da curva de ganho desloca-se em função da intensidade de

bombeamento, uma vez que o tempo de resposta do meio é uma função desta intensidade.

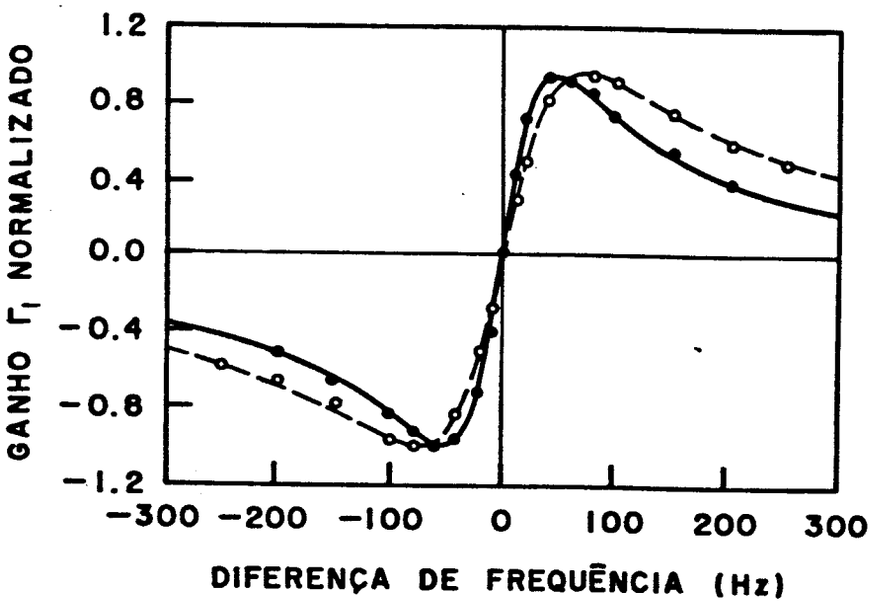


Fig. 6.2. Parâmetro de ganho Γ_1, normalizado, versus diferença de freqüência para $I_0^+ = 0.1kW/cm^2$ (linha contínua) e $I_0^+ = 1.47kW/cm^2$ (linha tracejada). Os círculos correspondem aos pontos experimentais enquanto as linhas são os ajustes teóricos Eq. (4.16) onde $r = 0.03$, $n_2' = 10^{-5}cm^2/kW$ e $I_S = 1.6kW/cm^2$.

A intensidade de saturação do meio é obtida a partir do ajuste teórico da curva de ganho Γ_2, (Eq. (4.19)), aos pontos experimentais que correspondem ao $\ell n(I_0^-(L,+\Delta)/(I_0^-(L,-\Delta))$, quando $|\pm\Delta| \equiv |(\omega^+ - \omega^-)T_1'| = 1$, com $T_1' = T_1/(1 + I_0^+/I_S)$.

Na Fig. 6.3, temos o parâmetro do ganho Γ_2 e o correspondente ajuste teórico.

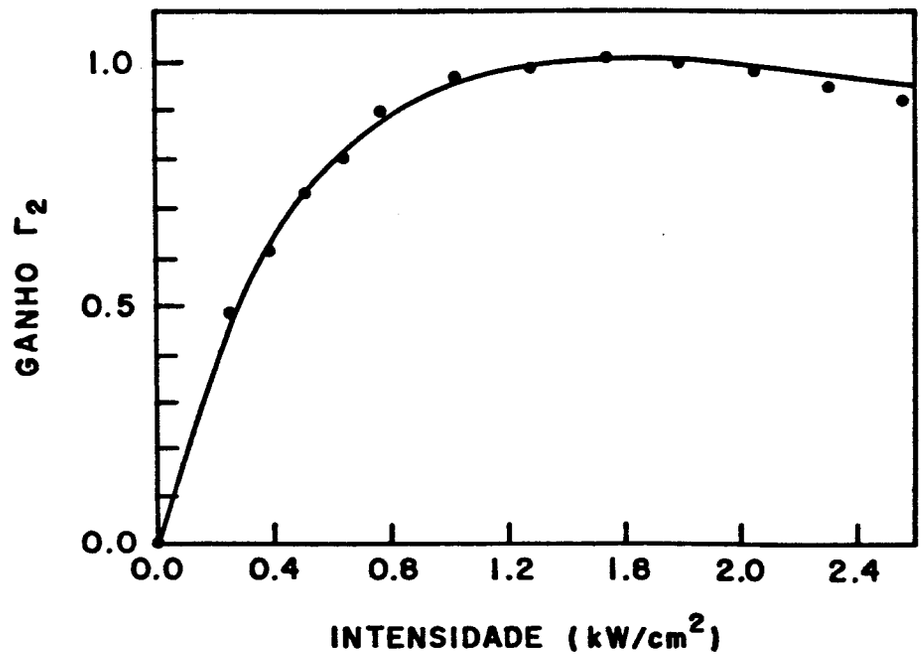


Fig. 6.3. Parâmetro de ganho Γ_2, normalizado, em função da intensidade do feixe de bombeamento. A linha contínua representa o melhor ajuste teórico, usando a Eq. (4.19), com $n_2' = 10^{-5} cm^2/kW$ e $I_S = 1.6 kW/cm^2$.

Neste ponto deve ser salientado que, usualmente, conforme resultados apresentados na literatura, o procedimento usado na obtenção dos pontos experimentais referente ao parâmetro de ganho Γ_2, consiste em fixar uma freqüência (aquela em que $\Delta = \Omega T_1 = 1$) e então variar a intensidade do feixe de bombeamento. Entretanto, segundo resultados apresentados na Fig. 6.2, a freqüência na qual o ganho é máximo varia de acordo com o tempo de resposta do meio $T_1' = T_1/(1 + I_0^+/I_S)$ que depende da intensidade do feixe de bombeamento. A não observação de que o valor máximo do ganho Γ_2 ocorre em freqüências diferentes para intensidades diferentes, certamente produzirá resultados incorretos para o valor da intensidade de saturação do meio. Desta forma, acreditamos que, a ligeira discrepância entre valor da intensidade de saturação $I_S = 1.6 kW/cm^2$ por nós obtido e aquele apresentado na Ref. [4] de $1.5 kW/cm^2$, deve-se a não observação , por parte daqueles

autores, da dependência da curva de ganho Γ_2 com a freqüência onde ocorre o máximo desse parâmetro.

Na Fig. 6.4, mostramos que os pontos experimentais da Ref. [4] para o ganho Γ_2, podem ser ajustados com a nossa expressão teórica (com $I_S = 1.6kW/cm^2$), Eq. (4.19), quando usamos uma freqüência próxima de 50 Hz. Esta freqüência corresponde àquela em que o ganho é máximo quando a intensidade do feixe de bombeamento é bem inferior à intensidade de saturação.

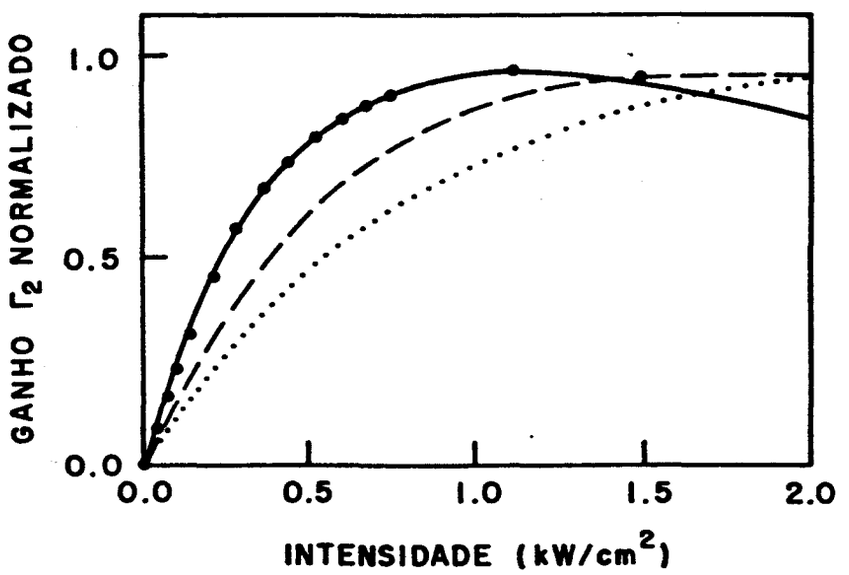


Fig. 6.4. Parâmetro de ganho Γ_2 versus intensidade do feixe de bombeamento, com e $I_S = 1.6kW/cm^2$ e $f = 50Hz$ (linha contínua), $f = 100Hz$ (linha tracejada) e $f = 200Hz$ (linha pontilhada). Os pontos experimentais foram retirados da Ref. [4].

A medida da fluorescência do rubi, em 694 nm, em função do tempo permitiu, através da medida do tempo de resposta do meio, T_1', a confirmação do valor da intensidade de saturação. Para este propósito, o feixe laser foi modulado com o uso de um modulador mecânico ("chopper") e em seguida focalizado na amostra de rubi. O aumento da fluorescência em função do tempo e da intensidade do feixe de bombeamento foi medido logo após a incidência da luz na amostra (quando da abertura do "chopper"). Os resultados

estão mostrados na Fig. 6.5, juntamente com os valores de T_1' obtidos a partir da M2O.

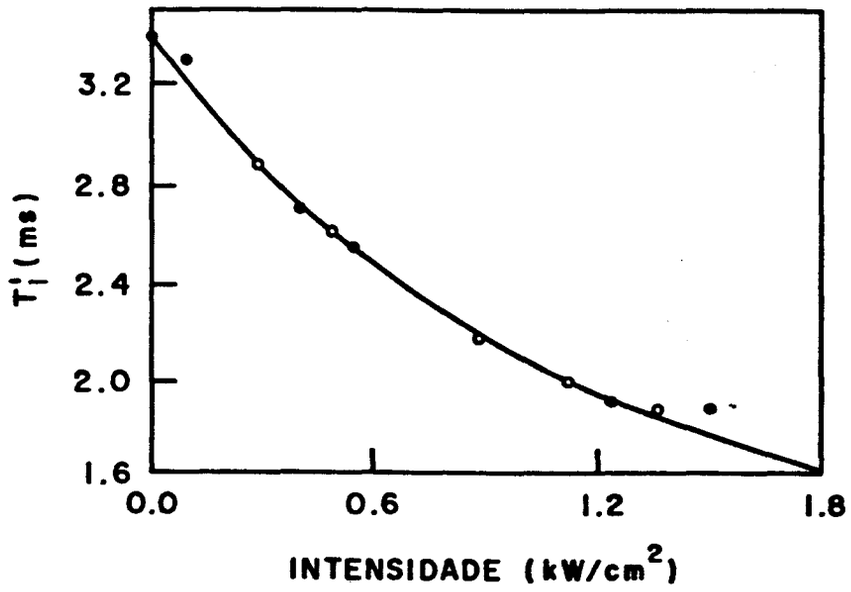


Fig. 6.5. Tempo de relaxação efetivo T_1' versus intensidade. Os círculos escuros (claros) são os valores de T_1' obtidos a partir da M2O (fluorescência). A linha representa o ajuste teórico usando $T_1' = T_1/(1 + I/I_S)$ com $T_1 = 3.4ms$ e $I_S = 1.6kW/cm^2$.

No quadro a seguir, apresentamos os parâmetros relevantes para a amostra de rubi usada neste experimento obtidos via M2O e alguns desses resultados já reportados na literatura

	$T_1(ms)$	$I_S(kW/cm^2)$	$n_2' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	$n_2'' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	r
Rubi (M2O)	3.4	1.6	1.0	0.03	0.03
*	3.4	1.5	1.25	—	—

* Estes valores foram retirados das Refs. 3,4 e 5.

VI.3 – RESULTADOS DA M2O PARA ALEXANDRITA

Os resultados da M2O em alexandrita foram obtidos com uma amostra de espessura 0.25 cm e coeficiente de absorção, em 514.5 nm, $\alpha \doteq 1.45$ cm^{-1}. O procedimento usado na obtenção na curva experimentais do parâmetro de ganho Γ_1 e do parâmetro de ganho

na saturação Γ_2 já foi descrito anteriormente e portanto, não vamos aqui repetí-lo. Nas Fig 6.6, apresentamos duas curvas experimentais do ganho Γ_1 bem como os ajustes teóricos realizados com a expressão dada em (4.16).

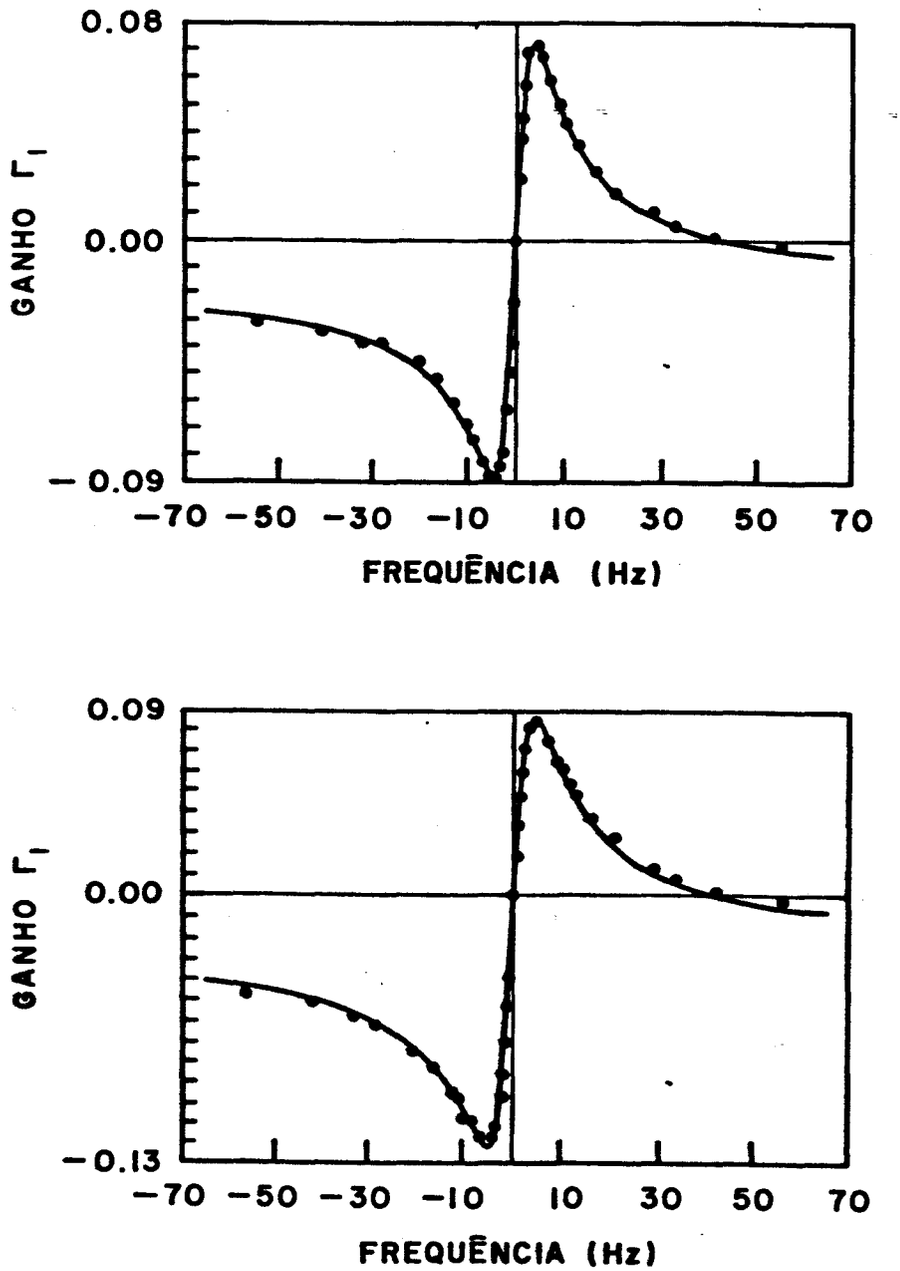


Fig. 6.6. Parâmetro de ganho Γ_1 versus diferença de freqüência. Os círculos representam os pontos experimentais e a linha o ajuste teórico, obtido usando a expressão 4.16, com $r = 0.12$, $n_2' = 5.9 \times 10^{-5} cm^2/kW$, $I_S = 0.7 kW/cm^2$ e $T_1 = 45ms$. Na figura em (a), temos o ganho Γ_1 com a intensidade do feixe de bombeamento $I_0^+ = 0.2 kW/cm^2$ e o parâmetro

$r_{eff} = 0.08$ *em (b) temos a curva de ganho* Γ_1 *para* $I_0^+ = 0.4kW/cm^2$ *e* $r_{eff} \simeq 0.08$.

Neste ponto faz-se necessário ressaltar que, ao contrário do rubi a curva de ganho Γ_1 na alexandrita apresenta uma assimetria maior, fato este indicado pela diferença de valor do parâmetro r para as duas amostras. Também, deve ser observado que a alexandrita apresenta uma variação no parâmetro r_{eff} com a intensidade do feixe de bombeamento um pouco mais significativa do que no rubi, uma vez que, naquele material o valor do parâmetro r_{eff} manteve-se praticamente constante para todo o intervalo de intensidades, $I_0^+ = 0.1kW/cm^2$ até $I_0^+ = 1.5kW/cm^2$, apresentando apenas uma ligeira mudança à intensidades próximas da intensidade de saturação.

O valor da intensidade de saturação I_S e da parte real do índice de refração não linear são obtidos a partir do ajuste teórico da curva de ganho Γ_2, aos pontos experimentais que correspondem ao $\ell n(I_0^-(L,+\Delta)/(I_0^-(L,-\Delta))$, quando $|\pm\Delta| = |(\omega^+ - \omega^-)T_1/(1+(I_0^+/I_S)| = 1$. A determinação dos parâmetros I_S e n_2' a partir do ganho Γ_2 deve-se ao fato de que a expressão teórica deste parâmetro de ganho, independe do valor do parâmetro r e portanto, independe do valor da parte imaginária do índice de refração não linear. Além disso, o ganho Γ_2 independe de T_1' uma vez que o valor do ganho Γ_2 é maximizado com relação a Δ, para cada intensidade. Na Fig. 6.7, temos a curva de saturação do ganho Γ_2 para a alexandrita.

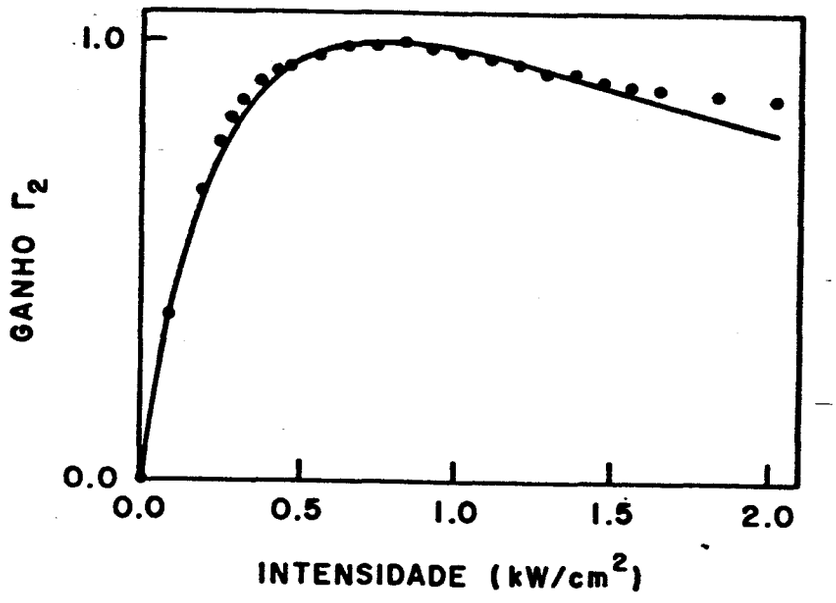


Fig. 6.7. Parâmetro de ganho Γ_2 em função da intensidade do feixe de bombeamento. Os pontos experimentais são representados pelos círculos enquanto a linha representa o ajuste teórico usando a Eq. 4.19 com $I_S = 0.7kW/cm^2$ e $n_2' = 5.9 \times 10^{-5} cm^2/kW$.

No quadro a seguir estão os parâmetros relevantes obtidos para a alexandrita com a técnica da M2O.

	$T_1(ms)$	$I_S(kW/cm^2)$	$n_2' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	$n_2'' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	r
Alexandrita	45	0.7	5.9	0.47	0.08
*	44 [a]	0.9 [a]	7.8 [b]	0 [b]	0 [b]

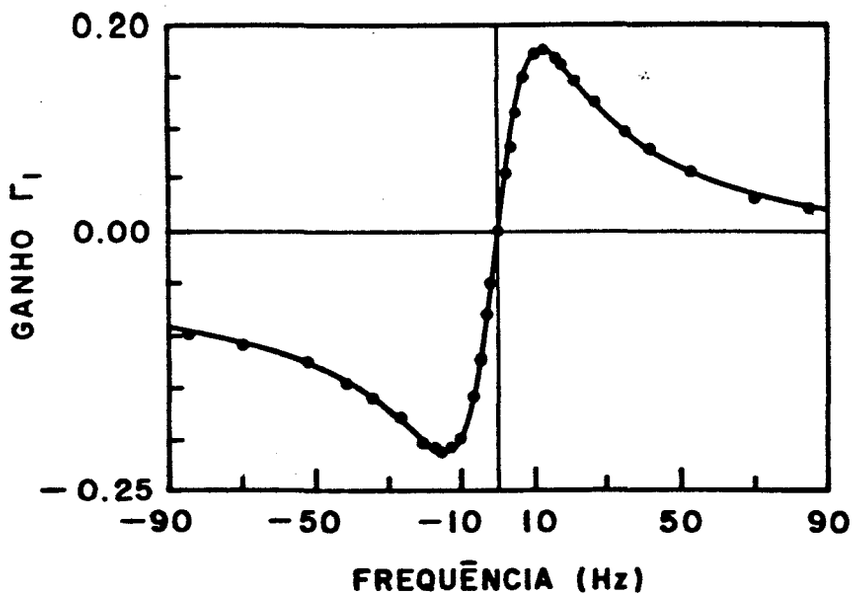
[a] Conforme Ref. [1].

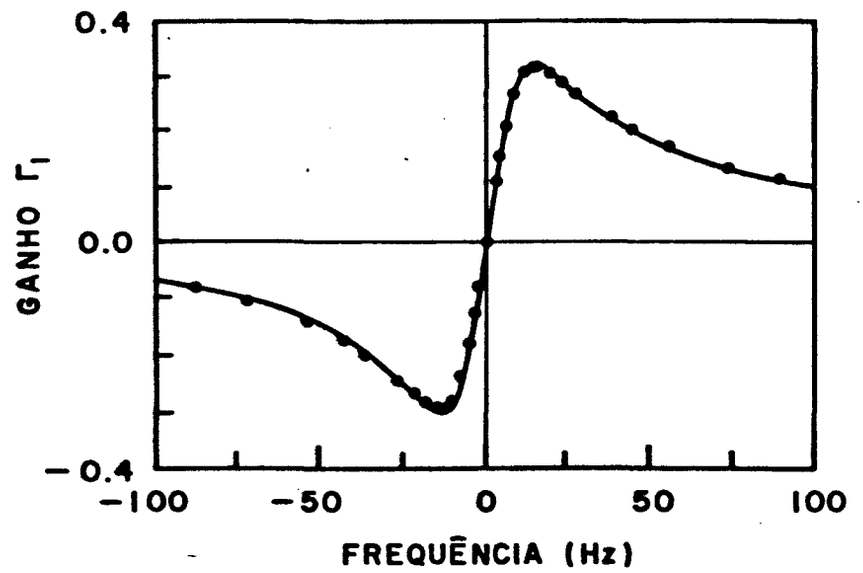
[b] Resultados obtidos por Ali M. Ghazzawi e colaboradores, Phys. Rev. **B30**, 7182 (1984).

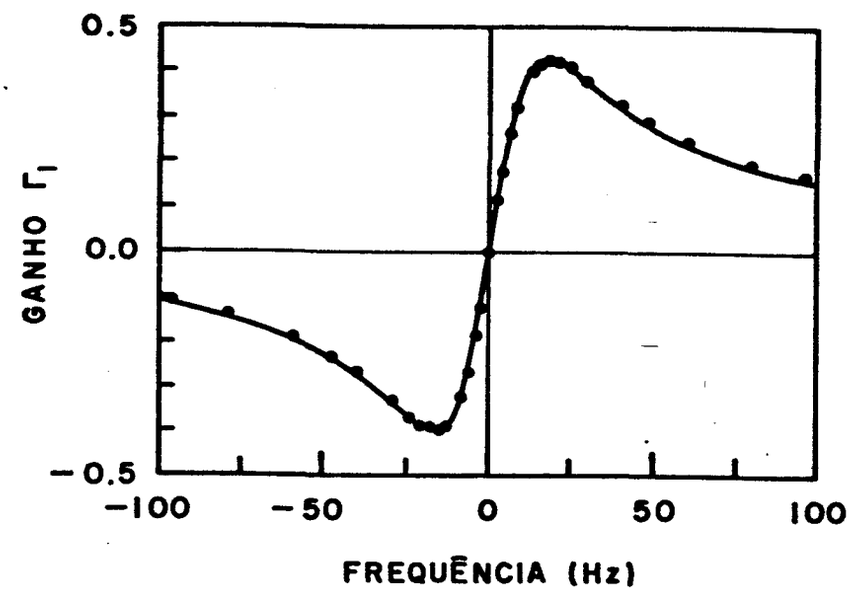
VI.4 – RESULTADOS DA M2O PARA $GdAlO_3 : Cr^{3+}$.

Conforme foi citado na introdução deste capítulo o aluminato de gadolínio dopado com íons de cromo trivalente ($GdAlO_3 : Cr^{3+}$) tornou-se objeto principal de nossos estudos pelo fato do mesmo comportar-se quanto ao parâmetro r_{eff} e portanto, quanto ao parâmetro de ganho Γ_1 de forma muito peculiar quando variamos a intensidade do feixe de bombeamento.

Os resultados experimentais de M2O foram obtidos para uma amostra $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ com espessura de 0.14 cm e coeficiente de absorção $\alpha = 1.87cm^{-1}$. A fim de evitarmos repetições, não vamos descrever o procedimento usado na obtenção dos dados experimentais posto que, o mesmo já foi descrito nas seções anteriores. Os resultados a seguir, Fig. 6.8, dizem respeito ao parâmetro de ganho Γ_1, do feixe de prova, para várias intensidades do feixe de bombeamento, desde $I_0^+ = 0.1kW/cm^2$ até $I_0^+ = 0.6kW/cm^2$.


0.20
0.00
−0.25
GANHO Γ_1
−90
−50
−10
10
50
90
FREQUÊNCIA (Hz)


0.4
0.0
−0.4
GANHO Γ_1
−100
−50
0
50
100
FREQUÊNCIA (Hz)


0.5
0.0
−0.5
GANHO Γ_1
−100
−50
0
50
100
FREQUÊNCIA (Hz)

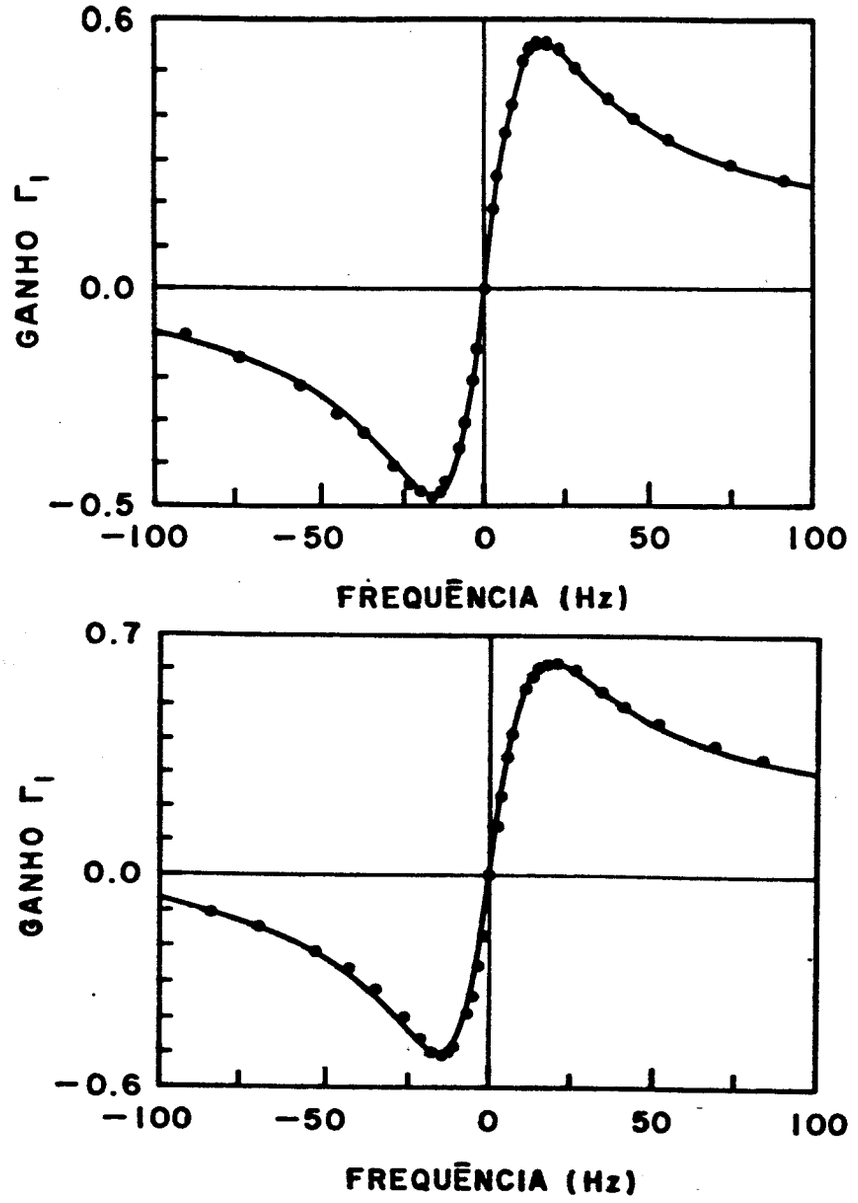


Fig. 6.8. Parâmetro de ganho Γ_1 versus diferença de freqüência entre os feixes, para intensidades do feixe de bombeamento em (a) $0.1kW/cm^2$, (b) $0.2kW/cm^2$, (c) $0.3kW/cm^2$, (d) $0.4kW/cm^2$ e (e) $0.5kW/cm^2$. As linhas contínuas representam os ajustes teóricos aos pontos experimentais (círculos) realizados com os parâmetros $n_2' = 1.4\times10^{-4}kW/cm^2$ $r = 0.2$ e $I_S = 1.2kW/cm^2$. A curva teórica é dada pela expressão 4.18.

O valor da intensidade de saturação e o valor da parte real do índice de refração não linear, foram obtidos a partir do ajuste teórico da curva de ganho Γ_2 aos pontos experimentais que correspondem à $\ell n(I_0^-(L,+\Delta)/I_0^-(L,-\Delta))$, quando $|\pm\Delta| = |(\omega^+ - \omega^-)T_1' = 1$, em

função da intensidade do feixe de bombeamento, I_0^+, conforme está mostrado na Fig. 6.9.

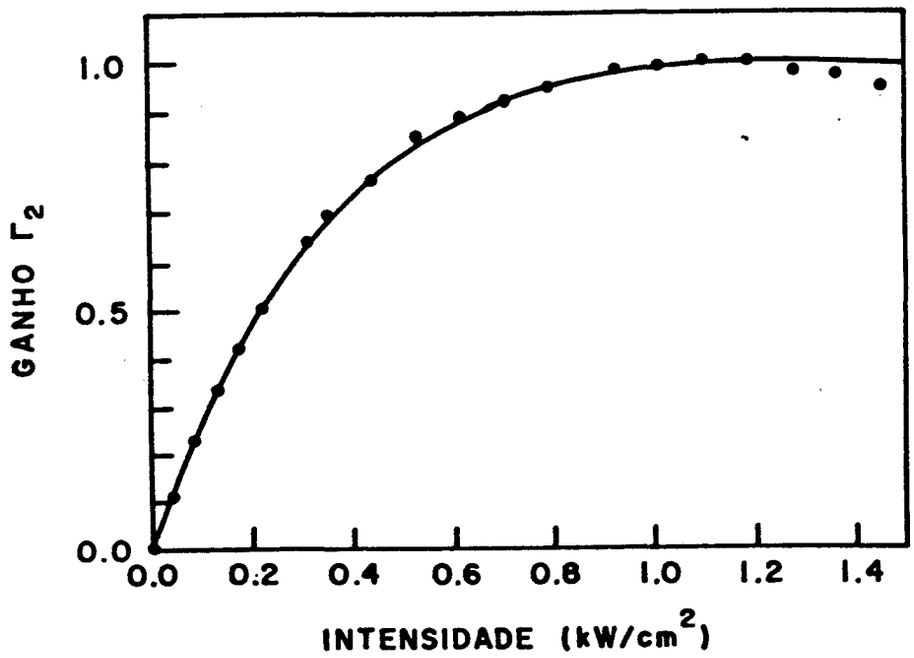


Fig. 6.9. Parâmetro de ganho Γ_2 em função da intensidade do feixe de bombeamento. Os pontos experimentais estão representados pelos círculos enquanto a linha contínua representa o ajuste teórico realizado com a Eq. 4.19, onde $n_2' = 1.4 \times 10^{-4} cm^2/kW$ e $I_S = 1.2 kW/cm^2$.

Note que, ao contrário do rubi e da alexandrita, o $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ tem nas curvas do parâmetro de ganho Γ_1 uma forma mais assimétrica onde o parâmetro r_{eff}, indicador dessa assimetria, varia drasticamente com a intensidade do feixe de bombeamento . Na Fig. 6.10 apresentamos o comportamento do parâmetro r_{eff} em função da intensidade do feixe de bombeamento. Note que para intensidades superiores a $0.6 kW/cm^2$ este parâmetro assume valores que não obedecem mais a expressão 4.17. Portanto, para intensidades do feixe de bombeamento superiores a $0.6 kW/cm^2$, a expressão teórica do ganho Γ_1 é incapaz de se

ajustar às curvas experimentais mantendo-se constante o valor da razão $r = n_2''/n_2'$.

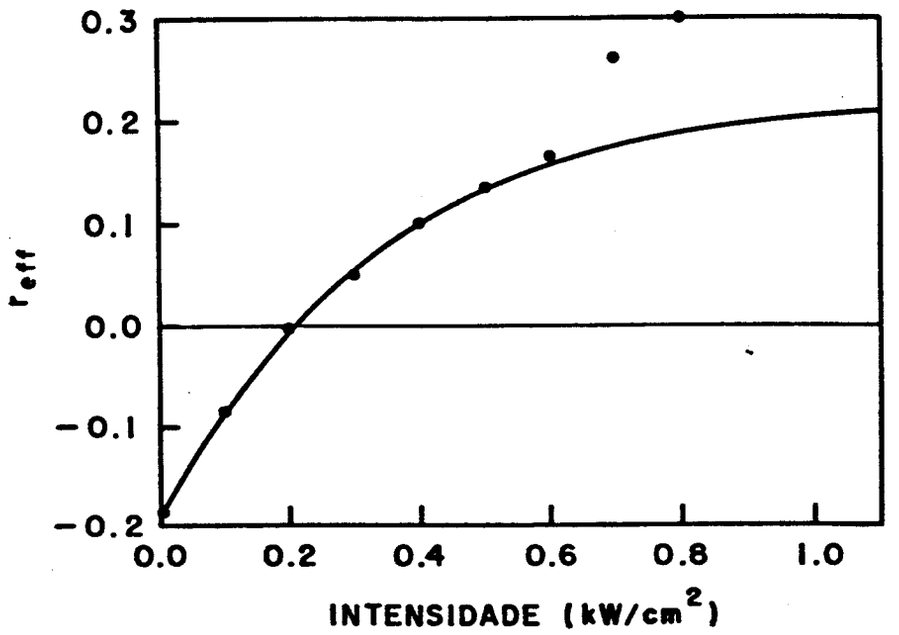


Fig. 6.10. Comportamento do parâmetro r_{eff} em função da intensidade do feixe de bombeamento. Os círculos representam os pontos obtidos a partir do ajuste da curva de ganho Γ_1 e a linha corresponde à expressão dada na Eq. (4.17).

Este comportamento do parâmetro r_{eff} e conseqüentemente do ganho Γ_1 no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ pode ser explicado de três formas distintas: (i) validade da teoria; (ii) meio opticamente grosso e (iii) difração de ordem superiores dos feixes incidentes. A primeira delas está relacionada à nossa abordagem teórica, cuja validade é restrita à intensidades $I_0^+ << I_S$, caso contrário a solução da Eq. (4.4) seria de difícil obtenção. A segunda explicação, também relacionada à nossa abordagem do problema, prende-se a necessidade de levantar a restrição do meio ser considerado opticamente fino e portanto, levar em consideração a variação na amplitude da grade ao longo do meio devido aos efeitos de absorção e também considerar variações na fase relativa dos feixes $\Delta\Phi$ com a intensidade. Finalmente, a outra explicação diz respeito à ocorrência de difração de ordens superiores dos feixes que incidem no meio, pois conforme H. Fragnito e colaboradores [6], estas difrações ocorrem de forma eficiente quando a grade de população torna-se não senoidal devido a efeitos de saturação. Além

disso, segundo I. C. Khoo e Y. Zhao [7], em meios que possuem uma forte não linearidade do tipo Kerr, a superposição dos feixes de bombeamento e prova produzem a difração do feixe de bombeamento e a presença desta ordem difratada pode alterar significativamente o ganho do feixe de prova.

Neste ponto vale salientar que em nosso experimento a difração de primeira ordem do feixe de bombeamento, mesmo a baixas intensidades, ocorre eficientemente. Na Fig. 6.11, apresentamos o parâmetro do ganho Γ_d (para a difração de primeira ordem do feixe de bombeamento), definido como sendo $\ell n[I_1^+(L,\Delta)/I_1^+(L,0)]$ em função da diferença de freqüencia entre os feixes de bombeamento e de prova, para uma intensidade de $I_0^+ = 0.4kW/cm^2$.

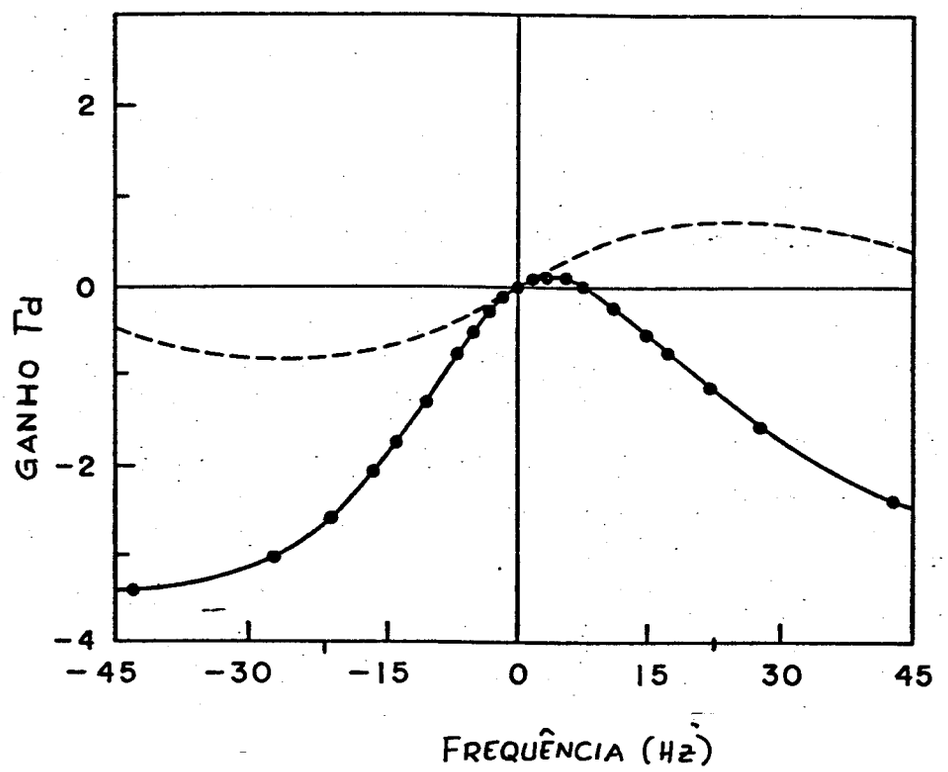


Fig. 6.11. Parâmetro de ganho do feixe de bombeamento difratado em primeira ordem Γ_d versus diferença de freqüência. A curva contínua representa uma ajuda visual aos pontos experimentais (círculos). A curva tracejada representa a parte anti-simétrica do sinal difratado.

A curva anti-simétrica na figura acima em muito se assemelha àquela da figura (6.8(b)) e claramente indica que uma parcela de sinal que deveria chegar até o feixe de prova está indo na direção do feixe difratado.

No quadro a seguir estão os parâmetros relevantes , obtidos via M2O, para a amostra de $GdAlO_3 : Cr^{3+}$. Também apresentamos alguns resultados já obtidos para o $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, por outras técnicas.

	$T_1(ms)$	$I_S(kW/cm^2)$	$n_2' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	$n_2'' \times 10^{-5}(cm^2/kW)$	r
$GdAlO_3 : Cr^{3+}$	14	1.2	14	2.7	0.19
	10	1.2 [a]	18.6 [b]	–	–

[a] Este valor para a intensidade de saturação foi obtido por T. Catunda e colaboradores, J. Opt. Soc. Am. B8, 820 (1991).

[b] Conforme Ref. 3.

VI.5 – REFERÊNCIAS

[1] G. D. Gilliland, A. Suchocki, K. W. Ver Steeg, R. C. Powell e D. F. Heller, Phys. Rev. B**38**, 6227 (1988)

[2] P. F. Liao e D. M. Bloom, Opt. Lett. **3**, 4 (1978)

[3] T. Catunda, J. P. Andreeta e J. C. Castro, Appl. Opt. **25**, 2391 (1986)

[4] I. McMichael, P. Yeh, P. Beckwith, Opt. Lett. **13**, 500 (1988)

[5] S. A. Boothroyd, J. Chrostowski e M. S. O'Sullivam, Opt. Lett. **14**, 946 (1989)

[6] H. L. Fragnito, S. F. Pereira e A. Kiel, J. Opt. Soc. Am. B**4**, 1309 (1987)

[7] I. C. Khoo e Y. Zhao, IEEE J. Quantum Electron. QE - **25**, 368 (1989)

VII – CONCLUSÕES

As principais abordagens que tratam do processo da M2O em meios tipo Kerr, existentes na literatura e aqui referidas ao longo dos capítulos anteriores se mostraram inadequadas para explicar a transferência de energia entre os feixes de bombeamento e prova em meios que apresentam alto ganho e/ou a ocorrência da saturação do ganho. Algumas delas [1,2], baseadas no modelo de relação de Debye [3], não preveem os efeitos de saturação do ganho e do tempo de resposta do meio, além de estarem restritas àquelas situações onde não só o meio é opticamente fino como a intensidade do feixe de bombeamento é muito inferior à intensidade de saturação do meio. Outras mais recentes [4-6], embora levem em consideração os efeitos de saturação não conseguem explicar a aparente mudança de sinal da razão $r = n_2''/n_2'$ verificada para o $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ [7]. Com o intuito de explicar o comportamento para o ganho do feixe de prova verificado na Ref. [7], desenvolvemos a abordagem teórica apresentada no capítulo IV que, baseada no fenômeno da auto-difração explica aquele comportamento do parâmetro de ganho Γ_1 no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$. Esta abordagem, possui características marcantes de ser aplicável a meios que apresentam um ganho de feixe de prova de valor alto, descreve corretamente a dependência do parâmetro de ganho com a intensidade de saturação do meio, além de simplificar matematicamente as equações diferenciais que descrevem a evolução dos campos, onde ao contrário dos tratamentos convencionais estas equações se reduzem aqui à equações diferenciais lineares. Uma outra característica importante deste tratamento é a de trazer naturalmente a contribuição da absorção do estado excitado nos mecanismos de perda.

Quanto aos resultados experimentais obtidos com a técnica da M2O e discutidos no capítulo V, estes mostraram uma excelente concordância com aqueles já obtidos por outras técnicas. Os resultados da M2O obtidos para o rubi quanto aos valores do tempo de vida do estado excitado ^2E (estado metaestável), da parte real do índice de refração não linear e quanto ao valor da razão $r = n_2''/n_1'$, concordam plenamente com aqueles obtidos

por I. McMichael et al [8] e S. A. Boothroyd e colaboradores [9]. Entretanto, o valor da intensidade de saturação neste material aqui obtido é aproximadamente 10% do que aquele encontrado na Ref. [8]. A razão desta ligeira discrepância foi discutida no cap. VI referente às análises e discussões dos resultados obtidos. Para a alexandrita o tempo de vida do estado excitado, dos íons de cromo que ocupam os sítios com simetria de inversão, apresentou um valor de 45 ms conforme resultados obtidos por R. C. Powell e colaboradores [10]. Por outro lado, os valores da intensidade de saturação e da parte real do índice de refração não linear, são aproximadamente 30% menores do que o valor calculado para a intensidade de saturação [11] e o valor de n_2' medido por A. M. Ghazzawi et al [12]. Quanto ao valor da parte imaginária do índice de refração não linear n_2'', há uma discordância entre o valor que obtivemos e aquele que decorre do valor da razão entre as contribuições da grade absortiva e dispersiva para o sinal da mistura degenerada de quatro ondas [12]. Naquela referência o valor da razão r é igual a zero e portanto, n_2'' também é zero de modo que, a grade de população induzida no meio é de origem inteiramente dispersiva. No caso do aluminato de gadolínio dopado com íons de cromo ($GdAlO_3 : Cr^{3+}$), os resultados obtidos para as grandezas τ, n_2' e I_S estão de acordo com os valores obtidos por T. Catunda et al [13], enquanto o valor da parte imaginária n_2'' jamais havia sido determinado anteriormente. Ainda, segundo os resultados no cap. VI o $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ possui valores da parte real e imaginária do índice de refração não linear, aproximadamente uma ordem de grandeza maior do que aqueles obtidos para o rubi de modo que, enquanto no rubi a grade de população induzida é predominantemente dispersiva, no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ a grade é de natureza mista sendo a contribuição da grade absortiva, bastante considerável cerca de 19% à baixas intensidades.Quanto a alexandrita, embora seus valores para n_2' e n_2'' sejam um pouco menores do que aqueles correspondentes ao $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, a baixa assimetria da curva de ganho Γ_1, Figs. 6.6, indicada pelo valor da razão n_2''/n_2' nos leva a inferir que a maior contribuição na formação da grade induzida no meio e por consequente ao sinal da M2O é de origem dispersiva, em conformidade com os resultados da Ref. [11].

Como citado na introdução deste trabalho, um dos objetivos para sua realização consistia em buscar uma explicação para o comportamento das curvas de ganho no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, uma vez que tal comportamento não se verificou, pelo menos de forma significativa, para as amostras de rubi e alexandrita. A principal característica do $GdAlO_3 : Cr^{3+}$, qual seja, aquela onde o processo de transferência de energia para o feixe de prova é muito eficiente, i.é, o ganho do feixe de prova atinge percentuais superiores a 200%, para intensidades bem inferiores àquela da saturação, naturalmente tornou-se um caminho para a explicação do comportamento da curva de ganho Γ_1 com a intensidade neste mateiral. A título de informação, o ganho máximo apresentado pelo feixe de prova no rubi e alexandrita é de apenas 40%, isto para intensidades próximas a de saturação. Em parte, esta característica do $GdAlO_3 : Cr^{3+}$ de ser um meio amplificador, devido ao forte acoplamento entre os feixes no seu interior, explica o comportamento da curva de ganho Γ_1, que à luz do tratamento convencional da M2O seria explicado por uma mudança da razão n_2''/n_2' com a intensidade. Segundo o tratamento apresentado no cap. IV, em meios nos quais o ganho do feixe de prova é alto, o que se mede na verdade não é a razão $r = n_2''/n_2'$, mas sim um parâmetro r_{eff}, Eq. 4.17, que é uma função da intensidade do feixe de bombeamento. Contudo, esta abordagem não foi capaz de explicar o comportamento do parâmetro de ganho Γ_1 para intensidades superiores a $0.6kW/cm^2$, parecendo indicar que o tratamento não é válido para intensidades próximas a intensidade de saturação. Entretanto, tal conclusão não é definitiva, conforme discussões realizadas ao final do capítulo anterior, uma vez que o nosso tratamento não leva em consideração a presença do feixe de bombeamento difratado em primeira ordem, enquanto experimentalmente a sua presença ocorre de forma muito eficiente mesmo à baixas intensidades. Portanto, uma extensão natural deste tratamento diz respeito a inclusão da primeira ordem difratada do feixe de bombeamento e que ja está sendo desenvolvida.

Outros pontos importantes que já estão sendo investigados ou ainda serão motivo de estudo, dizem respeito a origem da mudança de sinal do parâmetro r_{eff} no $GdAlO_3 : Cr^{3+}$. O comportamento deste parâmetro talvez seja explicado pelo fato da absorção do estado

excitado ^2E ser maior do que aquela do estado fundamental $^4T_2$, neste comprimento de onda e intensidade (superior a aproximadamente $0.17kW/cm^2$). Ainda com base nesta possibilidade, variando o comprimento de onda dos feixes, podemos investigar a contribuição da banda de transferência de carga à polarizabilidade deste e de outros materiais a exemplo do que foi feito por Weaver e Payne [14], ou como realizado por Adler e Lawandy [15], variarmos o comprimento de onda e a temperatura de modo a investigar se outros níveis além da banda de transferência de carga contribuem para a susceptibilidade do estado excitado.

VII.1 – REFERÊNCIAS

[1] P. Yeh, J. Opt. Soc. Am. B**3**, 747 (1986)

[2] S. A. Boothroyd, J. Chrostowski e M. S. O'Sullivan, Opt. Lett. **14**, 946 (1989)

[3] Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics", John Wiley & Sons, N. York, (1984)

[4] H. Zhou, X. Mi, Q. Jiang, R. Zhang e P. Ye, Opt. Commun. **78**, 382 (1990)

[5] H. Fujiwara, K. Shio e S. Miyanaga, J. Opt. Soc. Am. B**8**, 1740 (1991)

[6] S. C. Zilio, J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e M. J. V. Bell, Opt. Commun. **86**, 81 (1991)

[7] J. C. Penaforte, E. A. Gouveia e S. C. Zilio, Opt. Lett. **16**, 452 (1991)

[8] I. McMichael, P. Yeh e P. Beckwith, Opt. Lett. **13**, 500 (1988)

[9] S. A. Boothroyd, J. Chrostowski e M. S. O'Sullivan, J. Opt. Soc. Am. B**6**, 766 (1989)

[10] R. C. Powell, L. Xi, X. Gang, G. J. Quarles e J. C. Walling, Phys. Rev. B**32**, 2788 (1985)

[11] G. D. Gilliland, A. Suchocki, K. W. Ver Steeg e R. C. Powell, Phys. Rev. B **38**, 6227 (1988)

[12] A. M. Ghazzawi, J. K. Tyminski, R. C. Powell e J. C. Walling, Phys. Rev. B**30**, 7182 (1984)

[13] T. Catunda, A. M. Cansian e J. C. Castro, J. Opt. Soc. Am. B**8**, 820 (1991)

[14] S. C. Weaver e S. A. Payne, Phys. Rev. B**40**, 10727 (1989)

[15] C. L. Adler e N. M. Lawandy, Opt. Commun. **81**, 33 (1991)

APÊNDICE A

DERIVAÇÃO DAS EQUAÇÕES PARA AS INTENSIDADES E FASES DOS CAMPOS E_1 , E_2 E SUAS SOLUÇÕES

A polarização óptica estabelece as diferenças entre os campos no vácuo e no meio através da equação de onda,

$$\nabla^2 \vec{E} - \left(\frac{1}{c}\right)^2 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{TOT}}{\partial t^2}. \qquad (A.1-1)$$

Uma vez conhecida a $\vec{P}_{TOT}$, todas as propriedades ópticas do meio podem ser determinadas. Considerando ondas planas monocromáticas e linearmente polarizadas, que se propagam ao longo da direção z, em meios homogêneos e isotrópicos, podemos escrever

$$\vec{E}(z,t) = \frac{\hat{x}}{2} E(z,t) \exp[i(kz - \omega t + \Phi)] + c.c.,$$

$$\vec{P}_{TOT}(z,t) = \frac{\hat{x}}{2} P_{TOT}(z,t) \exp[i(kz - \omega t + \Phi)] + c.c.,$$

onde, $c.c.$ representa o complexo conjugado dos termos acima x é o versor que indica a direção de polarização e as grandezas E, Φ e P são funções suaves do tempo t e da coordenada z. Por dependência suave queremos dizer,

$$|\frac{\partial}{\partial t}f(z,t)| << |\omega f(z,t)| \quad e \quad |\frac{\partial}{\partial z}f(z,t)| << |kf(z,t)|.$$

Em geral, podemos fazer a seguinte separação na polarização dentro do meio

$$\vec{P}_{TOT}(z,t) = \varepsilon_0 \chi_L \vec{E}(z,t) + \vec{P}_{NL}(z,t),$$

de modo que o primeiro termo descreve a polarização não linear e desta forma, a equação de onda é re-escrita como sendo

$$\nabla^2 \vec{E} - \left(\frac{n_0}{c}\right) \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial P_{NL}}{\partial t^2}, \qquad (A.1-2)$$

onde n_0 representa o índice de fundo, que geralmente é escolhido de modo que $\varepsilon_0 \chi \vec{E}$, venha a coincidir com a parte linear da polarização não ressonante. Neste caso, n_0 é escolhido como sendo o índice de refração da matriz.

Usando na Eq. (A.1-2), a aproximação de que as variáveis são funções cuja envoltória são funções que variam suavemente (esta aproximação é também conhecida como aproximação adiabática ou aproximação de Born), aquela equação torna-se

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_0}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E = -i\frac{2\pi k_0}{n_0^2} P_{NL} = -\frac{i2\pi k_0 \chi^{(3)}}{n_0^2} |E|^2 E, \qquad (A.1-3)$$

onde, P_{NL} representa as componentes lentas do campo total e da polarização não linear induzida no meio. Note que a Eq. (A.1-3) é uma equação escalar e que $\chi^{(3)}$ representa a susceptibilidade de terceira ordem, que por sua vez está relacionada

à parte não linear do índice de refração por $\chi^{(3)} = n_0 n_2/2\pi$. A equação (A.1-3) é válida, também, para cada um dos campos separadamente desde que no segundo membro considere-se os termos síncronos com E_1 e E_2. Portanto, substituindo $\chi^{(3)} = n_0 n_2/2\pi$ e a Eq. (3) em A.1-3), obtem-se facilmente as Eqs. (10-11),

$$\frac{dE_1}{dz} = -\frac{i\omega(n_2' - in_2'')}{2.c.cos\Theta/2}\left[|E_1|^2 E_1 + |E_2|^2 E_1 + \frac{|E_2|^2 E_1(1 - i\Delta)}{(1+\Delta^2)}\right], \qquad (A.1-4)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -\frac{i\omega(n_2' - in_2'')}{2.c.cos\Theta/2}\left[|E_1|^2 E_2 + |E_2|^2 E_2 + \frac{|E_1|^2 E_2(1 + i\Delta)}{(1+\Delta^2)}\right]. \qquad (A.1-5)$$

Escrevendo a amplitude complexa do campo, $E_j(\vec{r},t)$, como

$$E_j(\vec{r},t) = \sqrt{2I_j(\vec{r},t)}\exp[i\Phi_j(\vec{r},t)] \quad ; \quad j = 1,2, \qquad (A.1-6)$$

onde $\Phi_j(\vec{r},t)$ é o fator de fase do campo $E_j(\vec{r},t)$. Substituindo nas equações (A.1-4) (A.1-5), temos para as intensidades

$$\frac{dI_1}{dz} = -\frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) I_1 I_2 - \alpha I_1 \equiv -\beta I_1 I_2 - \alpha I_1, \qquad (A.1-7)$$

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) I_1 I_2 - \alpha I_2 \equiv \beta I_1 I_2 - \alpha I_2. \qquad (A.1-8)$$

Enquanto as fases Φ_1 e Φ_2 são obtidas a partir do seguinte par de equações

$$\frac{d\Phi_1}{dz} = -\frac{2\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{1-r}{1+\Delta^2}\right) I_2, \qquad (A.1-9)$$

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = -\frac{2\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{1+r\Delta}{1+\Delta^2}\right) I_1, \qquad (A.1-10)$$

Adicionando as equações (A.1-7) e (A.1-8) e integrando o resultado obtem-se

$$I_1 + I_2 = c\exp(-\alpha z), \qquad (A.1-11)$$

onde $I_1 + I_2 = I_{TOT}(z)$ e $c = I_1(0) + I_2(0)$. Substituindo I_1, da equação acima em (A.1-8) resulta

$$\frac{dI_2}{dz} - \left(\beta c e^{-\alpha z} - \alpha\right) I_2 = -\beta I_2^2, \qquad (A.1-12)$$

com

$$\beta = \frac{4\pi n_2'}{\lambda cos\Theta/2}\left(\frac{\Delta - r}{1+\Delta^2}\right) \qquad (A.1-13)$$

A equação diferencial (A.1-12) é bem conhecida na literatura, é mais propriamente conhecida como equação de Bernoulli, e pode ser integrada diretamente. A solução de (A.1-12) é então

$$I_2(z) = \frac{I_2(0)[1+m]\exp(-\alpha z)}{1 + m\exp[-\beta I_1(0)\,(1-\exp(-\alpha z))\,/\alpha]}, \qquad (A.1-14)$$

onde $m = I_1(0)/I_2(0)$. Uma simplificação da solução apresentada acima, é feita tomando por base o experimento da M2O, no qual o feixe de bombeamento I_1, é muito mais intenso do que o feixe de prova I_2 usualmente $I_2 \sim 0.01 I_1$), de modo que $m >> 1$. Desta forma, a solução (A.1-14) em $z = L$, com $m >> 1$, é dada pela expressão. Para o feixe de bombeamento, a equação diferencial é obtida de modo análogo àquele que levou à (A.1-12) e sua solução tem a seguinte forma:

$$I_1(z) = \frac{I_1(0)[1 + m^{-1}]\exp(-\alpha z)}{1 + m^{-1}\exp[\beta I_1(0)\,(1 - \exp(-\alpha z))\,/\alpha]}, \qquad (A.1-15)$$

e na situação em que $m >> 1$, temos:

$$I_1(z) \sim I_1(0)\exp(-\alpha z).$$

A solução para as fases $\Phi_1(z)$ e $\Phi_2(z)$, são obtidas substituindo as Eqs. (A.1-14,15) em (A.1-9,10), respectivamente. Durante o processo de integração destas equações, vamos fazer uso da seguinte fórmula integral:

$$\int \frac{e^{-\alpha z}dz}{1 + B\exp[A\exp(-\alpha z)/\alpha]} = \frac{1}{A}\ell n\left\{1 + \frac{1}{B}\exp\left[-\frac{A}{\alpha}\exp(-\alpha z))\right]\right\}. \qquad (A.1-16)$$

Assim, as soluções para as fases são:

$$\Phi_1(z) - \Phi_1(0) = \frac{1}{2}\left(\frac{1-r}{\Delta - r}\right)\ell n\left[\frac{1 + m^{-1}}{1 + m^{-1}\exp\left[\beta I_1(0)\,(1 - \exp(-\alpha z))\,/\alpha\right]}\right], \qquad (A.1-17)$$

e

$$\Phi_2(z) - \Phi_2(0) = \frac{1}{2}\left(\frac{1+r\Delta}{\Delta - r}\right) \ln\left[\frac{1+m}{1+m\exp\left[-(\beta I_1(0)/\alpha)\left(1-\exp(-\alpha z)\right)\right]}\right]. \tag{A.1-18}$$

APÊNDICE B

DETERMINAÇÃO DOS COEFICIENTES A_n DA EXPANSÃO EM SÉRIE DE FOURIER DA POPULAÇÃO DO ESTADO EXCITADO n_1

O sistema atômico, conforme Fig. (4.2), é descrito por um modelo atômico de três níveis, onde a eficiência quântica do nível 2 é aproximadamente unitária. A evolução da população do nível metaestável, nível 1, pode ser descrita pela seguinte equação de taxas

$$\frac{dn_1}{dt} = (1 - n_1)W_{up} - \frac{n_1}{T_1}, \qquad (B.1-1)$$

com

$$W_{up} = \frac{I}{I_S T_1} \qquad (B.1-2)$$

onde expressamos a taxa de bombeamento, W_{up}, em sua forma original $W_{up} = \sigma_0 I/\hbar\omega$ em termos da intensidade de saturação. Substituindo a distribuição de intensidade, dada pela Eq(4.2) em (B.1-2) e o resultado em (B.1-1) obtem-se

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{n_1}{T_1'} = \frac{S_0}{T_1} + \frac{S_1}{2T_1}\left[e^{i(Kx-\Omega t+\Delta\Phi)} + c.c.\right] - \frac{n_1 S_1}{2T_1}\left[e^{i(Kx-\Omega t+\Delta\Phi)} + c.c.\right], \quad (B.1-3)$$

onde a abreviação c.c. é usada para representar o termo complexo conjugado. Além disso, substituindo na equação acima a expansão da população do estado excitado

$$n_1(x,t) = \frac{1}{1+S_0}\sum_{n=-\infty}^{\infty} = A_n e^{in(Kx-\Omega t+\Delta\Phi)} \qquad (B.1-4)$$

Desta forma, (B.1-3) em regime estacionário torna-se

$$\frac{1}{1+S_0}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\left[A_n\left(-in\Omega+\frac{1}{T_1'}\right)e^{in(kx-\Omega t+\Delta\Phi)}\right] = \frac{S_0}{T_1}+\frac{S_1}{2T_1}\left[e^{i(kx-\Omega t+\Delta\Phi)}+c.c.\right]+$$
$$-\frac{S_1}{2T_1}\left(\frac{1}{1+S_0}\right)\sum_{n=-\infty}^{\infty}A_n e^{in(kx-\Omega t+\Delta\Phi)}\left[e^{i(kx-\Omega t+\Delta\Phi)}+c.c.\right], \qquad (B.1-5)$$

por regime estacionário queremos dizer que, a amplitude da grade não varia significativamente de modo que $dA_n/dt \sim 0$, para $t >> T_1$.

Os coeficientes da expansão em (B.1-4) são determinados pela comparação dos termos com a mesma dependência nas coordenadas x e t na Eq. (B.1-5). A título de ilustração, vamos determinar alguns coeficientes de modo que ao final possamos escrever a forma geral deles. Assim, para $n = 0$ temos

$$\frac{1}{1+S_0}\frac{A_0}{T_1'} = \frac{S_0}{T_1}$$

multiplicando o resultado acima por $(1+S_0)$ obtemos

$$A_0 = S_0 \qquad (B.1-6)$$

Para $n = 1$, em (B.1-5), após uma manipulação algebricamente tão simples quanto aquela que levou a A_0, vem

$$\frac{A_1}{1+S_0}\left(-i\Omega + \frac{1}{T_1'}\right) = \frac{S_1}{2T_1} - \frac{S_1 A_0}{2(1+S_0)T_1},$$

fazendo uso de (B.1-6) e explicitando o resultado acima em termos de A_1, temos

$$A_1 = \frac{S_1}{2(1+S_0)}(1 - i\Omega T_1')^{-1}. \qquad (B.1-7)$$

Procedendo de modo análogo ao que fizemos na determinação do coeficiente A_1, para $n = -1$ resulta

$$A_{-1} = \frac{S_1}{2(1+S_0)}(1 + i\Omega T_1')^{-1} \qquad (B.1-8)$$

Conforme verificamos para os casos de $n = \pm 1$ e facilmente pode ser visto para outros valores de n, a determinação dos coeficientes A_n é feita através de um processo de recorrência. Assim, sumarizando, os coeficientes A_n são dados como a seguir

$$A_0 = S_0$$

$$A_n = (-1)^{n+1}\left(\frac{S_1/2}{1+S_0}\right)^{|n|}\left[\Pi_{m=1}^{|n|}\left(1 - isign(n)m\Omega T_1'\right)\right]^{-1}, n \neq 0$$