UNIVERSIDADE DE SAO PAULO

INSTITUTO DE FISICA E QUIMICA DE SAO CARLOS

DEPARTAMENTO DE FISICA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS

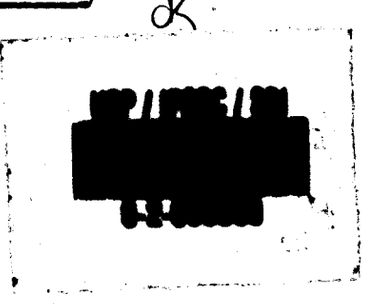
Determinação da fase do índice de refração não linear do Rubi e $GdAlO_3$: Cr^{+3}

Maria José Valenzuela Bell

Dissertação apresentada ao Instituto de Física e Química de São Carlos, para obtenção do título de Mestre em Ciências "Física Básica".

Orientador: Prof.Dr.Sérgio Carlos Zilio

SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO - IFQSC
FÍSICA



São Carlos - São Paulo
1992

UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO
Instituto de Física e Química de São Carlos

Fone (0162) 72-6222
Fax (0162) 72-2218

Av. Dr. Carlos Botelho, 1465
Caixa Postal 369
CEP 13560 - São Carlos - SP
Brasil

MEMBROS DA COMISSAO JULGADORA DA DISSERTACAO DE MESTRADO DE MARIA JOSE VALENZUELA BELL APRESENTADA AO INSTITUTO DE FISICA E QUIMICA DE SAO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SAO PAULO, EM 25.05.1992

COMISSAO JULGADORA:

Prof.Dr.Sergio Carlos Zilio

Prof.Dr.Luis Antonio de Oliveira Nunes

Prof.Dr.Artêmio Scalabrin

Aos *meus pais* pelo incentivo,

aos *meus irmãos*

e ao *Virgilio*

AGRADECIMENTOS

- Ao *Prof. Sérgio Carlos Zilio*, pela orientação deste trabalho.

- 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 *Josias C. Penaforte* e ao *Luimar C. de Oliveira*, pelas discussões, sugestões, ajuda nas medidas e principalmente pela amizade e incentivo.

- À amiga *Mônica S. Santos* pela amizade, incentivo e convivência.

- 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 convivência.

- 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.

- Ao CNPq pelo suporte financeiro.

RESUMO

Estudamos os efeitos não lineares em cristais dopados com Cr^{+3} como o Rubi ($Al_2O_3:Cr^{+3}$) e o Aluminato de Gadolínio ($GdAlO_3:Cr^{+3}$), apresentados através de um índice de refração dependente da intensidade de luz incidente, que caracteriza os meios tipo Kerr ($n=n_0+n_2I$, com $n_2=n_2'+in_2''$).

As propriedades não lineares desses cristais se devem à diferença de susceptibilidades do estado excitado e do estado fundamental dos íons de Cr^{+3}. Este modelo é amplamente conhecido, e explica muito bem os efeitos não lineares do Rubi. Porém, para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ há um efeito que não pode ser explicado por esse modelo simplificado: a dependência da razão $r=n_2''/n_2'$ com a intensidade, cuja observação experimental foi feita utilizando a técnica de Mistura de Duas Ondas (MDO). A explicação para esse efeito foi apresentada recentemente e propõe que seja devido à interação de pares de Cr, presente quando a concentração de íons de Cr no material é alta.

Neste trabalho verificamos a dependência de r com a intensidade por MDO e utilizando uma nova técnica, a MDO transiente. Esta última possui a grande vantagem de fornecer a razão r de forma direta, enquanto que na MDO , r é obtido pelo ajuste de uma curva de ganho. Como resultado, observamos que a MDO transiente fornece uma dependência de r com a intensidade que está de acordo com a prevista pela interação de pares de Cr e é superior à obtida por MDO. Também apresentamos os parâmetros determinados via MDO (n_2', a intensidade de saturação do meio, r e o tempo de resposta do meio) para 488 nm no $GdAlO_3:Cr^{+3}$, cujos valores ainda não são conhecidos na literatura.

ABSTRACT

We have studied the nonlinear properties of Chromium doped crystals such as ruby ($Al_2O_3:Cr^{+3}$) and gadolinium aluminate ($GdAlO_3:Cr^{+3}$), given by the intensity dependent refractive index characteristic of Kerr media, where $n=n_0+n_2I$ and $n_2=n_2'+in_2''$.

The nonlinear properties of these crystals are due to the diference between the excited and the ground state susceptibilities. This model is widely used and explains the nonlinearity of ruby. However, $GdAlO_3:Cr^{+3}$ presents an effect that cannot be explained by that simpliflied approach: the intensity dependence of the parameter $r=n_2''/n_2'$. The experimental observation of such a dependence was achieved using the Two Wave Mixing technique. An explanation for this effect was recently proposed using the interaction between Chromium ions that occurs when their concentration is high enough.

In this work we observed the intensity dependence of r via Two Wave Mixing and using a new technique, transient Two Wave Mixing. The last one gives the parameter r in a direct way, while the Two Wave Mixing gives r by the fitting of a gain curve. As a result, we observed that transient Two Wave Mixing shows greater intensity dependence than Two Wave Mixing and agrees with the interaction of Chromium ions. Also, we present the Two Wave Mixing parameters (n_2', the saturation intensity and response time of the medium) at 488 nm, that were never reported before.

ÍNDICE

RESUMO I

ABSTRACT II

INTRODUÇÃO 01

1-CONCEITOS BÁSICOS DE ÓPTICA NÃO LINEAR 04

1.1-INTRODUÇÃO 04

1.2-PROPAGAÇÃO DE ONDAS EM MEIOS ÓPTICOS 05

1.3-FENÔMENOS NÃO LINEARES 07

1.3.1-FENÔMENOS LINEARES 07

1.3.2-FENÔMENOS DE SEGUNDA ORDEM 07

1.3.3-FENÔMENOS DE TERCEIRA ORDEM 08

1.4-EFEITOS AUTO-INDUZIDOS 09

1.4.1-EFEITO KERR 10

1.4.2-AUTO-FOCALIZAÇÃO 12

1.4.3-AUTO-DEFOCALIZAÇÃO 12

1.4.4-AUTO-MODULAÇÃO DE FASE 13

1.5-MECANISMOS DE NÃO LINEARIDADE DO ÍNDICE DE REFRAÇÃO 14

2-GERAÇÃO DE GRADES INDUZIDAS POR LASER 16

2.1-INTRODUÇÃO 16

2.2-FORMAÇÃO DA GRADE 18

2.3-GRADES FINAS E ESPESSAS 20

2.4-MECANISMOS DE FORMAÇÃO DA GRADE 22

2.5-GRADES DE POPULAÇÃO 23

2.5.1-FORMAÇÃO DA GRADE DE POPULAÇÃO NO RUBI 23

2.5.2-INTERAÇÃO DE PARES DE Cr^{+3} (FORMAÇÃO DA GRADE NO $GdAlO_3:Cr^{+3}$) 29

3-TÉCNICA DE MISTURA DE DUAS ONDAS (MDO) 33

3.1-INTRODUÇÃO 33

3.2-MDO NÃO DEGENERADAS EM MEIOS KERR 34

3.2.1-FORMAÇÃO DA GRADE DE ÍNDICE DE REFRAÇÃO 35

3.2.2-EQUAÇÕES BÁSICAS 36

3.3-MDO TRANSIENTE EM MEIOS KERR 42

3.3.1-INTRODUÇÃO 42

3.3.2-FORMAÇÃO DA GRADE DE ÍNDICE DE REFRAÇÃO 43

3.3.3-EQUAÇÕES BÁSICAS 43

3.4-EFEITOS DE SATURAÇÃO NA MISTURA DE DUAS ONDAS 45

3.4.1-INTRODUÇÃO 45

3.4.2-MDO NÃO DEGENERADA EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS 46

4-MONTAGEM EXPERIMENTAL 52

4.1-INTRODUÇÃO 52

4.2-CALIBRAÇÃO DO PZT 54

4.3-ALINHAMENTO DO SISTEMA 56

4.4-MEDIDAS REALIZADAS NA MDO 59

4.4.1-GAMA 1 (Γ_1) 59

4.4.2-GAMA 2 (Γ_2) 59

4.5-MDO TRANSIENTE 61

4.5.1-SISTEMA DE AQUISIÇÃO 62

5-RESULTADOS 64

5.1-INTRODUÇÃO 64

5.2-RUBI 66

5.2.1-PROPRIEDADES ÓPTICAS DO RUBI 66

5.2.2-RESULTADOS DA MDO PARA O RUBI 69

5.2.3-RESULTADOS DA MDO TRANSIENTE NO RUBI 74

5.3-$GdAlO_3:Cr^{+3}$ 76

5.3.1-PROPRIEDADES ÓPTICAS DO $GdAlO_3:Cr^{+3}$ 76

5.3.2-RESULTADOS DA MDO TRANSIENTE NO $GdAlO_3:Cr^{+3}$ 78

5.3.3-CÁLCULO DO COEFICIENTE $F(\omega)$ 81

5.3.4-RESULTADOS DA MDO 82

6-CONCLUSÕES 87

REFERÊNCIAS 90

INTRODUÇÃO

Neste trabalho estudamos cristais com propriedades não lineares dopados com íons de Cr^{+3} como o Rubi ($Al_2O_3:Cr^{+3}$) e Aluminato de Gadolinio ($GdAlO_3:Cr^{+3}$). A não linearidade é devida aos íons de Cr^{+3} e se apresenta através de um índice de refração n dependente da intensidade de luz incidente, que caracteriza os meios conhecidos como meios tipo Kerr. Nestes meios $n = n_0+n_2I$, onde n_0 é o índice de refração linear, $n_2 = n_2' + in_2''$ é o chamado índice de refração não linear e I é a intensidade incidente.

Para o Rubi, sabemos que a não linearidade está ligada a transições eletrônicas nos íons de Cr^{+3} onde os níveis de energia envolvidos apresentam susceptibilidades diferentes [15]. Na interação com luz na região visível, o Rubi é tratado como um sistema de três níveis ($^4A_2$ representa o estado fundamental, $^4T_2$ a banda de absorção e ^2E o estado excitado), onde apenas o estado fundamental e o excitado possuem população considerável. A não linearidade se deve ao fato da susceptibilidade do estado fundamental ser diferente da do estado excitado, pois esta última possui uma contribuição da banda de transferência de carga situada a 40000 cm^{-1} acima do estado ^2E [15,16].

Esse modelo explica muito bem as propriedades não lineares do Rubi e prevê valores para n_2 e para $r=n_2''/n_2'$ que concordam com os valores obtidos experimentalmente [9,10]. Porém, ao tentar aplicá-lo para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ surgiram alguns efeitos inesperados. Verificamos experimentalmente que no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ o valor de r depende da intensidade incidente, quando o esperado seria que r tivesse um valor constante. Essa verificação foi obtida através da utilização da

SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO - IFQSC
FÍSICA

técnica de Mistura de Duas Ondas (MDO). A MDO nos permite obter o valor de n_2', r, da intensidade de saturação I_s e o tempo de resposta τ do meio.

O objetivo deste trabalho consitiu em verificar a dependência de r com a intensidade utilizando uma nova técnica, conhecida como MDO transiente. A grande vantagem da MDO transiente está no fato de ser de fácil realização, sendo necessárias pequenas modificações no experimento de MDO convencional. Além disso, o valor de r é obtido de forma direta, ao contrário da MDO onde r é determinado através do ajuste de uma curva de ganho.

Como resultado, verificamos que tanto a MDO como a MDO transiente apontam claramente a dependência de r com a intensidade no $GdAlO_3:Cr^{+3}$. Para explicá-la foi necessário incluir no modelo utilizado para o Rubi a presença de outro efeito , já observado em cristais de $GdAlO_3:Cr^{+3}$ com altas concentrações de Cr^{+3}, que é a interação entre pares Cr-Cr [19,31-32]. A introdução desse efeito foi feita recentemente [42] no caso de uma amostra com 0.8% de íons de Cr^{+3} e apresentou bons resultados utilizando a técnica de MDO em 514 nm.

Neste trabalho verificamos o comportamento de r com a intensidade (por MDO e MDO transiente) e obtivemos os parâmetros n_2' e I_s em 514 e 488 nm, que eram conhecidos na literatura apenas para 514 nm [22]. Comparando o resultado teórico que prevê a dependência de r com a intensidade e o experimental verificamos que a MDO transiente mostra a mesma dependência funcional prevista pelo modelo de interação de pares. Porém, a MDO fornece valores de r que apresentam algumas discrepâncias em relação aos obtidos por MDO transiente.

A apresentação deste trabalho está dividida em seis capítulos. No capítulo 1 apresentamos uma introdução aos conceitos básicos utilizados em óptica não linear. Nos capítulos 2 e 3 introduzimos os conceitos necessários para o desenvolvimento das técnicas de MDO e MDO transiente e no final do capítulo 2 mostramos a teoria de formação de grades de população no Rubi e o efeito de interação de pares Cr-Cr. Os resultados e conclusões estão respectivamente nos capítulos 5 e 6.

1- CONCEITOS BÁSICOS DE ÓPTICA NÃO LINEAR

1.1-INTRODUÇÃO:

A óptica não linear envolve o estudo do comportamento de campos eletromagnéticos intensos em meios com propriedades não lineares. As interações não lineares podem mudar as polarizações das ondas incidentes ou gerar novas ondas eletromagnéticas com frequências que podem ser diferentes das do campo incidente. Como as intensidades necessárias para a observação dos fenômenos não lineares são altas, normalmente é necessário utilizar lasers, o que explica o rápido desenvolvimento da óptica não linear após sua descoberta.

De forma geral, o desenvolvimento da óptica não linear pode ser dividido em três períodos [1]. No primeiro período (1961-1965), novos efeitos não lineares foram descobertos com a utilização dos lasers. Estes incluam a geracão de segundo harmônico, amplificação paramétrica, absorção de muitos fótons, auto-focalização, espalhamento estimulado, geração de soma e diferença de frequências, etc. No segundo período (1965-1969), outros efeitos tais como espectroscopia não linear e fenômenos coerentes transientes foram descobertos. Porém, a característica principal desse período consistiu no estudo dos fenômenos já conhecidos e sua aplicação em dispositivos ópticos. No terceiro período (1969-1975), a descoberta de novos efeitos decresceu e o desenvolvimento da óptica não linear foi devido ao aparecimento dos lasers sintonizáveis e de pulsos ultra-curtos. A seguir, faremos uma breve introdução sobre os conceitos básicos da óptica não linear.

1.2- PROPAGAÇÃO DE ONDAS EM MEIOS ÓPTICOS

Quando uma onda eletromagnética se propaga através de um meio óptico, o campo eletromagnético exerce uma força nos elétrons do meio. Como os elétrons internos estão fortemente ligados ao núcleo, a interação do campo ocorre principalmente com os elétrons da última camada. Para fontes de luz comuns, a intensidade do campo elétrico é muito menor que o da ligação dos elétrons e o efeito da radiação pode ser considerado como uma perturbação. Como resultado, a polarização produzida no meio é proporcional ao campo elétrico. Porém, se o campo da radiação for comparável aos campos atômicos (da ordem de 10^8 V/cm) ou se houver transições ressonantes, então a relação entre a polarização e o campo elétrico deixa de ser linear.

Em meios isotrópicos a relação geral entre a polarização P e o campo elétrico total E no meio pode ser expressa em termos de uma série de potências da forma:

$$P=\epsilon_0(\chi^{(1)}E+\chi^{(2)}E^2+\chi^{(3)}E^3+...) \qquad (1.1)$$

Esta série envolve somente as amplitudes da polarização e do campo elétrico, já que supusemos que os dois vetores são paralelos. Na expansão , $\chi^{(1)}$ é a susceptibilidade linear e é muito maior que os coeficientes não lineares $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, etc. ϵ_0 representa a permissividade dielétrica do vácuo.

No caso de um meio em que P e E não são necessariamente paralelos, a polarização deve ser escrita como:

$$P = \epsilon_0 (\chi^{(1)}E + \chi^{(2)} EE + \chi^{(3)}EEE + \dots) \qquad (1.2)$$

onde $\chi^{(1)}$ é o tensor susceptibilidade linear e $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, etc., são tensores de ordem superior.

A expansão representada pela Eq. (1.2) é normalmente escrita como:

$$P = P_l + P_{nl} \qquad (1.3)$$

onde $P_l = \epsilon_0\chi^{(1)}E$ é a polarização linear e $P_{nl} = \epsilon_0(\chi^{(2)}E^2 + \dots)$ é a polarização não linear.

O comportamento de uma onda incidente em um meio não linear é determinado através da equação de ondas, na qual P_{nl} aparece como um termo de fonte:

$$\nabla^2 E - \mu_0\epsilon\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2 P_{nl}}{\partial t^2} \qquad (1.4)$$

onde ϵ é a permissividade dielétrica linear do meio e μ_0 corresponde à permeabilidade do vácuo. A equação de ondas mostra como o campo elétrico evolui na presença de uma polarização não linear. Na ausência desta, a Eq. (1.4) se reduz à equação de ondas lineares, onde várias ondas podem atravessar simultaneamente o meio sem nenhuma interferência mútua e sem gerar novas ondas. O acoplamento entre ondas só pode ocorrer através de uma interação que crie uma polarização não linear.

Normalmente o campo elétrico total E no meio pode ser expresso pela soma de várias ondas planas de tal forma que:

$$E(r,t) = \frac{1}{2} \sum_i \varepsilon_i(r,t) \exp [\omega_i t - k.r] + c.c. \qquad (1.5)$$

onde ω_i é a frequência da i-ésima onda e k_i é o vetor de onda.

1.3-FENÔMENOS NÃO LINEARES

A partir da Eq. (1.1) vemos que cada um dos termos da expansão da polarização é responsável por fenômenos não lineares distintos. A seguir faremos uma breve discussão de alguns deles.

1.3.1-FENÔMENOS LINEARES

$\chi^{(1)}$ representa as propriedades lineares tais como o índice de refração, absorção, ganho e birrefringência. Em um meio linear, as ondas não sofrem influência mútua. A saturação desses efeitos lineares é um processo não linear descrito por termos de ordem mais alta.

1.3.2-FENÔMENOS DE SEGUNDA ORDEM [2,3,7]

Os processos não lineares de segunda ordem mais intensos se originam de transições de dipolo elétrico e devido às restrições de simetria, as susceptibilidades de dipolo elétrico pares são nulas em materiais com simetria de inversão. Dessa forma, o efeito de $\chi^{(2)}$ existe somente em materiais que não possuam

simetria de inversão. A polarização não linear de segunda ordem é dada por $P_{nl} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2$, onde E é o campo elétrico total no meio. Tomando como exemplo o caso de duas ondas E_1 e E_2 com frequências ω_1 e ω_2 que se acoplam, o termo E^2 possui termos que oscilam com frequências diferentes. Existem fatores que oscilam com o dobro da frequência das ondas incidentes, que são responsáveis pelo efeito de geração de segundo harmônico. Outros oscilam com a soma e diferença das frequências incidentes, fenômeno conhecido como oscilação paramétrica e finalmente, temos os termos que não oscilam , responsáveis pelo efeito de retificação óptica, no qual se obtem um sinal DC.

A notação utilizada para representar a susceptibilidade associada aos fenômenos acima descritos é [2]:

$\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ - Geração de segundo harmônico

$\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$ - Retificação óptica

$\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2; \omega_1, \pm\omega_2)$ - Oscilação paramétrica

Os fenômenos acima citados são todos paramétricos, ou seja, a interação entre as ondas e o meio não envolve transferência de energia entre ambos.

1.3.3- FENÔMENOS DE TERCEIRA ORDEM [1-8]

Processos de terceira ordem podem ser observados

independentemente das propriedades de simetria do meio. Embora sejam efeitos de mais alta ordem, $\chi^{(3)}$ pode ser mais intenso que $\chi^{(2)}$ nos casos de interação quase ressonante e em cristais com simetria de inversão, pois nestes últimos $\chi^{(2)}=0$.

Entre outros fenômenos de terceira ordem estão a geração de terceiro harmônico, mistura de 4 ondas, espalhamento Raman, espalhamento Brillouin, absorção de dois fótons, absorção não linear, efeitos auto-induzidos como auto-modulação de fase , auto-focalização, auto-defocalização, efeito Kerr, etc. Os efeitos auto-induzidos são discutidos um pouco mais detalhadamente na seção seguinte.

1.4- EFEITOS AUTO-INDUZIDOS

Ao contrário do que ocorre com os efeitos não lineares como a geração de harmônicos e processos paramétricos, nos quais existe a interação de ondas com frequências diferentes, nos processos auto-induzidos a onda permanece quase-monocromática e o efeito auto-induzido se manifesta na mudança de amplitude, polarização e forma do espectro de frequência.

A origem dos efeitos auto-induzidos pode ser vista a partir da Eq. (1.1). Se todas as ondas incidentes possuirem a mesma frequência ω, os efeitos auto-induzidos são resultado daqueles termos para os quais a frequência de oscilação de P_{nl} é também ω, o que pode ser verificado somente para termos ímpares $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$, etc. Normalmente apenas $\chi^{(3)}$ possui influência significativa.

1.4.1- EFEITO KERR

O efeito Kerr eletrônico é um fenômeno de terceira ordem no qual o índice de refração do meio depende linearmente da intensidade da luz incidente. A dependência com a intensidade pode ser vista através da expansão da polarização no meio dada pela Eq.(1.1), considerando apenas $\chi^{(1)}$ e $\chi^{(3)}$. Como a susceptibilidade total no meio é $\chi^{(1)}+\chi^{(3)}|E|^2$, a expansão correspondente para o índice de refração pode ser escrita como :

$$n = n_0 + n_2\langle|E|^2\rangle \qquad (1.6)$$

onde $\langle|E|^2\rangle$ representa a média temporal do campo E e n_0 é o índice de refração linear. n_2 é o índice de refração não linear ou coeficiente Kerr, e está relacionado à susceptibilidade de terceira ordem por $\chi^{(3)} = 2n_0n_2$. Normalmente n_2 é uma grandeza complexa tal que $n_2=n_2'+in_2''$, onde a parte real dá origem aos efeitos espaciais de auto-focalização, auto-defocalização, alargamento espectral e mudança do vetor de polarização. A parte imaginária é responsável principalmente pela absorção não linear.

1.4.2- AUTO-FOCALIZAÇÃO

A auto-focalização ocorre como resultado da combinação de um valor positivo da parte real do índice de refração não linear e um feixe incidente no qual a parte central é mais intensa, gerando um índice de refração maior que nas extremidades do feixe. Dessa forma, o caminho óptico para a região central do feixe é maior que nas extremidades e o meio se comporta como uma lente

convergente que focaliza o feixe no seu eixo.

Esse efeito tem ação contrária à difração do feixe, existindo uma potência crítica para a qual os dois fenômenos se compensam. Para exemplificar, tomemos o caso de um feixe Gaussiano, como mostrado na Fig. 1.1, cujo perfil de intensidade é:

$$I(r) = I_0 \exp(-2r^2/\omega^2) \qquad (1.7)$$

onde 2ω é o diâmetro do feixe. De acordo com a Eq. (1.6), o índice de refração no meio será dado por $n=n_0+n_2 I_0 \exp(-2r^2/\omega^2)$.

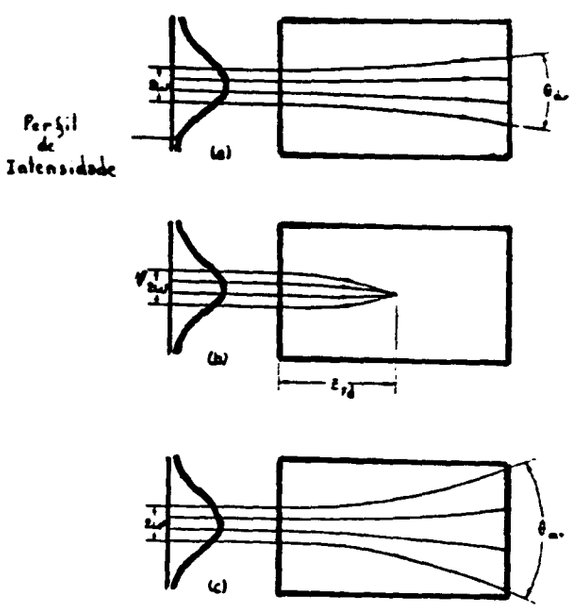


Fig.1.1 (a) Meio linear, onde o feixe diverge devido à difração; (b) Meio não linear com $n=n_0+n_2 I(r)$ e $n_2 > 0$ (auto-focalização); (c) $n_2 < 0$ (auto-defocalização).

No caso de um meio linear (Fig. 1.1a) o feixe diverge, enquanto que no meio não linear, o feixe converge para Z_{fd}, desde que a potência do feixe seja maior que a potência crítica P_{cr} [4,5]. O efeito total da difração e da auto-focalização pode ser considerado como o efeito de uma lente convergente de foco Z_f e de uma lente divergente de foco Z_d, sendo que a combinação destas duas lentes fornece uma lente equivalente de foco Z_{fd} de forma que $(1/Z_{fd}) = (1/Z_f) - (1/Z_d)$ (Fig. 1.1b).

1.4.3-AUTO-DEFOCALIZAÇÃO

O efeito de auto-defocalização resulta da combinação de um valor negativo do índice de refração não linear real e um feixe que é mais intenso no centro que nas extremidades. Nesta situação o índice de refração é menor no centro e o meio se comporta como uma lente divergente, provocando a defocalização do feixe [4,5,6]. Valores negativos do índice de refração não linear podem ocorrer devido à interação com níveis eletrônicos do meio quando a frequência do laser está um pouco abaixo da ressonância, ou quando está acima da ressonância de dois fótons. Porém, a auto-defocalização mais comum é devida a efeitos térmicos, que ocorrem em materiais com absorção pequena. A energia que é absorvida aquece o meio, provocando uma redução da densidade e como consequência diminui o índice de refração nas regiões mais intensas do feixe. Então, quando o perfil do feixe é mais intenso no centro que nas extremidades (por exemplo um feixe Gaussiano), o meio se comporta como uma lente divergente (Fig. 1.1c).

1.4.4-AUTO-MODULAÇÃO DE FASE

A auto-modulação de fase se deve à variação temporal da intensidade do feixe, ou seja, resulta da combinação de um meio tipo Kerr e um campo incidente cuja amplitude varia no tempo. Como o índice de refração depende da intensidade , a fase óptica é dada por:

$$\phi = kz - \omega t = \frac{2\pi}{\lambda}\left(n_0 + \frac{1}{2} n_2 |< E >|^2 \right) z - \omega t \qquad (1.8)$$

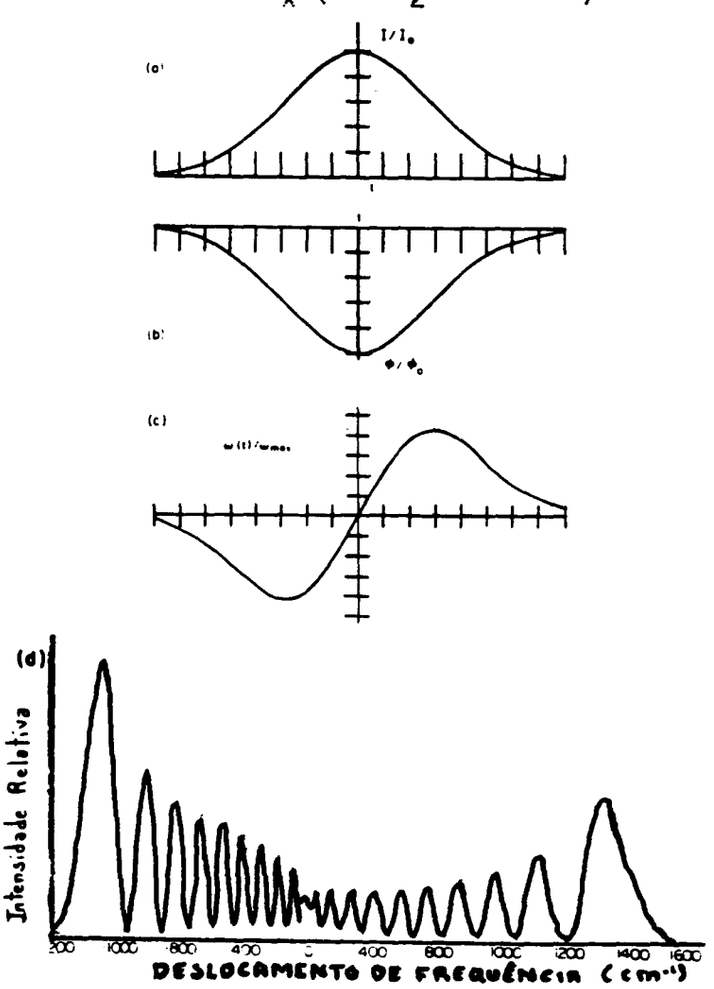


Fig. 1.2 *Variação temporal da (a) intensidade, (b) fase e (c) frequência com* $n_2 > 0$. *(d) Espectro de um pulso com auto-modulação de fase.*

A fase ϕ desenvolve uma dependência temporal que segue a variação no tempo da intensidade do feixe. Dessa forma, após sua propagação, o sinal sofre um desvio de frequência que é dependente ao tempo e que implica que novas frequências são criadas no espectro do sinal incidente, resultando num alargamento espectral [7]. A geração de novas frequências é uma consequência direta da existência de não linearidade do meio. Este efeito é comumente visto na propagação de pulsos curtos em fibras ópticas.

O desvio de frequência troca de sinal ao longo do pulso. Para $n_2>0$, que é a situação normal em meios transparentes, $dI/dt > 0$ na frente do pulso e ocorre uma diminuição da frequência, enquanto que onde dI/dt é negativa, a frequência aumenta. Variações de fase e frequências típicas são mostradas na Fig. (1.2) para um pulso que varia no tempo. A fase apresenta o comportamento mostrado em (b) e a frequência, que é a derivada temporal da fase, apresenta o comportamento oscilatório conforme é mostrado em (c).

1.5-MECANISMOS DE NÃO LINEARIDADE DO ÍNDICE DE REFRAÇÃO [4-7,9]

Aqui apresentaremos uma breve discussão de alguns mecanismos físicos que provocam o surgimento de um índice de refração não linear. Entre os fenômenos mais comuns podemos citar a reorientação molecular, electrostrição, calor e distorções das nuvens eletrônicas.

Em líquidos com moléculas anisotrópicas, o índice de refração não linear surge com a orientação das moléculas de tal forma que o eixo destas com maior susceptibilidade tende a ficar mais alinhado com o campo externo. Nesses

materiais as moléculas são distribuidas aleatoriamente, resultando em um índice de refração isotrópico. Porém, quando as moléculas se alinham ao longo do campo elétrico óptico, a polarizabilidade cresce na direção do campo, resultando num aumento do índice de refração para a luz polarizada na direção do campo incidente. Com isso, o líquido se torna birrefringente. Esse efeito é também chamado de efeito Kerr de alta frequência.

Em líquidos com moléculas isotrópicas, sólidos e gases, a principal contribuição para o índice de refração não linear é devida à electrostrição. Nesse processo, as moléculas do meio se movem para as regiões de maior intensidade do campo elétrico. O aumento resultante na densidade provoca um aumento do índice de refração próximo às regiões de campos intensos. Como o tempo de resposta das moléculas é longo, a eleotrostrição possui uma constante de tempo maior que a orientação molecular.

Uma grande contribuição para o índice de refração, principalmente em operação CW, é devida a efeitos térmicos. O aquecimento de um meio por absorção de luz leva a uma mudança no índice de refração que é dada por $n=n_0+(dn/dt)\Delta T$, onde $\Delta T \alpha |E|^2$.

Outro mecanismo que pode contribuir para o índice de refração não linear inclui a excitação não ressonante de absorvedores para os quais a susceptibilidade do estado excitado χ_e é diferente da suscebtibilidade χ_g do estado fundamental, que é o caso dos cristais utilizados neste trabalho. Este mecanismo será discutido com mais detalhes posteriormente.

2-GERAÇÃO DE GRADES INDUZIDAS POR LASER

2.1- INTRODUÇÃO

Grades induzidas por laser tem sido estudadas há vários anos, mas recentemente tem despertado especial interesse devido às grandes aplicações científicas e tecnológicas que tem sido desenvolvidas, como por exemplo na área de holografia.

Neste capítulo mostraremos um resumo das propriedades das grades produzidas por laser e os mecanismos físicos responsáveis pela sua formação. As seções apresentadas a seguir (exceto a seção 2.5) são um breve resumo dos capítulos 2 e 3 da ref. [13] e são de fundamental importância para a compreensão da técnica de Mistura de Duas Ondas (TWM - Two Wave Mixing) disoutida no cap. 3. A seção 2.5 mostra a formação das grades de população no Rubi e no $GdAlO_3:Cr^{+3}$, introduzindo o modelo recentemente proposto na ref. [42] para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$.

As grades induzidas por laser podem ser classificadas de várias formas. Quanto à sua espessura, podem ser finas ou espessas. Em relação aos fenômenos físicos responsáveis pela sua geração, podem ser de população, de temperatura, de concentração, etc. Também podem ser classificadas de permanentes e dinâmicas. Grades permanentes tem sido produzidas em diversos materiais não lineares e são usadas para registrar hologramas permanentes. As grades dinâmicas, ao contrário, desaparecem assim que a fonte de luz que as gera é desligada. Esse tipo de grade tem sido produzida em um grande número de sólidos, líquidos e gases e são detetadas por difração de um feixe de prova, ou por auto-

difração das ondas que induzem a formação da grade. As grades dinâmicas são o nosso principal interesse já que a Mistura de Duas Ondas é feita através deste tipo de grade.

A formação de grades induzidas por laser é obtida pela interferência de dois feixes em um dado meio (Fig. 2.1), gerando uma modulação de suas propriedades ópticas (por exemplo, índice de refração e coeficiente de absorção). Em meios tipo Kerr, a modulação ocorre devido à dependência do índice de refração com a intensidade.

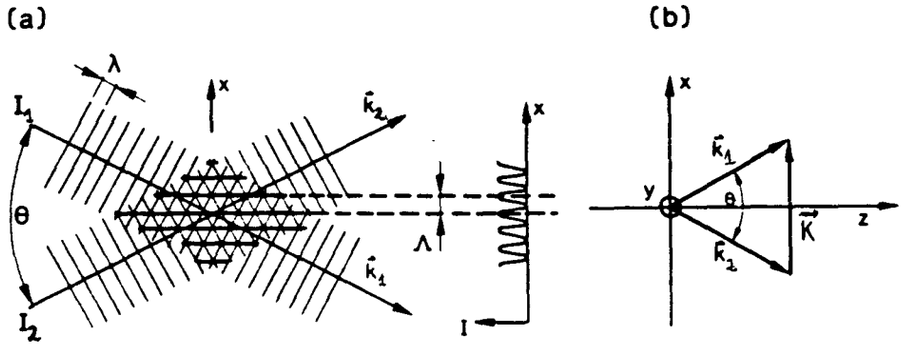


Fig. 2.1 *Geração de uma grade pela interferência de duas ondas com intensidades I_1 e I_2 e vetores de onda k_1 e k_2 : (a) Visualização da formação da rede e (b) geometria dos vetores de onda envolvidos no processo.*

2.2-FORMAÇÃO DA GRADE

Chamamos de grade à modulação do índice de refração e do coeficiente de absorção produzida pela interferência de dois feixes num meio não linear. A grade é formada pela superposição de dois feixes que interferem entre si formando um ângulo θ, sendo caracterizados pelos campos elétricos E_1 e E_2 com vetores de onda dados respectivamente por k_1 e k_2, conforme mostra a Fig. 2.1. E_1 e E_2 são normalmente representados por ondas planas, pois esta costuma ser uma boa aproximação para os feixes de laser reais cujo perfil é Gaussiano. Assim, os campos são escritos como:

$$E_1 = \frac{1}{2}\left(\epsilon_1 \exp [\, \omega_1 t - k_1 . r \,] + c.c. \right) \qquad (2.1)$$

$$E_2 = \frac{1}{2}\left(\epsilon_2 \exp [\, \omega_2 t - k_2 . r \,] + c.c. \right) \qquad (2.2)$$

A superposição dos campos E_1 e E_2 gera um padrão de interferência cuja distribuição de intensidade I é dada por $I(x,t) = (1/2)\eta\epsilon_0 c \left(| E_1 + E_2 |^2 \right)$:

$$I(r,t) = \frac{1}{2}\eta\epsilon_0 c \left(|\epsilon_1|^2 + |\epsilon_2|^2 + \epsilon_1\epsilon_2^* \exp [i(\Omega t - K.r)] + \epsilon_1^*\epsilon_2 \exp [-i(\Omega t - K.r)] \right) \qquad (2.3)$$

onde $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ e $K = k_1 - k_2$ é vetor de onda da grade, cujo período espacial é $\Lambda = 2\pi/K$. Definimos o plano formado pelos eixos x e z como sendo aquele que contém os vetores de onda k_1 e k_2, de forma que o eixo x fica paralelo ao vetor de

onda K. De acordo com a Fig. 2.1b o período espacial da grade pode ser escrito como:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\mathrm{sen}(\theta/2)} \qquad (2.4)$$

onde λ é o comprimento de onda do laser. Quando as frequências ω_1 e ω_2 são iguais temos a formação de uma grade estacionária. Grades dinâmicas são geradas quando $\omega_1 \neq \omega_2$.

Em geral, as grades formadas são tais que o ângulo θ é muito pequeno, de forma que podemos escrever $\Lambda \sim \lambda/\theta$. É importante notar que θ é o ângulo no interior do meio. Variando θ podemos mudar o valor do período espacial da rede e o valor máximo de Λ é limitado pelo diâmetro do feixe do laser.

Outro efeito produzido pelo diâmetro finito dos feixes é a limitação da extensão lateral da região de interferência (Fig. 2.2). Contudo, existem algumas condições que podem ser satisfeitas para obter uma melhor aproximação entre as características do padrão de interferência produzido por ondas planas e o produzido por feixes Gaussianos. A primeira condição é fazer com que a região de interação entre os feixes seja grande comparada com o período espacial da grade. Ou seja, devemos satisfazer a condição $K\omega >> 1$, onde 2ω é o diâmetro do feixe. Isso significa que existe um limite máximo para a focalização do feixe, limitando a intensidade. Outra condição é a de que a região de superposição z_0 dos feixes ao longo do eixo z seja grande comparada com a espessura d do meio ($z_0/d >> 1$), o que limita o ângulo θ formado pelos feixes. Quanto menor for θ, melhor

será a condição $z_0/d >> 1$.

A última condição está relacionada à atenuação dos feixes no interior do meio, pois esta deve ser muito pequena, ou seja, $\alpha d << 1$, onde α é o coeficiente de absorção.

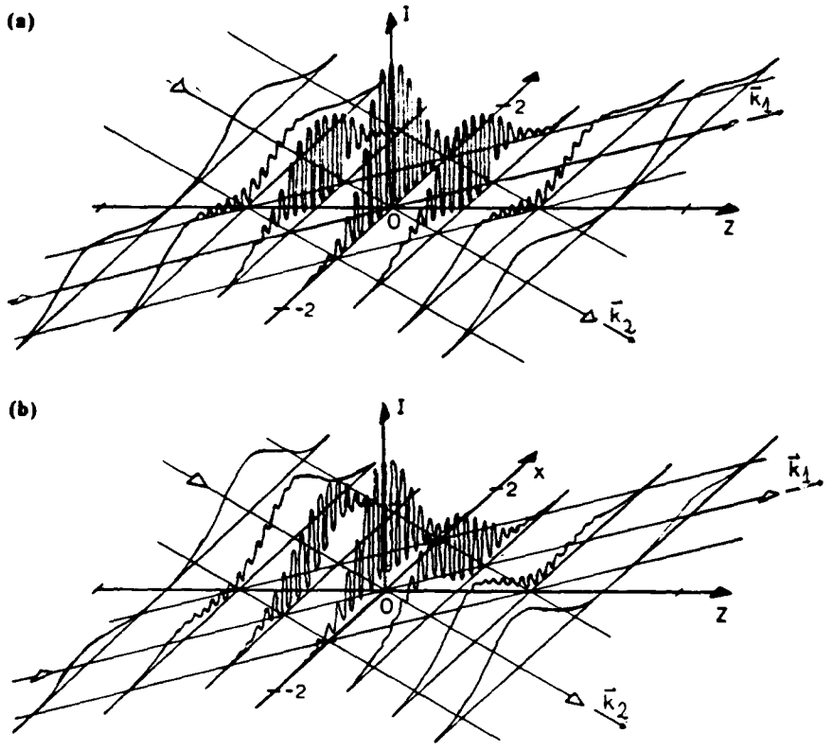


Fig. 2.2 *Esboço da distribuição de intensidade de uma grade espessa formada pela interferência de dois feixes Gaussianos. (a)* $I_1=I_2$ *, (b)* $I_1=4I_2$

2.3-GRADES FINAS E ESPESSAS

A relação entre a espessura d do cristal e a região de

interferência dos feixes tem grande importância quanto às características da grade formada. Isso pode ser facilmente reconhecido considerando a transformada de Fourier da grade.

Quando d é menor ou da ordem do comprimento da região de interferência dos feixes a grade é considerada fina. Sua transformada de Fourier não possui apenas o vetor de onda K mas também possui contribuições na direção de k_z. Assim, várias ordens de difração podem existir (fig. 2.3a). Para grades espessas, d é maior que a região de interferência dos feixes, o que significa que a intensidade da grade varia com z (Fig. 2.2). Neste caso, a transformada de Fourier da grade é composta basicamente do vetor de onda K e só podem ser difratadas aquelas ondas que estiverem na condição de Bragg (Fig. 2.3b). O parâmetro que especifica a espessura da grade é $Q = 2\pi d\lambda/n\Lambda^2$, onde n é o índice de refração e λ é o comprimento de onda. Se $Q<<1$ a grade é considerada fina, enquanto que para $Q>>1$ temos uma grade espessa.

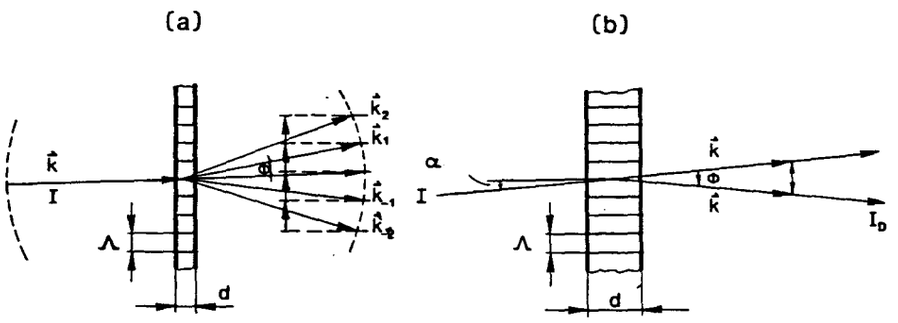


Fig. 2.3 *Características do processo de formação de grades (a) finas e (b) espessas.*

2.4-MECANISMOS DE FORMAÇÃO DA GRADE

Os mecanismos que induzem as mudanças das propriedades ópticas dos meios não lineares são frequentemente descritos em duas etapas. A luz produz algum tipo de excitação do meio que por sua vez gera a mudança das propriedades ópticas. Isso pode resultar na mudança da absorção e do índice de refração e provocar o aparecimento de uma grade de absorção e outra de fase (ou dispersiva).

A excitação do material acopla o índice de refração e a absorção e ambos exibem modulações que chamaremos de Δn e $\Delta\alpha$. No caso geral, qualquer modulação com amplitude ΔX de uma propriedade do meio será acompanhada por uma grade óptica com amplitude tal que:

$$\Delta n = \frac{\partial n}{\partial X} \Delta X \tag{2.5}$$

$$\Delta\alpha = \frac{\partial \alpha}{\partial X} \Delta X \tag{2.6}$$

Normalmente, os dois parâmetros expressos nas Eqs. (2.5) e (2.6) podem ser combinados definindo um índice de refração complexo:

$$\tilde{n} = n + i\alpha/2k \tag{2.7}$$

onde k é o vetor de onda da luz incidente. ΔX pode representar a modulação da população do estado excitado eletrônico do meio, ou da densidade de elétrons de condução em semicondutores, da temperatura, da orientação molecular em fluidos ou ainda, da concentração.

2.5- GRADES DE POPULAÇÃO

Se um sistema atômico é excitado a partir do estado fundamental para o estado excitado, ocorre uma mudança do índice de refração e do coeficiente de absorção. Nesta seção mostraremos a relação entra a intensidade I da luz incidente e as propriedades ópticas do meio. A seguir faremos uma discussão sobre a origem da formação de grades de população no Rubi e $GdAlO_3:Cr^{+3}$, considerando-os como sistemas de 3 níveis, onde apenas 2 possuem população considerável. A interação com a luz em regiões do espectro visível no Rubi e no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ ocorre através dos íons de Cr^{+3}.

2.5.1-FORMAÇÃO DA GRADE DE POPULAÇÃO NO RUBI

A origem no índice de refração não linear no Rubi já é amplamente conhecida [15-16] e será apresentada nesta seção como base para o modelo a ser proposto para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ na próxima seção.

O índice de refração não linear está ligado à diferença de susceptibilidade do estado excitado e do estado fundamental dos íons de Cr^{+3}. Processos térmicos, dispersivos e de absorção podem contribuir para n_2, mas nos casos aqui estudados a contribuição maior é devida a mecanismos dispersivos.

Um esquema dos níveis de energia do Cr^{+3} relevantes na interação com a radiação no Rubi é mostrado na Fig. 2.4. Com a absorção de um fóton de energia $h\nu$ ocorre a transição do estado fundamental $^4A_2$ para a banda de absorção $^4T_2$. Desta última ocorre um decaimento não radiativo (com tempo de vida

de $\sim 10^{-9}$ s) para o estado excitado ^2E, que possui tempo de vida τ da ordem de ms (3ms no Rubi e 14ms no $GdAlO_3:Cr^{+3}$).

O modelo proposto para o Rubi consiste em considerá-lo como um sistema de 3 níveis (Fig. 2.5), onde a eficiência quântica da transição da banda $^4T_2$ para o estado excitado ^2E é ~1. Além disso, a susceptibilidade do estado excitado se deve principalmente à presença da banda de transferência de carga, embora existam vários níveis intermediários entre esta última e o nível ^2E. Essa hipótese foi verificada nas refs. [15-16,43] e acreditamos que também seja válida para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$.

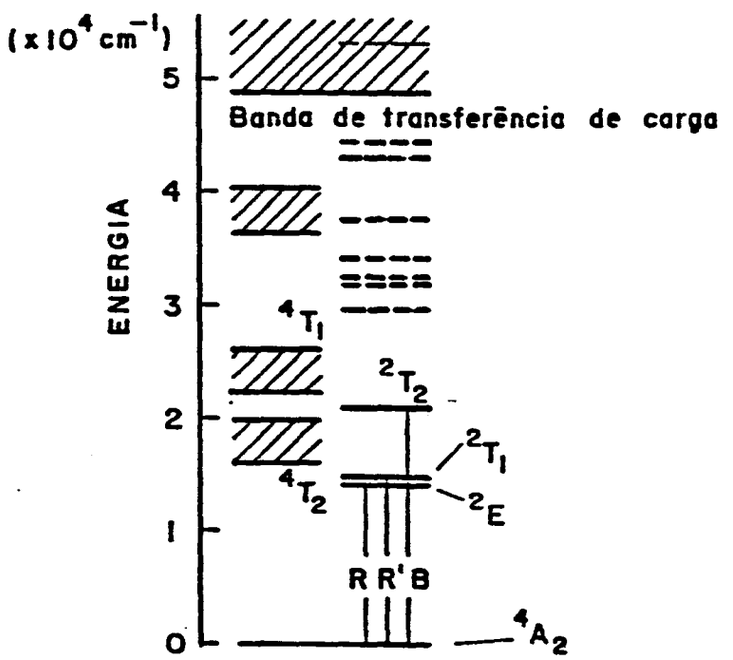


Fig. 2.4 *Níveis de energia do Rubi (ref. [14])*

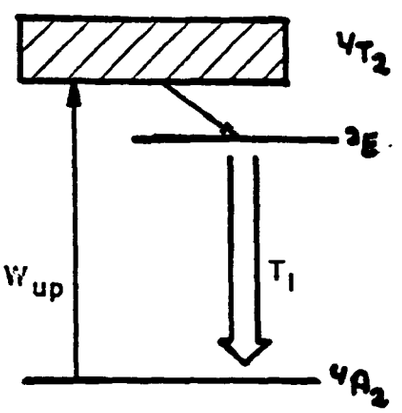


Fig. 2.5 *Sistema de 3 níveis utilizado para o Rubi.* $^4A_2$ *é o estado fundamental,* $^4T_2$ *corresponde à banda de absorção e* ^2E *é o estado excitado.*

A susceptibilidade total do sistema χ_t é dada por $\chi_t = n_g\chi_g + n_e\chi_e$, onde χ_g é a susceptibilidade do sistema se todos os átomos estiverem no estado fundamental e χ_e é a susceptibilidade do sistema se todos os átomos estiverem no estado excitado. $n_g = N_g/N_0$ e $n_e = N_e/N_0$ representam as populações relativas do estado fundamental e excitado respectivamente, N_e e N_g são as populações do estado excitado e fundamental e $N_0 = N_g+N_e$ é o número total de átomos de Cr^{+3}.

Como a susceptibilidade de um sistema de dois níveis é conhecida

[17], podemos escrever χ_g e χ_e como:

$$\chi_g = \alpha_g n_0 c \gamma_g \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\gamma_g \omega} \tag{2.8a}$$

$$\chi_e = \alpha_e n_0 c \gamma_e \frac{1}{\omega_e^2 - \omega^2 + i\gamma_e \omega} \tag{2.8b}$$

onde ω é a frequência do laser, ω_0 corresponde ao centro da banda $^4T_2$ com largura γ_g, ω_e e γ_e são respectivamente a frequência central (medida a partir do estado ^2E) e a largura da banda de transferência de carga, α_0 é o coeficiente de absorção do campo não saturado e α_e é a absorção do estado excitado. Neste modelo simpliflicado estamos considerando que apenas a banda $^4T_2$ contribui para a susceptibilidade do estado fundamental, enquanto que a do estado excitado é produzida principalmente pela banda de transferência de carga.

As susceptibilidades definidas pelas Eqs. (2.8) são grandezas de origens microscópicas, mas podem ser relacionadas com o índice de refração total n do meio pela relação:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \left(1 + \chi_g + n_e (\chi_e - \chi_g) \right) \tag{2.9}$$

onde $\varepsilon = n^2$, $n = n_0 + n_2 I$, $n_g + n_e = 1$, $n_e = I/I_S(1+I/I_S)$ e I_S é a intensidade de saturação do meio.

Como normalmente a contribuição não linear para o índice de

refração total é pequena, podemos fazer a seguinte aproximação: $n_2 I << n_0$. Dessa forma , a Eq. (2.9) se torna:

$$n_2 = \frac{\chi_e - \chi_g}{2n_0 I_s (1+I/I_s)} \qquad (2.10)$$

A Eq. (2.10) demonstra que a não linearidade do sistema está na diferença de susceptibilidades do estado excitado e do estado fundamental e podemos definir $\chi_{nl} = \chi_e - \chi_g \sim \chi^{(3)}$.

A partir das Eqs. (2.8) e (2.10) podemos expressar a parte real de n_2 como:

$$n_2' = \frac{\lambda}{4\pi I_s (1+I/I_s)} \left(\frac{N_0 \sigma_e^{(0)} \Delta_e}{1+\Delta_e^2} - \alpha_g \Delta_g \right) \qquad (2.11)$$

$$I_s = \hbar\omega/\sigma_g \tau (1+\Delta_g^2)^{-1} \qquad (2.12a)$$

$$\Delta_e = (\omega_e^2 - \omega^2)/\omega\gamma_e \qquad (2.12b)$$

$$\Delta_g = 2(\omega_0 - \omega)/\gamma_g \qquad (2.12c)$$

onde σ_g é a seção de choque do estado fundamental no centro da banda $^4T_2$. Da mesma forma, obtemos para a parte imaginária de n_2:

$$n_2'' = \frac{\lambda \alpha_g}{4\pi I_s (1+I/I_s)} (1 - \sigma_e/\sigma_g) \qquad (2.13)$$

A parte imaginária n_2'' do índice de refração não linear é

proporcional a $N_g\sigma_g - N_e\sigma_e$, onde N_e é a população do estado excitado e N_g é a população do estado fundamental. No limite de baixas intensidades, o meio pode ser considerado como um meio absortivo, N_e é pequeno e n_2'' deve ser positivo.

Para o Rubi a expressão (2.11) prevê um valor de n_2' de $1*10^{-8}$ cm^2/W para λ=514,5 nm (usando os parâmetros retirados da ref. [9]), que está em perfeito acordo com o valor medido usando a técnica de Mistura de Duas Ondas [9,10] .

O modelo apresentado permite fazer uma série de previsões. Como a banda de transferência de carga é tal que $\omega_e >> \omega$, então $\Delta_e >> 1$ e n_2' não deve mudar de sinal em lados opostos da banda $^4T_2$ (400 a 600 nm). Além disso, a dependência de n_2' com o comprimento de onda da luz incidente deve acompanhar a forma da banda de absorção $^4T_2$ pois $n_2' \propto 1/I_s$ e I_s depende da largura Δ_g da banda de absorção de acordo com a Eq. (2.12a). Também é possível concluir que n_2' deve ser independente da temperatura, já que a largura da banda de transferência de carga γ_e não é função da temperatura. Todas as previsões acima foram verificadas por Adler e Lawandy [16] no caso do Rubi.

A razão $r = n_2''/n_2'$ pode ser obtida a partir das Eqs. (2.11) e (2.13), supondo $\Delta_e^2 >> 1$ e desprezando $\alpha_g\Delta_g$:

$$r = \frac{\sigma_g}{\sigma_e^{(0)}} \Delta_e \, (1 - \sigma_e/\sigma_g) \qquad (2.14)$$

Da Eq. (2.14) observamos que segundo este modelo, o valor de r deve ser sempre positivo na região do espectro visível (400 nm - 600 nm) se $\sigma_e < \sigma_g$,

pois neste caso, $\Delta_e > 0$. No Rubi, $\sigma_e/\sigma_g = .57$, de acordo com a referência [42].

2.5.2- INTERAÇÃO DE PARES DE CR^{+3} (GERAÇÃO DA GRADE NO $GdAlO_3:Cr^{+3}$)

Quando as concentrações de íons dos Cr^{+3} são mais altas, o desenvolvimento feito na seção 2.5.1 deixa de ser válido pois começam a se tornar importantes as interações entre pares Cr-Cr. No $GdAlO_3:Cr^{+3}$ já foi observada a interação entre pares Cr-Cr em 77 K com concentração de 0.1% [18]. Como a amostra que utilizamos neste trabalho apresenta uma concentração superior a 0.1 %, acreditamos que o efeito da interação entre os pares Cr-Cr seja um processo bastante efetivo, cuja contribuição para o índice de refração não linear deve ser levada em conta. Também já foi estudada a transferência de energia induzida entre os íons de Cr^{+3} e Gd^{+3} no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ [32].

Conforme será visto mais adiante , a razão r para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ é uma função da intensidade. Porém, de acordo com o desenvolvimento da seção anterior esse fenômeno não pode ser explicado. Para tanto, iremos propor que o mecanismo responsável pela variação de r com a intensidade é a interação entre pares Cr-Cr, que será descrita a seguir. Essa hipótese foi inicialmente sugerida na ref. [42] e mostra que o processo de interação de pares de Cr é mais efetivo que a interação entre íons de Cr^{+3} e Gd^{+3}. Os resultados obtidos em 514 nm concordaram bem com os dados experimentais [42].

A interação dos pares Cr-Cr consiste na transferência de energia cooperativa com a absorção de um fóton. O mecanismo está mostrado na Fig. 2.6. O processo consiste de dois íons de Cr que inicialmente se encontram no estado

SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO - IFQSC
FÍSICA

excitado ^2E. A energia de excitação é $\hbar\omega$ e no estado final, um dos íons de Cr decai para o estado fundamental $^4A_2$ enquanto que o outro passa para a banda de transferência de carga, decaindo não radiativamente para ^2E. Este processo modifica o coeficiente de absorção do meio, sendo que a expressão teórica já foi obtida em 1970, conforme a ref. [19]. O coeficiente de absorção do estado excitado passa a ser acresentado do termo:

$$\alpha_{te}(\nu) = C_{te}\, N_a\, N_b\, \sigma_{a0}\, \sigma_{b0} \int_0^{\infty} g_a^{em}(\nu')\, g_b^{ab}(\nu'+\nu)\, d\nu \qquad (2.15)$$

onde C_{te} depende do tipo de interação entre os íons A e B, N_j é a concentração do j-ésimo íon, σ_{j0} é a seção de choque integrada na frequência, $g_i(\nu'')$ é a forma de linha normalizada para a transição do j-ésimo íon e os índices *em* e *ab* representam respectivamente emissão e absorção.

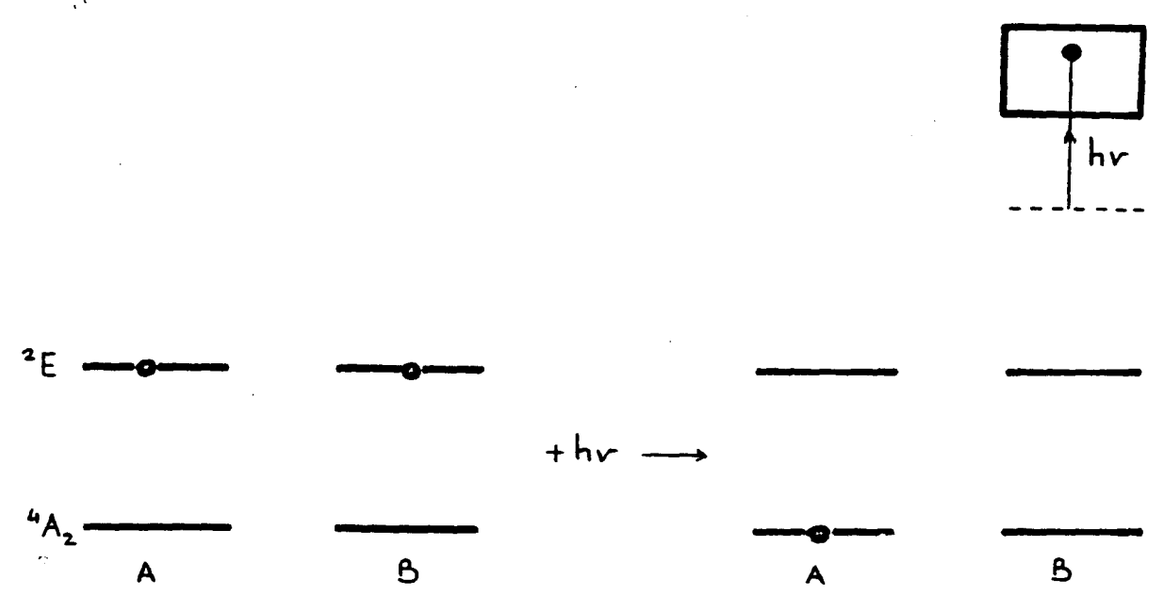


Fig. 2.6 *Mecanismo de transferênoia de energia com a absorção de um fóton entre dois íons de Cr.*

A Eq. (2.15) pode ser simplificada se fizermos as seguintes considerações:

- Os íons A e B representam dois íons de Cr^{+3} no estado excitado ^2E ($N_a = N_b$).

- A forma da linha da transição do estado excitado ^2E para a banda de transferência de carga é muito larga e pode ser considerada como constante na região de superposição com a transição de ^2E para $^4A_2$. Dessa forma, podemos expressar g_b como sendo $g_b^{ab}(\nu_e + \nu)$, onde ν_e é a energia do nível ^2E.

- A forma da linha da transição de ^2E para $^4A_2$ é praticamente uma função delta, de tal forma que $g_a^{ea}(\nu') \sim \delta(\nu' - \nu_e)$.

Com as considerações anteriores, a Eq. (2.15) pode ser escrita como:

$$\alpha_{te} = C_{te}\, N_a^2 \sigma_{a0}\, \sigma_{b0} \left(1 + 4(\nu_0 - \nu)^2/\gamma_{ct}^2 \right)^{-1} \qquad (2.16)$$

onde $\nu_0 = \nu_{ct} - 2\nu_e$, γ_{ct} e ν_{ct} são respectivamente a largura de linha e o centro da banda de transferência de carga. A seção de choque correspondente à absorção α_{te} é $\sigma_{te} = \alpha_{te}/N_a$. A inclusão desse termo no índice de refração não linear imaginário nos fornece a seguinte expressão:

$$n_2'' = n_{20}'' \left(1 - \frac{F(\nu)\, N_0}{\sigma_e(1-\sigma_e/\sigma_g) I_s (1+I/I_s)}\, I \right) \qquad (2.17)$$

Equivalentemente, temos para a razão r definida pela Eq. (2.14):

$$r = r_0 \left(1 - \frac{F(\nu)\, N_0}{\sigma_s(1-\sigma_e/\sigma_s) I_s (1+I/I_s)}\, I \right) \qquad (2.18)$$

onde os sub-índices *o* nas Eqs. (2.17) e (2.18) representam as expressões definidas por (2.13) e (2.14) e $F(\nu)$ é dado por:

$$F(\nu) = C_{te}\, \sigma_{a0}\, \sigma_{b0} \left(1 + \frac{4(\nu_0 - \nu)^2}{\gamma_{ct}^{\,2}} \right)^{-1} \qquad (2.19)$$

A dependência de r com a intensidade, como mostra a Eq. (2.18) foi verificada para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ em baixas intensidades para 514 nm [42].

3- TÉCNICA DE MISTURA DE DUAS ONDAS

3.1-INTRODUÇÃO

A Mistura de Duas Ondas (MDO) é uma técnica da óptica não linear que permite o estudo de efeitos relacionados com a susceptibilidade de terceira ordem, medindo-se a transferência de energia entre duas ondas eletromagnéticas em meios não lineares. Essa téonica consiste na interferência de dois feixes de luz dentro do meio, originando uma modulação da susceptibilidade, que permite a difração dos feixes por espalhamento Bragg (auto-difração), possibilitando sob certas condições, a transferência não recíproca de energia entre ambos. A transferência de energia está ligada à defasagem espacial existente entre o padrão de interferência gerado no meio e a grade de índice de refração, como veremos adiante.

A MDO tem sido amplamente utilizada no estudo de meios não lineares como por exemplo os materiais fotorrefrativos [20,24] e absorvedores saturáveis [9-11,21-23]. Em materiais fotorrefrativos, a transferênoia de energia ocorre devido a uma defasagem natural entre o padrão de interferência e a modulação do índice de refração. Essa defasagem é de $\pi/2$, que é a condição para a transferência de energia máxima. Já para os absorvedores saturáveis é necessário que a defasagem seja introduzida no sistema pela interferênoia de dois feixes com frequências diferentes, o que é feito via efeito Doppler. Neste oaso, ocorre a formação de uma grade dinâmica.

A idéia de se usar grades dinâmicas para o acoplamento de energia

foi proposto em 1973 por um grupo de cientistas soviéticos [25], mostrando que uma defasagem espacial entre a grade de índice de refração e o padrão de interferência pode ser produzida por uma grade que se move em relação ao meio. A defasagem espacial resulta da inércia temporal do meio para o processo de formação da grade, isto é, depende do tempo de resposta do meio, e dá origem à transferência de energia entre os feixes.

3.2-MISTURA DE DUAS ONDAS NÃO DEGENERADAS EM MEIOS KERR

O tratamento de MDO apresentado a seguir está baseado no trabalho de McMichael e P. Yeh [9], que trata do estudo da interação não linear de dois feixes no Rubi, onde se demonstra a possibilidade de haver ganho de energia excedendo as perdas por absorção e reflexão de Fresnel.

A Mistura de Duas Ondas não Degeneradas (MDOND) consiste na interferência de dois feixes coerentes com frequências ω_1 e ω_2 em meios cujo índice de refração é da forma $n = n_0+n_2I$, chamados de meios tipo Kerr. n_2 é o coeficiente Kerr e geralmente é uma grandeza complexa, isto é , $n_2=n_2'+in_2''$, onde n_2' representa a contribuição da parte dispersiva e n_2'' é a parte de absorção não linear. Quando as frequências dos feixes incidentes são tais que $\omega_1=\omega_2$ temos o caso de Mistura de Duas Ondas Degeneradas.

O trabalho de McMichael e P. Yeh [9], por sua vez, está baseado nos trabalhos de P. Yeh [11] e Silberberg e Bar-Joseph [12], sendo que nestes dois últimos n_2 é considerado como uma grandeza real. Quando n_2 é real e $\omega_1=\omega_2$ mostra-se que não há troca de energia entre os feixes incidentes.

3.2.1-FORMAÇÃO DA GRADE DE ÍNDICE DE REFRAÇÃO

Os campos são considerados como ondas planas com as mesmas polarizações, com intensidades pequenas comparadas com a intensidade de saturação do meio e são descritos pelas expressões:

$$E_1 = \frac{1}{2}\epsilon_1 \exp\,[i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1.r)] + c.c. \qquad (3.1)$$

$$E_2 = \frac{1}{2}\epsilon_2 \exp\,[i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2.r)] + c.c. \qquad (3.2)$$

Estes campos formam um padrão de interferência no meio cuja distribuição de intensidade é dado por:

$$I=|E|^2=\frac{1}{2}(\ |\epsilon_1|^2+|\epsilon_2|^2+\epsilon_1\epsilon_2^{*}\exp[i(\Omega t-\mathbf{K}.r)]+\epsilon_1^{*}\epsilon_2\exp[-i(\Omega t-\mathbf{K}.r)]\ ) \qquad (3.3)$$

onde $\Omega=\omega_1-\omega_2$ e $\mathbf{K}=\mathbf{k}_1-\mathbf{k}_2$. Neste caso o padrão de interferência é dinâmico, deslocando-se na direção x com vetor de onda **K** e frequência Ω (Fig. 2.1). O período Λ do padrão é $2\pi/K$ e está relacionado ao comprimento de onda λ dos feixes por $\Lambda=\lambda/(2\mathrm{sen}\theta/2)$. A resposta do meio ao padrão de interferência expresso pela Eq.(3.3) ocorre através da modulação do índice de refração.

Como o padrão de interferência é dinâmico, a resposta não linear em um dado ponto do meio é determinada pela amplitude do campo elétrico nas vizinhanças, isto é, o processo é não local e possui um tempo de resposta finito. Esse processo é descrito pela equação de relaxação de Debye [4]:

$$\tau\frac{dn_2}{dt} + n_2 = \langle E^2(t)\rangle \qquad (3.4)$$

cuja solução é:

$$n_2=[(n_2' + i\, n_2'')/2]\int_{-\infty}^{+\infty} \langle E^2(t)\rangle \exp\,[(t'-t)/\tau]\, dt' \qquad (3.5)$$

Resolvendo a Eq.(3.5) obtemos:

$$n_2=(n_2'+in_2'')\left(|\varepsilon_1|^2+|\varepsilon_2|^2 + \frac{\varepsilon_1\varepsilon_2^*}{1+i\Omega\tau}\exp[i(\Omega t-K.r)] + \frac{\varepsilon_1^*\varepsilon_2}{1-i\Omega\tau}\exp[-i(\Omega t-K.r)]\right) \qquad (3.6)$$

onde τ é o tempo de resposta do meio.

Comparando a expressão (3.6) com o padrão de intensidade dado pela Eq.(3.3), pode-se notar que existe uma defasagem ϕ_d tal que:

$$\phi_d=-\mathrm{artg}(\Omega\tau) \qquad (3.7)$$

ϕ_d é a defasagem responsável pela transferência de energia entre ambos os feixes. É importante observar que mesmo para o caso em que $\Omega=0$, isto é, quando a grade de população é estacionária, ainda existe uma defasagem devida ao fator $r=n_2''/n_2'$, que permite a transferência de energia entre os feixes.

3.2.2-EQUAÇÕES BÁSICAS

Para se determinar o comportamento dos campos no meio , utiliza-se a equação de onda para o campo eletromagnético total E:

$$\nabla^2 E - (n_0^2/c^2)\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = (4\pi/c^2)\frac{\partial^2 P_{nl}}{\partial t^2} \qquad (3.8)$$

P_{nl} é a contribuição não linear da polarização total $P=P_l+P_{nl}$,onde $P_l=\chi^{(1)}E$ representa a polarização linear e $P_{nl}=\chi^{(3)}|E|^2E$. Como dissemos, o campo E representa o campo eletromagnético total no meio, isto é $E=E_1+E_2$, onde E_1 e E_2 são dados respectivamente pelas Eqs. (3.1) e (3.2). Nesta seção estamos usando o sistema de unidades CGS, similarmente ao que está apresentado na literatura.

Pode-se transformar a equação de onda para o campo E em duas equações diferenciais escalares e de primeira ordem, usando a aproximação SVEA (Slowly Varying Electric Amplitude Approximation), que pressupõe que E(r,t) é uma função que varia lentamente comparada com exp[(i(ωt-k.r)] tanto no espaço r como no tempo t. Matematicamente , essa condição pode ser expressa como $k(\partial E/\partial z) \gg \partial^2 E/\partial z^2$ e $\omega(\partial E/\partial t) \gg \partial^2 E/\partial t^2$.

Dessa forma, a equação de onda pode ser reduzida às seguintes equações:

$$\frac{d\mathcal{E}_1}{dz} = -\frac{2\pi i}{n_0^2} k_{1z} P_{nl} \qquad (3.9)$$

$$\frac{d\mathcal{E}_2}{dz} = -\frac{2\pi i}{n_0^2} k_{2z} P_{nl} \qquad (3.10)$$

onde k_{1z} e k_{2z} representam as projeções de k_1 e k_2 na direção de z. Usando a relação $\chi^{(3)} = n_0 n_2/2\pi$ e substituindo o valor de P_{nl}, as Eqs. (3.9) e (3.10) se tornam:

$$\frac{d\varepsilon_1}{dz} = -\frac{i\,k}{4n_0}\left(n_2 \exp(-i\phi_e)|\varepsilon_2|^2\varepsilon_1 + n_2(|\varepsilon_1|^2 + |\varepsilon_2|^2)\,\varepsilon_1 \right) \qquad (3.11)$$

$$\frac{d\varepsilon_2}{dz} = -\frac{i\,k}{4n_0}\left(n_2 \exp(i\phi_e)|\varepsilon_1|^2\varepsilon_2 + n_2(|\varepsilon_2|^2 + |\varepsilon_1|^2)\,\varepsilon_2 \right) \qquad (3.12)$$

O primeiro termo das Eqs. (3.11) e (3.12) é responsável pelo acoplamento entre os campos E_1 e E_2 enquanto que os termos $|\varepsilon_1|^2\varepsilon_1$ e $|\varepsilon_2|^2\varepsilon_2$ representam a auto-modulação de fase.

Para obtermos as equações das intensidades I_1 e I_2, fazemos a seguinte mudança de variáveis $\varepsilon_1 = \sqrt{2I_1}\exp(i\phi_1)$ e $\varepsilon_2 = \sqrt{2I_2}\exp(i\phi_2)$. Ao substituirmos essas novas variáveis nas Eqs. (3.11) e (3.12) devemos levar em conta que as fases ϕ_1 e ϕ_2 são também funções de z. Tomando a parte real das Eqs. (3.11) e (3.12) obtemos:

$$\frac{dI_1}{dz} = \frac{2\pi n_2'}{\lambda\cos\theta/2}\left((I_1 + I_2)r\,I_1 - \frac{I_1\,I_2\,\delta}{(1+\delta^2)} + \frac{I_1 I_2}{(1+\delta^2)}r \right) - \alpha I_1 \qquad (3.13)$$

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{2\pi n_2'}{\lambda\cos\theta/2}\left(r\,I_2^{\,2} + \left(\frac{2+\delta^2}{1+\delta^2}r + \frac{\delta}{1+\delta^2} \right) I_1\,I_2 \right) - \alpha I_2 \qquad (3.14)$$

onde a absorção linear do meio α foi introduzida fenomenologicamente, $r = n_2''/n_2'$ e $\delta = \Omega\tau$. Os termos com dependência em r representam um aumento na transmissividade do meio a altas intensidades devido a efeitos de saturação, enquanto que o termo com dependência $\delta/(1+\delta^2)$ é responsável pelo acoplamento dos feixes.

Da mesma forma que são obtidas as Eqs. (3.13) e (3.14) também se obtem as equações para as fases ϕ_1 e ϕ_2, igualando as partes imaginárias das Eqs. (3.11) e (3.12):

$$\frac{d\phi_2}{dz} = -\frac{kn_2'}{2}\left(I_1 + I_2 + \frac{I_1}{1+\delta^2}\right) + \frac{kn_2''I_1}{2}\frac{\delta}{1+\delta^2} \qquad (3.15)$$

$$\frac{d\phi_1}{dz} = -\frac{kn_2'}{2}\left(I_1 + I_2 + \frac{I_2}{1+\delta^2}\right) - \frac{kn_2''I_2}{2}\frac{\delta}{1+\delta^2} \qquad (3.16)$$

Como as fases ϕ_1 e ϕ_2 dependem de z, isso significa uma inclinação do padrão de interferência em relação ao eixo z.

Da forma que as equações para as intensidades I_1 e I_2 se apresentam, não é possível uma solução exata do problema. Para simplificar essas equações algumas considerações podem ser feitas:

1) $I_1(0) >> I_2(0)$. Em condições experimentais normalmente temos $I_2(0)/I_1(0) \sim 0.01$ e o feixe I_1 é chamado de feixe de bombeamento (ou feixe forte), enquanto que I_2 é o feixe de prova (ou feixe fraco).

2) $\delta << \omega_1\tau$. Esta condição significa que ω_1 e ω_2 são frequências muito próximas, de tal forma que $\Omega << \omega_1,\omega_2$. Experimentalmente usamos Ω da ordem de 10 - 100 Hz.

3) $r << 1$. Será mostrado adiante que para os cristais utilizados $r \sim 0.1$, o que significa que os efeitos gerados por n_2 são quase que completamente de origem

dispersiva.

Com as aproximações anteriores obtemos:

$$\frac{dI_1}{dz} = - \alpha I_1 \tag{3.17}$$

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{2\pi n_2'}{\lambda \cos\theta/2} \left(\frac{\delta + r}{1+\delta^2} \right) I_1 I_2 - \alpha I_2 \tag{3.18}$$

Conforme a Eq. (3.17), o campo E_1 sofre apenas absorção linear enquanto que para E_2, além da absorção linear, há duas contribuições para o ganho de energia. O primeiro termo na Eq. (3.18), que é anti-simétrico em δ, é a contribuição da grade dispersiva e é responsável pelo acoplamento dos feixes, permitindo a transferência de energia entre ambos. Para $\delta > 0$ (e $n_2' > 0$) tem-se um ganho de energia em I_2, enquanto que para $\delta < 0$, ocorre a transferência de energia de I_2 para I_1, tendo-se então perda de energia em I_2.

A contribuição simétrica é devida a n_2'' e é sempre positiva se $n_2'' > 0$. Como nos casos estudados $n_2' >> n_2''$, o mecanismo de transferência de energia é quase inteiramente devido a n_2'. Ainda na Eq.(3.18) pode-se notar que sempre que o primeiro termo do segundo membro for maior que a absorção linear, haverá ganho efetivo do feixe fraco. Resolvendo as Eqs. (3.17) e (3.18) obtemos:

$$I_1(L) = I_1(0) \exp(-\alpha L) \tag{3.19}$$

$$I_2(L) = I_2(0)\exp\left\{\frac{2\pi n_2' L I_1}{\lambda\cos\theta/2}\left(\frac{1-\exp(-\alpha L)}{\alpha L}\right)\frac{\delta+r}{1+\delta^2}\exp(-\alpha L)\right\} \qquad (3.20)$$

A partir das expressões para as intensidades dos dois feixes no meio, definimos os parâmetros de ganho Γ_1 e Γ_2:

$$\Gamma_1 = \ln\left(\frac{I_2(\delta,L)}{I_2(\delta,L)}\right) = g_1 L\frac{\delta - r\delta^2}{1+\delta^2} \qquad (3.21)$$

$$\Gamma_2 = \ln\left(\frac{I_2(\delta,L)}{I_2(\delta,L)}\right) = g_1 L\,\frac{I_1}{(1+I_1/I_s)^2} \qquad (3.22)$$

onde $g_1 = \frac{2\pi n_2'}{\lambda\cos\theta/2}\left(\frac{1-\exp(-\alpha L)}{\alpha L}\right)$ é o chamado fator de acoplamento ou ganho. L aé espessura do cristal e I_s é a intensidade de saturação do meio.

Em Γ_2 o termo $(1+I_1/I_s)^2$ é introduzido fenomenologicamente [9] como uma correção para os casos em que I_1 é da ordem de I_s, devido ao efeito de saturação de Γ_2, que não é levado em conta neste tratamento. A transferência máxima de energia de I_1 para I_2 ocorre para $\delta = 1$, onde $\Omega = 1/\tau$, mostrando a dependência com o tempo de resposta do meio. Neste caso, a defasagem da grade de população em relação ao padrão de interferência é de $\sim 45°$.

O tratamento de MDO apresentado se aplica bem a cristais com ganho pequeno, como é o caso por exemplo do Rubi e da Fluoresceina. Porém, só é

adequado para intensidades tais que $I << I_s$, já que não leva em conta efeitos de saturação da grade de população do estado excitado. A necessidade de uma teoria mais completa surgiu a partir do comportamento observado para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$, no qual a contribuição da parte anti-simétrica para o ganho Γ_1 é função da intensidade, o que não pode ser explicado pela teoria apresentada nesta seção.

3.3- MISTURA DE DUAS ONDAS TRANSIENTE EM MEIOS KERR

3.3.1-INTRODUÇÃO

Nesta seção será descrita uma modificação da técnica de MDO, mostrada no trabalho de Boothroyd [26], que permite a medida direta da fase ϕ do índice de refração não linear $n_2=|n_2|\exp(i\phi)$ e também permite determinar separadamente o sinal das suas partes real e imaginária.

A alteração na técnica de Mistura de Duas Ondas consiste em gerar uma varredura instantânea do padrão de intensidade sobre a grade de índice de refração estacionária já estabelecida, aplicando um transiente de fase no feixe de prova. O transiente de fase aplicado ao feixe de prova faz com que o mesmo apresente um comportamento senoidal cuja fase inicial, segundo Boothroyd, é exatamente a fase ϕ do índice de refração não linear. Essa técnica foi desenvolvida a partir do estudo da contribuição do "flyback" para a Mistura de Duas Ondas convencional, apresentada em um trabalho anterior de Boothroyd [10].

Um dos interesses em utilizar essa técnica é que se trata de uma forma alternativa de obter a razão $r=n_2''/n_2'$, podendo-se comparar este resultado

com o obtido pela MDO descrita na seção anterior. Além disso, permite verificar a dependência da fase inicial do feixe de prova com a intensidade, não prevista por Boothroyd, porém observada no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ [22].

3.3.2-FORMAÇÃO DA GRADE DE ÍNDICE DE REFRAÇÃO

A grade de índice de refração é gerada pela interferência de dois feixes com a mesma frequência (Fig. 2.1), ou seja , a grade é estacionária. Ao ser aplicado o pulso no feixe de prova, o padrão de interferência se desloca sobre a grade de índice de refração que se mantém estacionária, pois o tempo de duração do pulso é muito menor que o tempo de resposta do meio.

3.3.3-EQUAÇÕES BÁSICAS

A equação que determina o comportamento do feixe fraco E_2 (seguindo a notação da seção 3.2, Eq.(3.12)) já foi determinada no caso geral de ondas não degeneradas. Fazendo agora $\delta=0$, já que inicialmente os dois feixes possuem a mesma frequência e desprezando $|\epsilon_2|^2$, obtemos a equação para a amplitude do feixe fraco:

$$\frac{d\epsilon_2}{dz} = - \frac{i\, k\, n_2}{4}\, 2\, |\epsilon_1|^2 \epsilon_2 - \frac{\alpha}{2}\, \epsilon_2 \qquad (3.23)$$

onde $k=2\pi/\lambda\cos\theta/2$ é a projeção na direção z do vetor de onda dos feixes incidentes, α é o coeficiente de absorção linear e ϵ_1 é a amplitude do campo do

feixe de bombeamento. A solução da Eq. (3.23) é:

$$\mathcal{E}_2(z) = \mathcal{E}_2(0)\ \exp\ (-\alpha z/2) \left(1 + \frac{k\ |n_2|z}{2}\ |\mathcal{E}_1|^2\ \exp\ [i(\phi-\pi/2)] \right) \qquad (3.24)$$

O segundo termo representa a parte do feixe bombeamento difratado coerentemente na direção do feixe de prova com uma defasagem de ϕ - $\pi/2$ em relação a este, enquanto que o primeiro é o feixe de prova transmitido através do meio e que sofre absorção linear. Esta parte segue a fase do feixe de prova durante a aplicação do transiante de fase.

A parte do feixe de prova que é devida à contribuição da difração do feixe forte permanece inalterada quando um transiente de fase $\exp[i\delta(t)]$ é aplicado ao feixe de prova.

$$\mathcal{E}_2(L) = \mathcal{E}_2(0)\ \exp[-(\alpha/2)L] \left(\exp[i(\delta(t)] + \frac{k|n_2||\mathcal{E}_1|^2L}{2}\ \exp[i(\phi-\pi/2)] \right) \qquad (3.25)$$

A intensidade do feixe de prova será:

$$I_2(L)=I_2(0)\ \exp(-\alpha L) \left(1 + k^2|n_2|^2 I_1{}^2 L^2 - k|n_2|I_1 L\ \text{sen}\ [\ \delta(t) - \phi\ ] \right) \qquad (3.26)$$

A fase inicial do feixe de prova é obtida em t = 0 quando $\delta(t)=0$, sendo dada por $-\phi$. Na ref. [26] foram medidas as fases iniciais do Rubi, Acridina e Fluoresceina em função do comprimento de onda e concordam bem com a teoria baseada no alargamento homogêneo da absorção do estado fundamental, proposto na seção 2.5.

Deve-se ressaltar que neste tratamento não são considerados os efeitos de saturação da fase inicial, o que será feito mais adiante. Porém, para intensidades baixas, a dependência da fase inicial com intensidade para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ concorda bem com o resultado teórico expresso na Eq.(3.26).

3.4-EFEITOS DE SATURAÇÃO NA MISTURA DE DUAS ONDAS

3.4.1- INTRODUÇÃO

Já foi mostrado na seção 3.2 um desenvolvimento teórico para a MDO aplicado ao caso de meios Kerr. Porém, esse tratamento é limitado pelo fato de não incluir efeitos de saturação no processo de transferência de energia. Nesta seção será desenvolvido um tratamento que leva em conta fenômenos de saturação, baseado no formalismo de auto-difração dos feixes incidentes. O trabalho, apresentado na referência [23], é até certo ponto, similar ao tratamento de auto-difração de Fragnito et al [27] , onde neste último a grade formada no meio é estacionária, enquanto que no primeiro, a grade considerada é dinâmica.

O método consiste em tratar a MDO como um caso particular da auto-difração dos feixes incidentes, onde os feixes difratados de ordem superior não são considerados. Quando a intensidade no cristal é modulada espacialmente, esta gera uma grade de população que pode difratar qualquer onda que atravessar o meio, inclusive as próprias ondas que induzem a grade, dando origem a n ordens de difração. Após obter-se uma expressão geral para a n-ésima ordem difratada na grade dinâmica saturada, a MDO é tratada como um caso particular onde n=0 (auto-difração de ordem zero).

A idéia básica consiste em fazer uma expansão de Fourier da polarização não linear, o que permite obter expressões analíticas no caso em que $I_2 << I_1$, concordando bem com os resultados já conhecidos na literatura, mesmo para parâmetros de saturação altos. É importante notar que embora a teoria a ser apresentada a seguir seja mais abrangente que a mostrada na seção 3.2, ainda apresenta algumas limitações tais como a suposição de meios ooticamente finos e a consideração de que a amplitude da grade de índice é constante. Como resultado obtem-se uma dependência com a intensidade do sinal do feixe fraco I_2 que segue a lei $I/(1+I/I_s)^2$, que está de acordo com o resultado de McMichael [9].

3.4.2-MISTURA DE DUAS ONDAS NÃO DEGENERADAS EM ABSORVEDORES SATURÁVEIS

Vamos supor que a amostra utilizada é opticamente fina, isto é, que a forma da grade não muda ao longo da direção de propagação. Além disso, os feixes são tratados como ondas planas com a mesma polarização e as intensidades dos feixes são tais que $I_2 << I_1$.

Os feixes são representados por $E_0^+ \exp [i(k_0^+.r - \omega_+ t + \phi_0^+)]$, que é o feixe de bombeamento e $E_0^- \exp [i(k_0^-.r - \omega_- t + \phi_0^-)]$, o feixe de prova.

O ângulo formado pelos dois feixes incidentes é 2θ e a direção de propagação de ambos é representada por k_0^+ e k_0^-. Definindo $\Omega = \omega_+ - \omega_-$ como a diferença de frequência entre os dois feixes, o padrão de interferência produzido é:

$$I^{(0)}(x,t) = \frac{1}{2}\,\epsilon_0 \eta c |E_0|^2 = I_0 + I_1 \cos(K.x - \Omega t + \Delta\phi) \qquad (3.27)$$

onde E_0 é a soma dos campos incidentes, ϵ_0 é a permissividade do vácuo, η é o índice de refração do meio, $I_0 = I_0^+ + I_0^-$, $I_1 = 2\sqrt{I_0^+ I_0^-}$, $K = 2\pi/\Lambda$ e $\Delta\phi = \phi_0^+ - \phi_0^-$. Nesta seção voltamos a utilizar o sistema internacional de unidades.

O meio é considerado como um sistema de 3 níveis, conforme mostra a Fig. 2.5, onde a transferência de população da banda $^4T_2$ para o nível ^2E é extremamente rápida, com eficiência quântica ~ 1. Neste caso, a polarização total do meio é:

$$P = \epsilon_0(\eta^2 - 1)E + \epsilon_0(n_g\chi_g + n_e\chi_e)E = \epsilon_0(\eta^2 - 1 + \chi_g) + P_{nl} \qquad (3.28)$$

Aqui $P_{nl} = \epsilon_0 n_e(\chi_e - \chi_g)E$, n_gN_g é a população do estado fundamental e n_eN_e a do estado excitado. $N_0 = N_g + N_e$ representa o número de íons de Cr no meio, χ_g dá a contribuição para a susceptibilidade total do meio se todos os íons estiverem no estado fundamental e χ_e se todos estiverem no estado excitado.

A equação de taxa para o sistema de 3 níveis descrito acima é dada por:

$$\frac{dn_e}{dt} = (1 - n_e)W_{\omega p} - \frac{n_e}{T_1} \qquad (3.29)$$

onde foi usado que $n_g + n_e = 1$. T_1 é o tempo de relaxação longitudinal, $W_{\omega p} = \sigma_0 I/\hbar\omega$, $\sigma_0 = \mu^2\omega T_2/\hbar c\eta\epsilon_0$ é a seção de choque de absorção e T_2 é o tempo de

relaxação transversal.

Como W_{ep} é proporcional à intensidade I, que por sua vez depende de x e t, a Eq. (3.30) é não linear e para resolvê-la usa-se a expansão de Fourier de $n_e(x,t)$:

$$n_e(x,t) = \frac{1}{1+S_0} \sum A_n \exp[i(Kx-\Omega t+\Delta\phi)] \qquad (3.30)$$

onde $S_0=I_0/I_s$, $I_s=\hbar\omega/\sigma_0 T_1$ é a intensidade de saturação e os coeficientes A_n são tais que no caso estacionário ($t>>T_1$), $A_0 = S_0$ e A_n é dado por:

$$A_n = (-1)^{n+1} \left(\frac{S_1/2}{1+S_0} \right)^{|n|} \left(\prod_1^{|n|} \left(1 - i\,\mathrm{sign}\,(n) m\Omega T_1' \right) \right)^{-1} \qquad (3.31)$$

com $S_1=I_1/I_s$ e $T_1'=T_1/(1+S_0)$.

Toda a teoria deste tratamento é baseada na expansão dada pela Eq. (3.30), que representa uma grade não senoidal de população formada pela superposição de várias grades senoidais com periodos Λ, $\Lambda/2$, $\Lambda/3$, etc. Os feixes difratados de ordem mais alta podem ser interpretados como aqueles difratados pelas grades de menor periodo.

Da mesma forma que para $n_e(x,t)$, usa-se a expansão do campo total E no interior do cristal em suas n ordens difratadas pela grade de população:

$$E = \sum_0^{\infty} \left\{ \varepsilon_n^{+} \exp\left[i[(n+1/2)Kx-(n+1)\Omega t]\right] + \varepsilon_n^{-} \exp\left[i[(n+1/2)Kx-n\Omega t]\right] \right\} \exp[i\beta_n z] \qquad (3.32)$$

β_n é definido de forma a satisfazer a relação de dispersão $k_{nx}^2+k_{nz}^2=(\omega\eta/c)^2$, sendo dado por $\beta_n=(\omega\eta/c)\sqrt{1-(2n+1)^2\text{sen}\theta}$. Substituindo as Eqs. (3.30) e (3.32) na equação de onda (com a aproximação SVEA), fazendo $\partial\epsilon_n^{\pm}/\partial x=\partial\epsilon_n^{\pm}/\partial y=0$ e considerando os termos com a mesma dependência em x e t obtemos:

$$\frac{d\epsilon_n^+}{dz} = \frac{i}{2\beta_n}(\omega/c)^2\left\{\chi_0\epsilon_n^+ + \frac{1}{1+S_0}\sum_{l=0}^{\infty}\left\{\chi_{nl}^{*}A_{l-n}^{*}\,\epsilon_l^+\exp[-i(l-n)\Delta\phi] + \right.\right.$$

$$\left.\left. +\chi_{nl}A_{l+n+1}\,\epsilon_l^-\exp[i(l+n+1)\Delta\phi]\right\}\exp[i(\beta_l-\beta_n)]\right\} \qquad (3.33)$$

$$\frac{d\epsilon_n^-}{dz} = \frac{i}{2\beta_n}(\omega/c)^2\left\{\chi_0\epsilon_n^- + \frac{1}{1+S_0}\sum_{l=0}^{\infty}\left\{\chi_{nl}^{*}A_{l+n+1}\,\epsilon_l^+\exp[i(l+n+1)\Delta\phi] + \right.\right.$$

$$\left.\left. +\chi_{nl}A_{l-n}\,\epsilon_l^-\exp[i(l-n)\Delta\phi]\right\}\exp[i(\beta_l-\beta_n)]\right\} \qquad (3.34)$$

onde $\chi_{nl}=\chi_e-\chi_g$. Com as expressões (3.33) e (3.34) é possível obter-se em princípio, qualquer ordem n difratada, com a vantagem destas equações serem lineares.

Na MDO apenas os feixes ϵ_0^+ e ϵ_0^- são importantes, já que os feixes difratados de ordem $n\neq 0$ não são observados. Assim, as Eqs. (3.33) e (3.34) se tornam:

$$\frac{d\epsilon_0^+}{dz} = \frac{i}{2\beta_0}(\omega/c)^2\left\{\left(\chi_0+\frac{\chi_{nl}A_0}{1+S_0}\right)\epsilon_0^+ + \frac{\chi_{nl}A_1}{1+S_0}\epsilon_0^-\exp[-i\Delta\phi]\right\} \qquad (3.35)$$

$$\frac{d\varepsilon_0^-}{dz} = \frac{i}{2\beta_0}(\omega/c)^2 \left\{ \frac{\chi_{nl}^* A_1^*}{1+S_0} \varepsilon_0^+ \exp[-i\Delta\phi] + \left(\chi_0 + \frac{\chi_{nl} A_0}{1+S_0} \right) \varepsilon_0^- \right\} \qquad (3.36)$$

A respeito das Eqs. (3.35) e (3.36) algumas considerações podem ser feitas. Em primeiro lugar , $\varepsilon_0^+ \sim \exp[i\phi_0^-]$ e $\varepsilon_0^- \sim \exp[i\phi_0^-]$, o que cancela a dependência com a fase, se estas forem indepententes de z. Além disso, em condições experimentais a contribuição do feixe ε_0^- é tal que $\varepsilon_0^- << \varepsilon_0^+$, o que permite desprezar o segundo termo do segundo membro da Eq. (3.35), obtendo-se diretamente o valor de ε_0^+:

$$\varepsilon_0^+(z) = \varepsilon_0^+(0) \exp\left[i\gamma z \left(\chi_0 + \frac{\chi_{nl} A_0}{1 + S_0} \right) \right] \qquad (3.37)$$

Substituindo-se este valor na equação para ε_0^- e usando a relação $\chi_{nl} = 2\eta n_2$ e as definições de S_1, β_0 , obtemos a expressão para a intensidade do feixe fraco I_0^- :

$$I_0^-(L) = I_0^-(0) \left\{ 1 + \frac{4\pi n_2 L I_0^+(0)}{\lambda(1+S_0)^2} \frac{r+\Delta}{1+\Delta^2} \right\} \qquad (3.38)$$

A Eq.(3.38) representa a dependência da intensidade do feixe fraco no interior do cristal em função da contribuição do índice de refração não linear n_2 e da diferença de frequência entre os feixes forte e fraco expressa em Δ. A partir dessa equação pode-se definir o parâmetro de ganho do feixe fraco Γ_1 de tal forma que:

$$\Gamma_1 = \ln\left(\frac{I_0^-(\Delta,L)}{I_0^-(0,L)} \right) = \frac{4\pi n_2 L I_0^+ \Delta}{\lambda(1+S_0)^2} \left(\frac{1 - r\Delta}{1+\Delta^2} \right) \qquad (3.39)$$

Comparando a Eq.(3.39) com a expressão para o ganho definida na Eq. (3.21) observa-se que aqui aparece a influência dos efeitos de saturação pelo termo $(1+S_0)^2$ e também pela saturação do tempo de vida τ pelo fator $(1+I/I_s)$.

Analogamente à Eq. (3.22), podemos definir o parâmetro de ganho Γ_2 de forma que:

$$\Gamma_2 = \frac{4\pi n_2' L}{\lambda \cos\theta/2} \left(\frac{2\Delta}{1 + \Delta^2} \right) \frac{I_0^+}{(1 + S_0)^2} \qquad (3.40)$$

4.-MONTAGEM EXPERIMENTAL

4.1-INTRODUÇÃO

A montagem experimental da Mistura de Duas Ondas é semelhante a um interferômetro de Michelson, conforme mostra a Fig. 4.1.

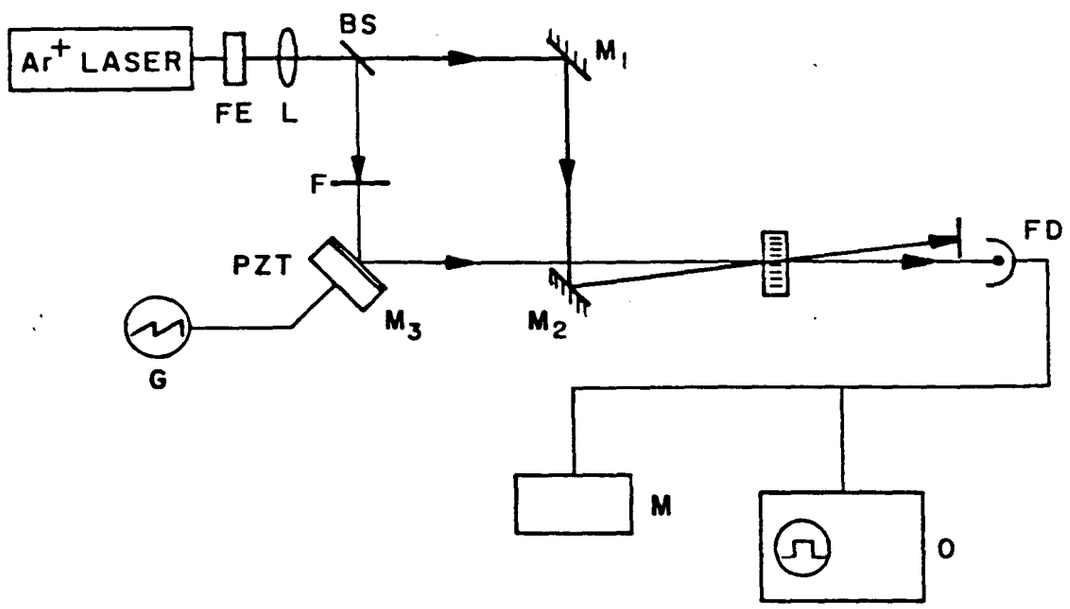


Fig. 4.1 *Montagem experimental utilizada na Mistura de Duas Ondas.*

M_1 , M_2 e M_3 são espelhos de Alumínio, BS representa um divisor de feixe com transmissividade de 10% e L é uma lente convergente com distância focal de 60 cm. O filtro espacial FE tem a função de otimizar a qualidade do modo do feixe do laser, que deve ser Gaussiano. Os filtros F entre BS e M_3 são utilizados

para que a intensidade de um feixe seja de aproximadamente 1% da intensidade do outro. A montagem está disposta sobre uma caixa de alumínio, que é colocada sobre uma espuma de aproximadamente 2cm de espessura para diminuir as vibrações mecânicas do sistema.

O laser utlizado é um laser de Argônio (Spectra-Physics Modelo 2020) usado no modo TEM_{00}, que ao passar pelo divisor de feixe BS é dividido em duas partes. A primeira, que é o feixe refletido na direção do espelho M_2, é o chamado feixe fraco devido à ação dos filtros F. A outra parte é o feixe transmitido na direção do espelho M_1, e é o chamado feixe forte.

O espelho M_2 está conectado a um transdutor piezoelétrico (PZT) de tal forma que a aplicação de uma tensão no mesmo provoca o deslocamento do espelho M_2. A modulação da frequência do feixe fraco se deve ao efeito Doppler provocado pelo movimento do espelho. Quando o mesmo se desloca para a frente, o que corresponde à aplicação de uma tensão positiva no PZT, temos um aumento na frequência do feixe fraco, enquanto que uma tensão negativa resulta num decréscimo desta. A diferença de frequência entre o feixe forte e o feixe fraco que pode ser produzida com o PZT está na faixa de 1 a 500 Hz. A tensão máxima que pode ser aplicada ao PZT é de 300V, limitada pelo gerador de funções G. A deteção do sinal de MDO é feita utilizando um fotodetetor FD tipo MRD300 que é conectado ao feixe fraco. Por sua vez, o fotodetetor é conectado a um multímetro M e ao osciloscópio O.

Para a utilização da técnica de MDO convencional podem ser aplicados três tipos de pulsos ao PZT: tensão triangular, rampa direta e rampa

inversa, conforme mostra a Fig. 4.2.

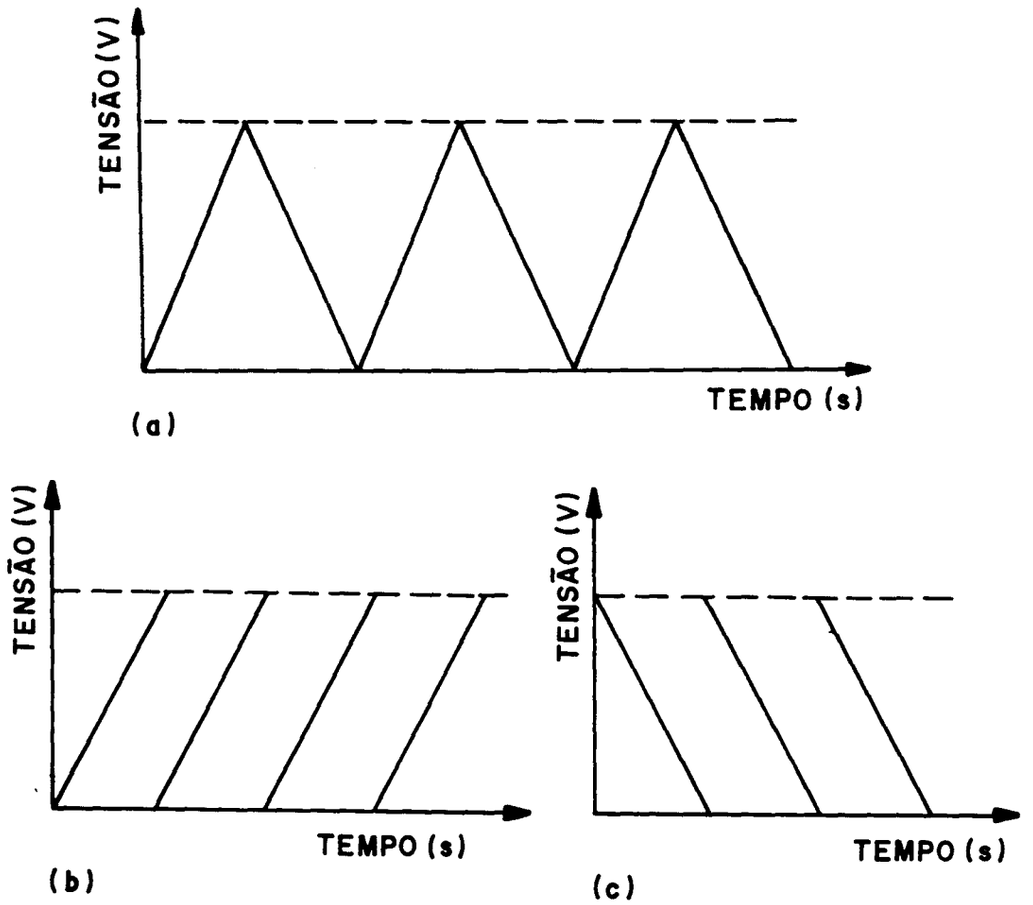


Fig. 4.2 *Tipos de pulsos aplicados ao PZT. (a) Rampa triangular , (b) rampa direta e (c) rampa inversa.*

4.2-CALIBRAÇÃO DO PZT

A tensão no PZT é função do comprimento de onda do laser e deve provocar um deslocamento de $\lambda/2$ no espelho M_3, de forma que a frequência da rampa aplicada corresponda à diferença de frequência entre os feixes. Para determinar qual o valor correto da tensão responsável pelo deslocamento de $\lambda/2$

no espelho é necessário colocá-lo num interferômetro de Michelson (neste caso, a montagem de MDO pode ser usada). É importante que o espelho M_3 se desloque uniformemente para que a frequência fique constante no tempo.

A montagem utilizada na calibração do PZT está mostrada na Fig. 4.3. A lâmina de vidro L é utilizada para provocar a interferência dos feixes. Quando a mesma ocorrer teremos a formação de um padrão de interferência cujo perfil pode ser analisado fazendo com que apenas uma das franjas de interferência incida na superfície de um fotodetetor. Ao aplicar-se uma tensão no PZT observa-se o deslocamento da posição das franjas. Aplicando uma rampa direta no PZT, a tensão deve ser variada até se observar a formação de um sinal senoidal (Fig. 4.3b) no osciloscópio ligado ao fotodetetor. Com o PZT utilizado a tensão obtida foi de 120 V em λ=514.5 nm.

Na Fig. 4.3b observa-se a presença de um "flyback" no sinal que ocorre quando o PZT retorna à sua posição de tensão nula. Quando a tensão está crescendo as franjas de interferência se deslocam em um dado sentido , porém, quando a tensão atinge seu valor máximo ocorre uma variação rápida dessa tensão até zero . Neste último intervalo as franjas passam a se deslocar em sentido contrário, uma vez que o movimento do espelho inverte seu sentido. Então temos a superposição de dois padrões de interferência que se deslocam em sentidos contrários no intervalo de tempo em que a tensão no PZT passa de seu valor máximo para zero, o que gera o sinal de "flyback".

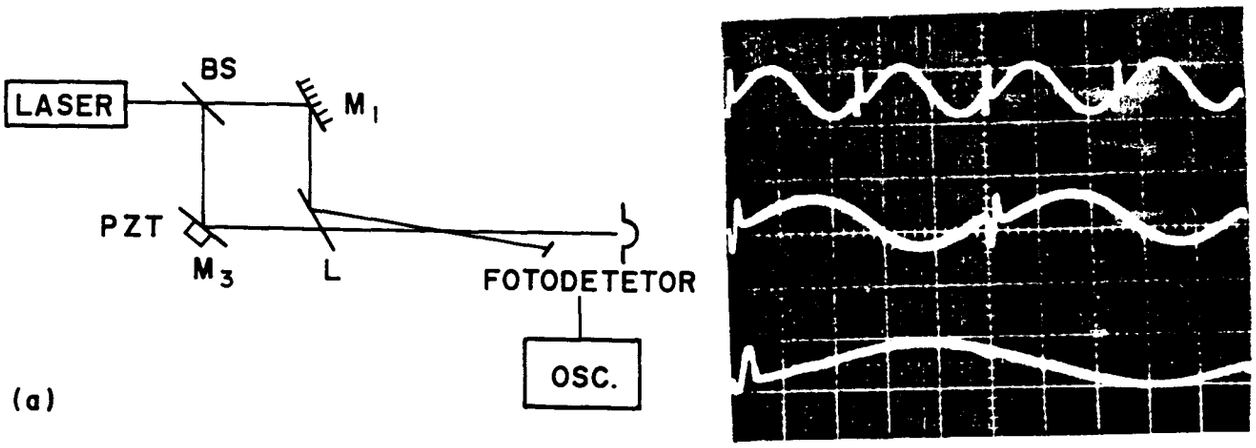


Fig. 4.3 *(a) Montagem experimental para a calibração do PZT. (b) Sinal no osciloscópio.*

4.3-ALINHAMENTO DO SISTEMA

Conhecendo-se a tensão correta a ser aplicada ao PZT, o passo seguinte é o alinhamento do sistema, que consiste em fazer com que ambos os feixes interfiram entre si no interior do cristal conforme a Fig. 2.1, de tal forma que os mesmos se propagem paralelamente à superfície da montagem e paralelos entre si após de refletirem nos espelhos M_2 e M_3. Essas duas condições surgem devido ao movimento do PZT, pois caso exista uma inclinação em qualquer um dos feixes, a sua superposição no cristal será modificada com o movimento do PZT.

Após verificar que os feixes estão paralelos, coloca-se a lente convergente L na posição indicada na Fig. 4.1. Com isso, os feixes convergem para o foco da lente, posição na qual deve ser colocado o cristal. É importante notar

que a separação espacial entre os feixes fraco e forte ao incidirem na lente seja o menor possível para evitar efeitos de aberração da lente e para que o ângulo formado pelos mesmos ao incidirem no cristal seja pequeno. Na montagem que utilizamos o ângulo formado pelos feixes é de aproximadamente 5°.

Quando ocorre a superposição dos feixes no interior do cristal forma-se um padrão de interferência no feixe fraco cujas franjas se deslocam com o movimento do espelho M_2. A posição de M_2 para a qual o sistema está alinhado é aquela em que se verifica o menor número possível de franjas no feixe fraco, sendo que estas devem estar na mesma posição do feixe fraco quando bloqueamos o feixe forte. Normalmente as franjas geradas no feixe fraco são difíceis de serem observadas, sendo necessário utilizar uma lente divergente para ampliá-las.

A verificação final do alinhamento é feita pela observação do sinal do feixe fraco no fotodetetor ligado ao osciloscópio e aplicando a tensão triangular no PZT. Se houver superposição dos feixes ocorre a formação da grade de índice de refração e o sinal será visto conforme mostra a Fig. 4.4. Devemos procurar obter a máxima amplitude possível para o sinal tipo onda quadrada mostrada nesta figura.

No trecho AB a tensão aplicada ao PZT é positiva e $\Delta=(\omega_1-\omega_2)\tau$ é positivo, pois o PZT foi polarizado de tal forma que a aplicação de uma tensão positiva provoca o movimento para atrás do espelho M_3. Sendo assim, teremos que $\omega_2<\omega_1$ e portanto $\Delta>0$. Então, de acordo com a Eq. (3.39) teremos ganho para o feixe fraco, sendo sua intensidade dada por $I(+\Delta)$. No trecho BC, $\Delta<0$ e o feixe fraco perde energia para o feixe forte.

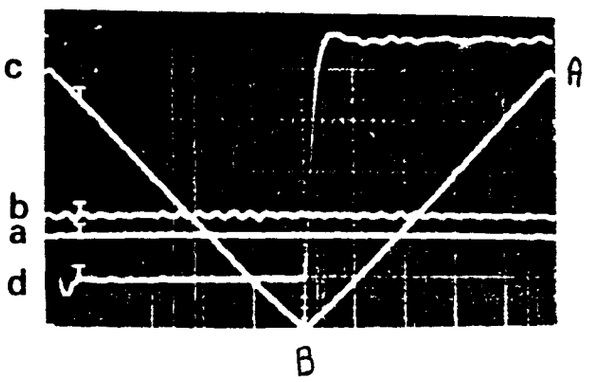


Fig. 4.4 *Sinal do feixe fraco obtido no osciloscópio pela MDO ao aplicarmos uma onda quadrada ao PZT.*

O traço (a) representado na Fig. 4.4 é o sinal do feixe fraco com $\Delta=0$ e bloqueando o feixe forte. O traço (b) representa o sinal do feixe fraco com $\Delta=0$ mas com o feixe forte incidindo no cristal. O fato do traço (b) ser mais intenso que o traço (a) mostra a saturação da absorção provocada pelo feixe forte. Ou seja, quando o feixe forte incide no cristal provoca a saturação da absorção do meio, fazendo com que o feixe fraco seja menos absorvido.

Normalmente a frequência da onda triangular para verificar o alinhamento é aquela em que o ganho é máximo, sendo dada por $\Delta=1$, o que significa que a frequência da onda triangular deve ser $\Delta f=1/4\pi\tau$.

4.4-MEDIDAS REALIZADAS NA MISTURA DE DUAS ONDAS

Para a MDO foram realizadas as seguintes medidas:

4.4.1.-Γ_1 (GAMA 1)

O parâmetro de ganho Γ_1 é medido conforme a definição teórica:

$$\Gamma_1 = \ln\left(\frac{I(\Delta)}{I(0)}\right)$$

A medida é feita fixando a potência do laser e variando a diferença de frequência entre os feixes forte e fraco, ou em outras palavras, variando a frequência da rampa aplicada ao PZT. As grandezas medidas são I(+Δ), I(-Δ), I(0) e Δf, onde I(+Δ) é obtido aplicando a rampa direta e I(-Δ) aplicando a rampa inversa. I(0) é a intensidade do feixe fraco sem a aplicação de tensão no PZT e Δf é a frequência da rampa. Normalmente Δf possui valores entre -200 Hz até 200 Hz. Na Fig. 5.4 mostramos um ajuste da curva de Γ_1 para o Rubi, que nos fornece os parâmetros n_2' , n_2'' , τ e I_s. As intensidades descritas acima são medidas através do multímetro M ligado ao fotodetetor FD (Fig. 4.1).

4.4.2.- Γ_2 (GAMA 2)

Esta medida consiste em fixar a frequência para a qual a relação de ganho $\Gamma_2 = \ln [\, I(+\Delta)/I(-\Delta) \,]$ é máxima. Tendo-se encontrado essa frequência, fazemos a medida do parâmetro de ganho Γ_2 variando a intensidade do laser incidente na amostra. Aqui é necessário medir I(+Δ), I(-Δ) e a potência do laser. Na

Fig. 5.5 mostramos um gráfico do parâmetro Γ_2.

As medidas de Γ_1 e Γ_2 foram realizadas para o Rubi e para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ nos comprimentos de onda de 514.5 nm, 488 nm, e 458 nm (estes dois últimos somente no $GdAlO_3:Cr^{+3}$) que correspondem às linhas mais intensas do laser de Argônio. As intensidades obtidas com a lente convergente de foco 20 cm (colocada na frente do espelho M_2 da Fig. 4.1) estão na faixa de 0.1 a 2kW/cm^2, correspondendo a potências até aproximadamente 800 mW.

Para determinar o valor da intensidade no cristal é necessário medir o diâmetro 2ω do feixe do laser no foco da lente. Essa medida foi realizada com o auxílio de um "pin-hole", que é colocado na posição do cristal. O diâmetro 2ω do feixe é obtido medindo a potência incidente no "pin-hole" e a potência transmitida através do mesmo. Como o feixe é considerado Gaussiano, então:

$$\omega = r_0 \sqrt{\frac{2}{\ln (1 - P_t/P_i)}} \qquad (4.1)$$

onde P_t é a potência transmitida, P_i é a potência incidente e r_0 é o raio do "pin-hole", cuja abertura é circular. O "pin-hole" utilizado possui raio r_0=50μm e para a lente de 20 cm de foco, o raio ω do feixe fica entre 50 e 90 μm, dependendo da posição do cristal em relação à lente. Conhecendo-se o diâmetro do feixe é possível determinar a intensidade de pico I no cristal, através da relação :

$$I = \frac{2P_i}{\pi\omega^2} \qquad (4.2)$$

onde P_i é a potência incidente.

4.5.-MISTURA DE DUAS ONDAS TRANSIENTE

A montagem experimental e o processo de alinhamento de sistema para a medida da fase de n_2 são idênticos aos da MDO. Após verificar a existência da onda quadrada da Fig. 4.4 , basta mudar o sinal aplicado ao PZT para um pulso rápido o suficiente para produzir um transiente de fase no feixe fraco. O movimento do espelho gerado pela aplicação desse pulso de tensão introduz um transiente de fase $\delta(t)$ tal que $\delta(t)=2\pi vt/\lambda$, onde v é a velocidade do espelho. É importante ressaltar que esta não precisa ser linear, bastanto apenas ser monotônica, já que a informação necessária é apenas a relação entre o sinal estacionário e as intensidades máxima e mínima do sinal do feixe fraco durante o transiente de fase. O pulso aplicado ao PZT é mostrado na Fig. 4.5 e tem duração de T_p=180 μs e tensão máxima V=280 V, que provoca um deslocamento de aproximadamente 3λ no espelho ligado ao PZT. Durante a aplicação do pulso a fase $\delta(t)$ varia de 6π.

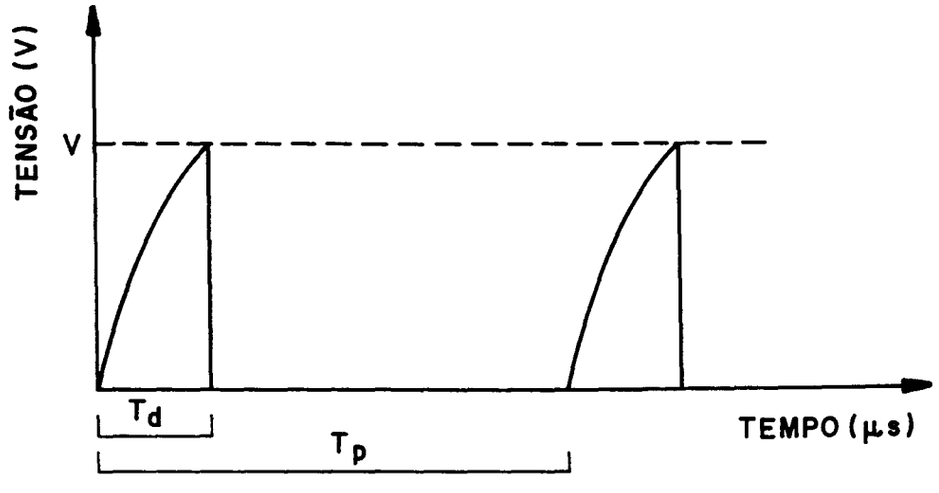


Fig. 4.5 *Pulso aplicado ao PZT na MDO Transiente.*

O período T_p do pulso deve ser muito maior que o tempo de vida τ do estado excitado, para permitir que a grade se reestabeleça, enquanto que T_d deve ser muito menor que τ. O sinal transiente resultante possui forma senoidal e é descrito pela Eq. (3.26), sendo aquisicionado por um "box-car". A aquisição é feita nos primeiros 100 μs de duração do pulso, tomando-se 10 médias de cada um dos 250 pontos em que se faz a aquisição do sinal. É importante notar que deve existir um atraso (que aqui corresponde a 10 μs) entre o início da aquisição do sinal e o início do pulso, o que possibilita a aquisição do sinal no estado estacionário. O sinal aquisicionado é normalizado de forma a possuir amplitude de -1 a +1, sendo o valor do sinal no estado estacionário correspondente a senϕ, onde ϕ é a fase inicial descrita pela Eq. (3.26).

As medidas realizadas nesta montagem de MDO transiente consistiram em obter a variação da fase em função da intensidade para o Rubi, $GdAlO_3:Cr^{+3}$ nos comprimentos de onda de 514.5 nm e 488 nm.

4.5.1-SISTEMA DE AQUISIÇÃO [28]

O sistema de aquisição utilizado permite monitorar, aquisicionar dados e controlar uma grande variedade de experimentos realizados em laboratório. A base deste sistema consiste em uma placa conectada a um microcomputador e um "software" de controle. Como unidade de controle de processamento foi utilizado um microcomputador da linha IBM-PC/XT de 640 Kbytes de memória, dois acionadores de disco de $5^{1/4}$", um disco rígido de 20 Mbytes e monitor monocromático. Baseado nessa unidade foi desenvolvida uma placa de aquisição responsável pela interface entre o microcomputador e o meio externo e

um módulo para aquisição de sinais pulsados no tempo.

O módulo para aquisição de pulsos é utilizado para aquisicionar sinais pulsados, o que é feito através da integração do sinal. O módulo conta com 4 placas, 2 geradores de delay e 2 integradores de gate. Os primeiros produzem um sinal de controle denominado "gate", que irá definir os limites de integração para os circuitos integradores. Quando o sinal de sincronismo externo ("trigger") é aplicado ao gerador de "delay", este gera uma "gate" de controle, cuja largura t_2 - t_1 e posição temporal t_d podem ser controladas. Este sinal controla diretamente o circuito integrador, que gera um sinal proporcional à área do sinal de entrada no intervalo t_2 - t_1 e que permanece no circuito até que seja efetuada a coleta do mesmo. Em seguida, um sinal externo de "reset" é enviado para o zeramento de um capacitor e o circuito está pronto para nova operação. A partir de uma variação contínua de t_d a integração de cada região é realizada e podemos levantar a forma do sinal da mesma maneira que um "box-car"

5-RESULTADOS

5.1-INTRODUÇÃO

O objetivo deste trabalho é estudar o processo de formação da grade de índice e a contribuição relativa das partes dispersiva e absortiva no processo de transferência de energia no $GdAlO_3:Cr^{+3}$. Com essa informação é possível determinar quais são os níveis de energia do Cr^{+3} que contribuem para o índice de refração não linear, que é também nosso interesse. É importante citar que os parâmetros obtidos por MDO para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ são conhecidos na literatura apenas para λ=514.5 nm [22,29,30] e neste trabalho foram determinados em 488 e 458 nm.

Estudamos o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ pelo fato de possuir boas potencialidades como meio de ação laser e por apresentar algumas propriedades não previstas pelo modelo utilizado para o Rubi, já que o mesmo é baseado no comportamento de cristais com baixas concentrações de Cr^{+3}. Mostraremos que o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ apresenta algumas diferenças quanto ao processo de geração do índice de refração não linear quando comparado com o Rubi. Isso se deve a que a amostra de $GdAlO_3:Cr^{+3}$ utilizada possui uma concentração de íons de Cromo (0.3%) muito superior à do Rubi (0.05%). Devido a essa alta concentração, ocorre um processo de interação entre pares de Cr^{+3}, e como resultado observamos que r passa a ser uma função da intensidade. Este fato já tinha sido observado experimentalmente por nós mas ainda não era conhecida a teoria que explicasse esse comportamento.

A partir da observação da dependência da contribuição da grade

absortiva (ou equivalentemente de r) com a intensidade , dois caminhos foram tomados. O primeiro foi a utilização da técnica de MDO transiente para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$, pois permite determinar de forma direta a razão entre as partes imaginária e real do índice de refração não linear. Com a utilização da MDO transiente observamos novamente uma dependência de r com a intensidade.

O segundo caminho consistiu em elaborar uma teoria para MDO tentando explicar esses resultados. A referência [23] apresenta esta teoria, onde se considera a troca de energia entre os feixes como um fenômeno de auto-difração de ordem zero dos feixes incidentes no cristal e se incluem efeitos de saturação. Este tratamento , descrito na seção 3.4 , apresenta alguns resultados interessantes. Em primeiro lugar, surge a dependência do parâmetro de ganho Γ_2 com $(1+I/I_S)^2$, conforme já se sabia empiricamente na ref. [9]. Além disso, é prevista a saturação do tempo de resposta do meio e também do parâmetro de ganho Γ_1. Porém, a dependência de r com I não é obtida. Essa dependência só conseguiu ser explicada posteriormente [42], conforme mostra a seção 2.5.2, com a proposta de interação de pares de Cr. Dessa forma, a parte imaginária do índice de refração não linear apresenta uma componente dependente da intensidade.

Um dos resultados não explicados ainda é o fato de que a técnica de MDO transiente fornece um valor de r (quando $I \rightarrow 0$) muito superior ao obtido via MDO tanto para λ=514.5 nm como para 488 nm no $GdAlO_3:Cr^{+3}$, enquanto que para o Rubi a concordância é boa. Outro resultado que também apresenta alguma discrepância está ligado à dependência numérica obtida pela interação de pares de Cr e a obtida experimentalmente por MDO transiente para a curva r(I). A MDO transiente apresenta uma dependência de r com I superior à prevista pela teoria.

Inicialmente apresentaremos os resultados obtidos com MDO e MDO transiente para o Rubi, cujos parâmetros são amplamente conhecidos. Dessa forma, podemos verificar a reprodutibilidade das técnicas acima citadas. Depois mostraremos os resultados obtidos para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$.

Antes de passarmos aos resultados faremos um breve resumo das condições de validade de MDO. Em primeiro lugar temos a condição de isotropia dos meios, que é verificada para os dois cristais utilizados. Também se supõe que a polarização do campo elétrico é perpendicular ao plano de incidência e se usa a aproximação SVEA, que no caso da MDO significa que os processos de troca e absorção de energia são lentos. Além disso, a incidência dos feixes satisfaz a condição de Bragg e as ordens de difração mais altas não são consideradas, o que quer dizer que limitamos a teoria para grades finas. Aqui é necessário fazer a observação de que para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ sempre ocorre a formação de um feixe difratado de primeira ordem , mesmo para baixas intensidades.

Existe um parâmetro Q definido como $Q=2\pi\lambda d/n\Lambda^2$ [40] considerado apropriado para medir a espessura da grade. Podemos considerar uma grade espessa como sendo aquela em que $Q >> 1$. Tanto para o Rubi ($Q=45$) como para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ ($Q=10$) esta condição é satisfeita.

5.2- RUBI

5.2.1-PROPRIEDADES ÓPTICAS DO RUBI [33]

O Rubi é um cristal de safira (Al_2O_3) , onde alguns íons de Al^{+3} são

substituidos por íons de Cr^{+3} (íons d^3). O espectro de absorção do Rubi é devido aos íons de Cr^{+3}, já que os íons de Al^{+3} não possui elétrons d^3 e o espectro de absorção do Al_2O_3 sem íons de Cr^{+3} não possui as bandas que caracterizam o espectro do Rubi.

Cada um dos íons de Cr^{+3} é rodeado por seis íons de Oxigênio formando um octaedro, conforme mostra a Fig. 5.1. Os três termos menores do íon Cr^{+3} livre são ^4F (estado fundamental), ^4P e ^2G. Na presença do campo ligante, os termos ^4F e ^2G se abrem em 3 e 4 níveis respectivamente, de acordo com o mostrado na Fig. 5.2. Uma comparação do diagrama de níveis de energia mostrado nesta figura com o espectro de absorção apresentado na Fig. 5.3 fornece os seguintes resultados: as bandas mais intensas I e II pertencem às transições quarteto-quarteto $^4A_2 \rightarrow ^4T_2$ e $^4A_2 \rightarrow ^4T_1$ respectivamente. J_1, J_2 e J_3 são devidas às transições quarteto-dubleto $^4A_2 \rightarrow ^2E$, $^4A_2 \rightarrow ^2T_1$ e $^4A_2 \rightarrow ^2T_2$.

As diferenças significativas nas intensidades entre a banda de transferência de carga, as bandas I e II e as bandas fracas J_1 , J_2 e J_3 se originam na natureza diferente das transições correspondentes. Como mostrado na teoria quântica, a absorção de luz por moléculas é mais efetiva se durante o processo de absorção um elétron trocar seu número quântico de momento angular de 1 ou se o spin total do sistema de elétrons permanecer inalterado. Ambos os critérios são preenchidos pela transição de alta energia para a banda de transferência de carga. Já nas transições d-d nenhum dos elétrons muda o valor do seu momento angular, e as mesmas se apresentam menos intensas que as transições para a banda de transferência de carga. Quando um elétron faz uma transição para essa banda, é transferido do íon central (de Cr) para o sistema. Entre as transições d-d, os

processos que preservam o spin total mostram uma absorção significativamente maior (bandas I e II), enquanto que as transições que mudam o spin possuem absorção menor (J_1 , J_2 e J_3).

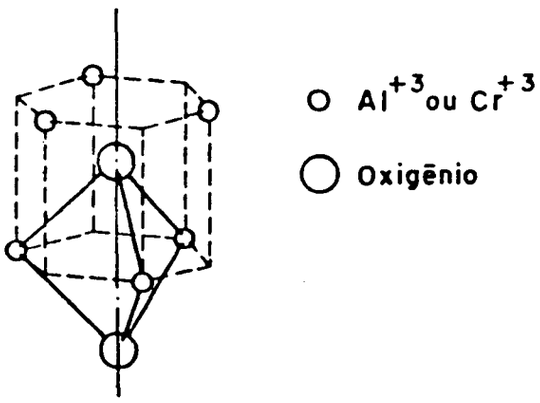


Fig. 5.1 *Estrutura cristalina da Safira: uniaxial e possui célula unitária hexagonal, cuja diagonal principal define o eixo de simetria (eixo c).*

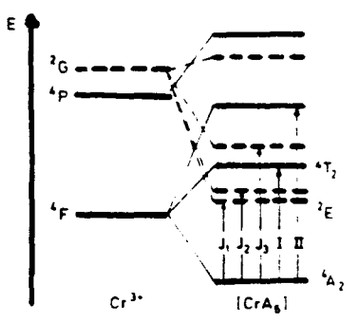


Fig. 5.2 *Níveis de energia do* Cr^{+3}.

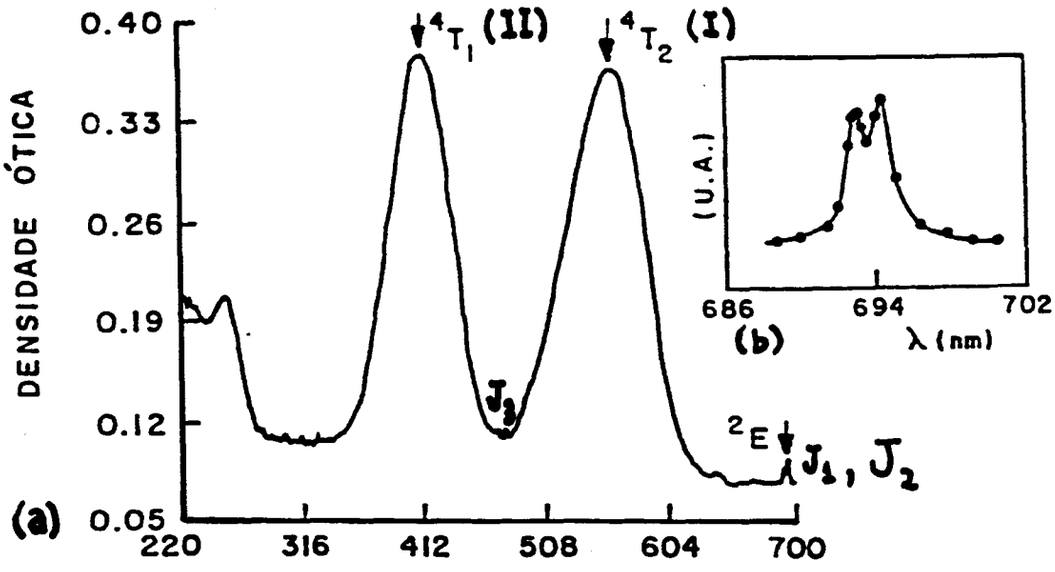


Fig. 5.3 *(a) Espectro de absorção do Rubi, (b)espectro de emissão.*

5.2.2-RESULTADOS DA MDO PARA O RUBI

O cristal que utilizamos apresenta forma cilíndrica na qual o eixo de simetria corresponde ao eixo c do cristal, com comprimento de .57 cm. A polarização do feixe do laser é tal que E⊥c.

Os parâmetros que podem ser determinados pela técnica de MDO (I_s, n_2', n_2'' e τ) já são bastante conhecidos na literatura. A geração de grades induzidas por laser foi muito estudada pelo fato do Rubi ser um cristal cujas propriedades óticas são conhecidas [35-36] e que pode servir como modelo para meios mais complexos. Para concentrações baixas ("pink" rubi com 0.05% de Cr) sabemos que o tempo de decaimento da grade corresponde ao tempo de vida do estado excitado ^2E [34]. Segundo as refs. [9-10,16,22-23,30,34,38] o tempo de decaimento do estado excitado se encontra entre 2.4 e 3.4 ms, o que está de acordo

com o valor de 3.4 ms que obtivemos. Quanto a n_2', o valor de $1*10^{-5}$ cm^2/kW que obtivemos em 514 nm também está em com acordo com as refs. [9,10,22,30].

Conforme já foi mencionado antes, para o Rubi já é fato conhecido que a banda de transferência de carga apresenta a contribuição mais importante para o índice de refração não linear. Isso se deve ao fato de que os níveis intermediários que existem entre a banda de transferência de carga possuem seções de choque muito pequenas (da ordem de 10^{-18} cm^2) comparadas com a da banda de transferência de carga ($\sim 10^{-17}$ cm^2). Essa hipótese foi verificada por Adler e Lawandy [16] medindo n_2' em função do comprimento de onda λ e da temperatura. O que se observou é que a curva $n_2'(\lambda)$ acompanha a forma da banda de absorção $^4T_2$ conforme se esperava pela Eq. (2.11), devido à dependência de n_2' com I_s^{-1}. Além disso, foi verificado que n_2' não depende da temperatura, que também novamente certifica que os níveis intermediários não contribuem para n_2', já que a largura de linha destes níveis é fortemente dependente da temperatura.

A tabela 5.1 mostra os resultados que nós obtivemos para o Rubi. Observamos que a concordância entre os resultados é boa, menos pela diferença na intensidade de saturação, que deveria ser de 1,5 kW/cm^2, e no valor de r que foi de 0.05 [9] mas ainda assim estão dentro do erro experimental.

n_2' (cm^2/kW)	I_s (kW/cm^2)	τ (ms)	r
$1*10^{-5}$	1.6	3.4	.03

Tabela 5.1 *Resultados obtidos por MDO realizados por nós para o Rubi (514 nm).*

Na Fig. 5.4 mostramos um ajuste da curva de ganho Γ_1 definido pela Eq. (3.39), para λ=514.5 nm, indicando que a mesma apresenta uma simetria quase completa devido ao valor baixo de r, o que mostra que a contribuição da grade dispersiva (ou simétrica) é dominante. Em relação ao parâmetro de ganho Γ_2 mostramos na Fig. 5.5 um ajuste para λ=514.5 nm, onde comparamos as expressões obtidas nas Eqs. (3.40) e (3.22). A Eq. (3.22) foi ajustada com os seguintes parâmetros $n_2'=1*10^{-5}$ cm^2/kW, I_S=1,7 kW/cm^2 e τ=3,4 ms. Vemos da Fig. 5.5 que a curva (a) satura mais rápido que a curva (b) , enquanto que para intensidades menores, ambas apresentam um bom ajuste com os pontos experimentais.

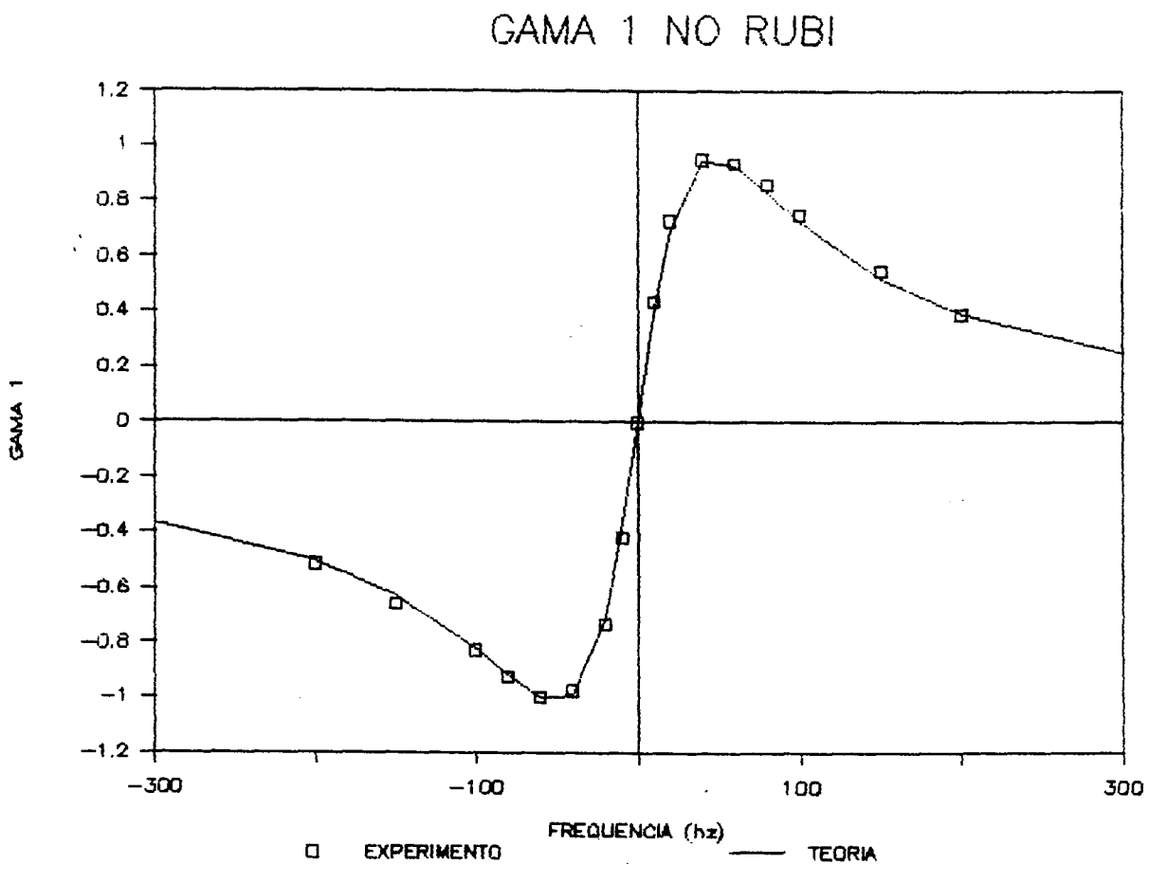


Fig. 5.4 *Γ_1 no Rubi com T_1=3.3 ms , I=0.1 kW/cm^2, I_S=1.62 kW/cm^2 , $n_2'=1*10^{-6}$ cm^2/kW e r=0.03.*

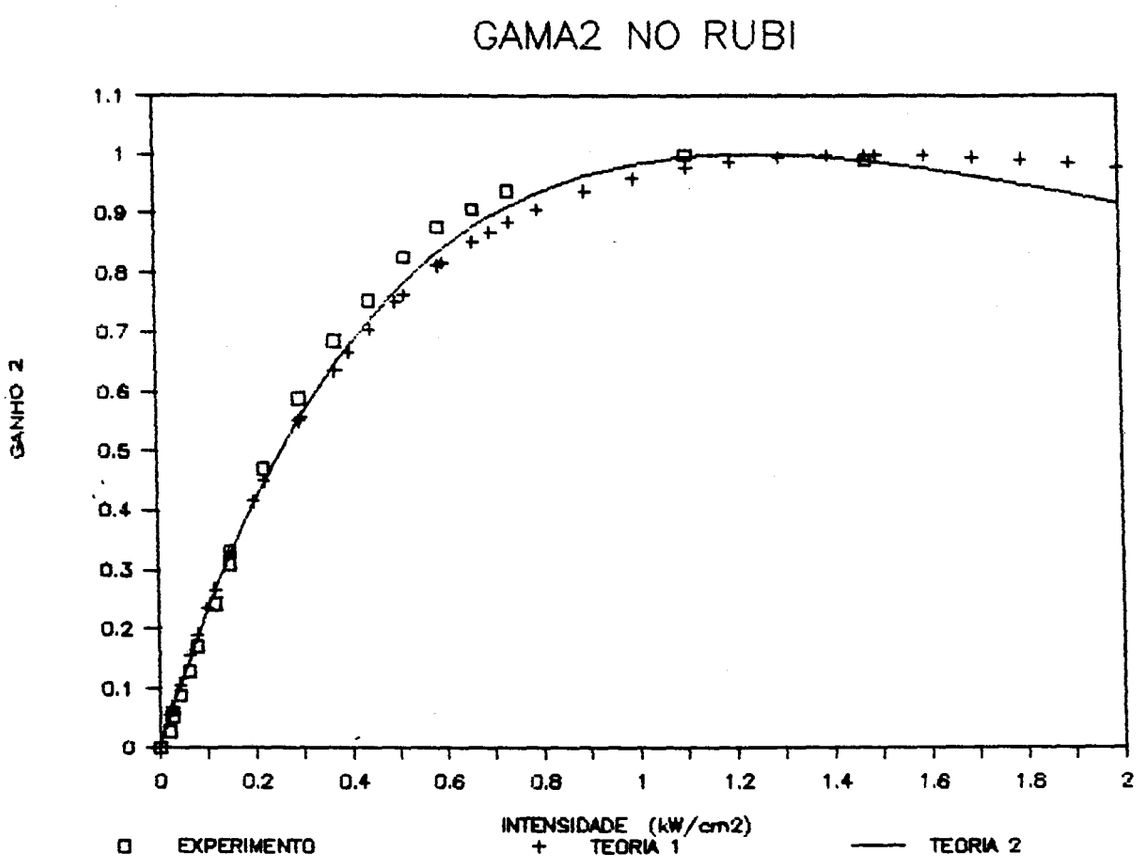


Fig. 5.5 Γ_2 *no Rubi com* $\Delta=1.3$, $I_s=1.62$ *kW/cm*^{2} *para a Eq. (3.40), que corresponde à teoria 2 e* $I_s=1.5$ *kW/cm*^{2} *para a Eq. (3.22), que corresponde à teoria 1.*

Para verificarmos o valor do tempo de vida e sua saturação com a intensidade realizamos medidas de fluorescência no Rubi em 514.5 nm e comparamos com o resultado obtido por MDO. Para 488 nm, a intensidade de saturação obtida por fluorescência foi muitas vezes superior à obtida por MDO. A Fig. 5.6 mostra uma comparação do tempo de vida em função da intensidade, ajustado para I_S=1.6 kW/cm^2.

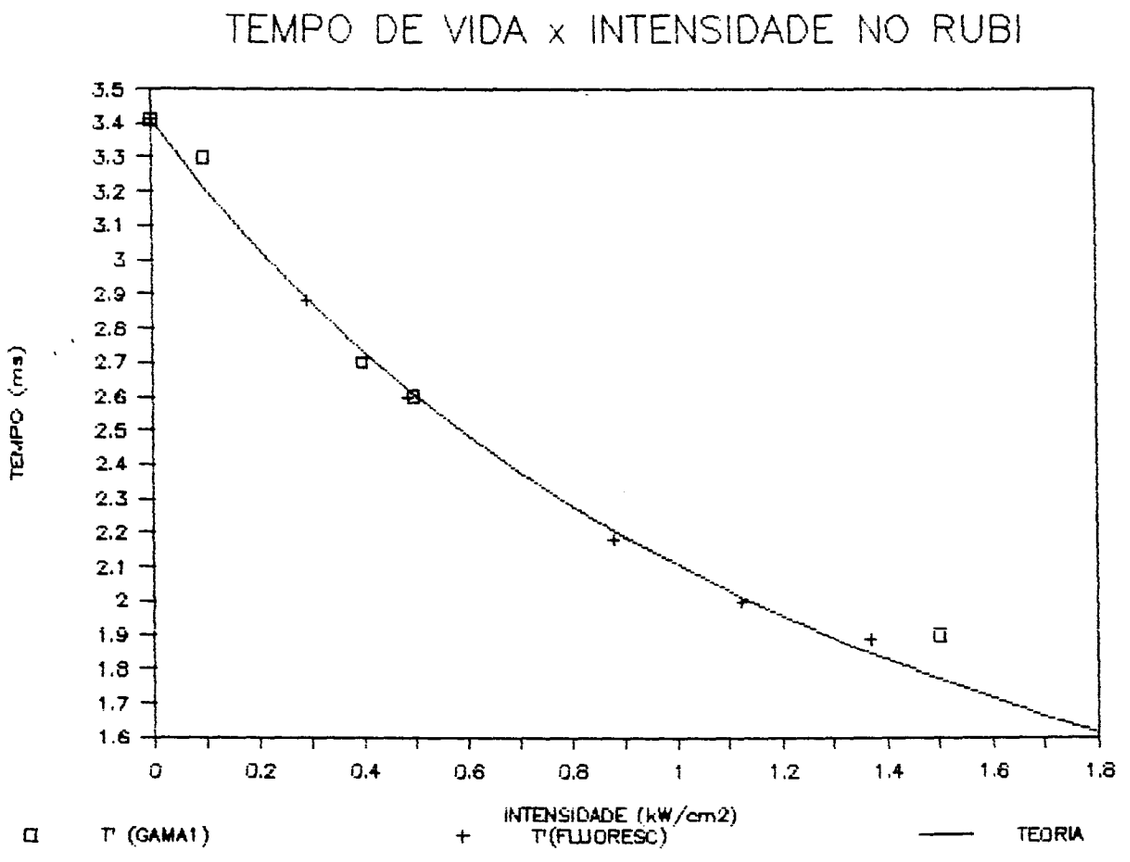


Fig. 5.6 *Medida do tempo de vida do Rubi por fluorescência e por MDO em 514.5 nm. A curva teórica é dada por* $T'=\frac{T}{1+I/I_S}$, *onde usamos T=3.4 ms e* I_S=1.62 kW/cm^2.

5.2.3-MDO TRANSIENTE NO RUBI

Além de obtermos a razão r pelo ajuste da curva da Fig. 5.4 , também nos utilizamos da técnica de MDO transiente, que foi realizada para várias intensidades e em diferentes comprimentos de onda. Porém não foi possível detetar a variação da fase de n_2 com a intensidade devido à baixa concentração de íons de Cr no Rubi (.05%).

Na tabela 5.2 mostramos os resultados de MDO transiente. Os valores de r apresentados correspondem a seu valor médio obtido em diversas intensidades (de 0.1 até 2 kW/cm^2).

λ (nm)	$r^{(1)}$ (M2O)	$r^{(2)}$ (Boothroyd)	$r^{(3)}$ (M2O transiente)
514	.05	.04	.07
488	.00	-.01	.02

Tabela 5.2 *(1) representa o valor de r obtido na ref. [9]; (2) corresponde ao valor de r determinado usando MDO transiente na ref. [26] e (3) são os valores obtidos neste trabalho.*

Na Fig. 5.7 mostramos o sinal de MDO transiente em 488 nm e 514.5 nm. O fato do sinal não ser exatamente um seno se deve à forma do pulso aplicado ao PZT dado por $\delta(t)=2\pi vt/\lambda$, que não é linear (ver Fig. 4.5), apenas crescente, distorcendo a função senoidal. Estas medidas novamente confirmam que a grade de índice gerada no Rubi é uma grade basicamente de fase. Para λ=488 nm vemos que n_2'' é positivo, como esperado em função do valor das absorções no estado excitado

e no estado fundamental para este comprimento de onda [35].

Embora a medida da fase de n_2 seja relativamente simples e requerer apenas um sistema de aquisição, a incerteza na medida de n_2''/n_2' depende do valor de ϕ. Uma incerteza de $d\phi$ em ϕ provoca um erro fracional em n_2''/n_2' de $2d\phi/sen2\phi$. Embora essa incerteza seja grande quando a razão n_2''/n_2' se aproxima de zero e para valores grandes, o sinal dos componentes individuais pode ainda ser claramente identificado.

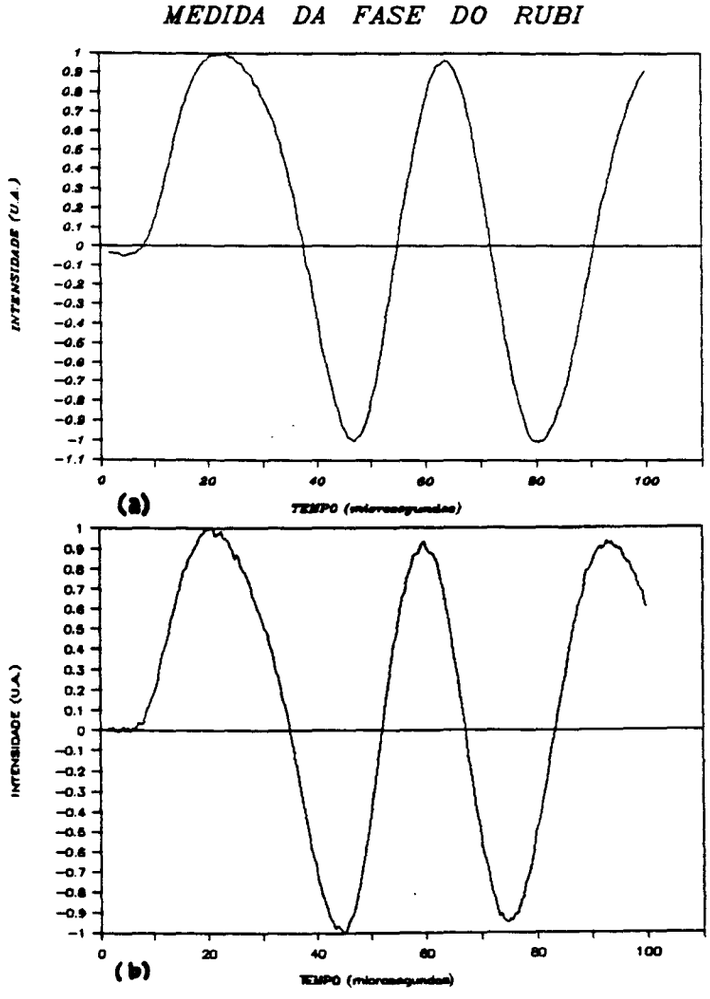


Fig. 5.7 *Sinal de MDO transiente para o Rubi (a) 514.5 nm com I=0.7 kW/cm² e com r=-0.04 (b) 488 nm, com I=1.6 kW/cm² e r=0.01*

5.3- $GdAlO_3:Cr^{+3}$

5.3.1-PROPRIEDADES ÓPTICAS DO $GdAlO_3:Cr^{+3}$

O Aluminato de Gadolínio pertence a uma classe de substâncias cuja fórmula geral é dada por ABO_3, onde o raio iônico do cátion A é maior que o do cátion B. Devido a esta diferença, este composto cristaliza-se numa estrutura denominada perovskita [31,41]. A estrutura da perovskita perfeita consiste de seis ânions O^{-2} em torno do cátion B^{+3}, formando um octaédro regular, rodeado por doze ânions O^{-2} e por oito cátions B^{+3} como mostrado na Fig. 5.8. Para o caso em que A e B são respectivamente Gadolínio e Alumínio, a estrutura não é cúbica perfeita, mas apresenta uma distorção ortorrômbica. Os átomos de Alumínio estão localizados nos vértices de um cubo perfeito, enquanto que os de Gadolínio se localizam nos vértices de um cubo distorcido e os átomos de oxigênio em torno do Alumínio formam um octaédro distorcido. Como as cerâmicas, as perovskitas são normalmente isolantes elétricos, ou seja, todos os sítios atômicos são preenchidos e as forças interatômicas são intensas.

Com respeito às suas propriedades óticas, o $GdAlO_3$ é um cristal biaxial com índices de refração iguais a n_g=2.151 , n_a=2.004 e n_p=1.991 , onde $\hat{n}_g$, $\hat{n}_p$ e $\hat{n}_a$ são os versores dos eixos ópticos principais.

Na dopagem do $GdAlO_3$, os átomos de Cr^{+3} substituem preferencialmente os átomos de Al. Este sistema foi estudado inicialmente para a obtenção de lasers, pois apresenta duas vantagens sobre o Rubi. O tempo de vida do estado excitado é de aproximadamente 14 ms, o que torna o bombeamento mais

eficiente e a banda de luminescência é mais larga. No entanto, o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ não foi utilizado devido à dificuldade de se obterem cristais de boa qualidade óptica.

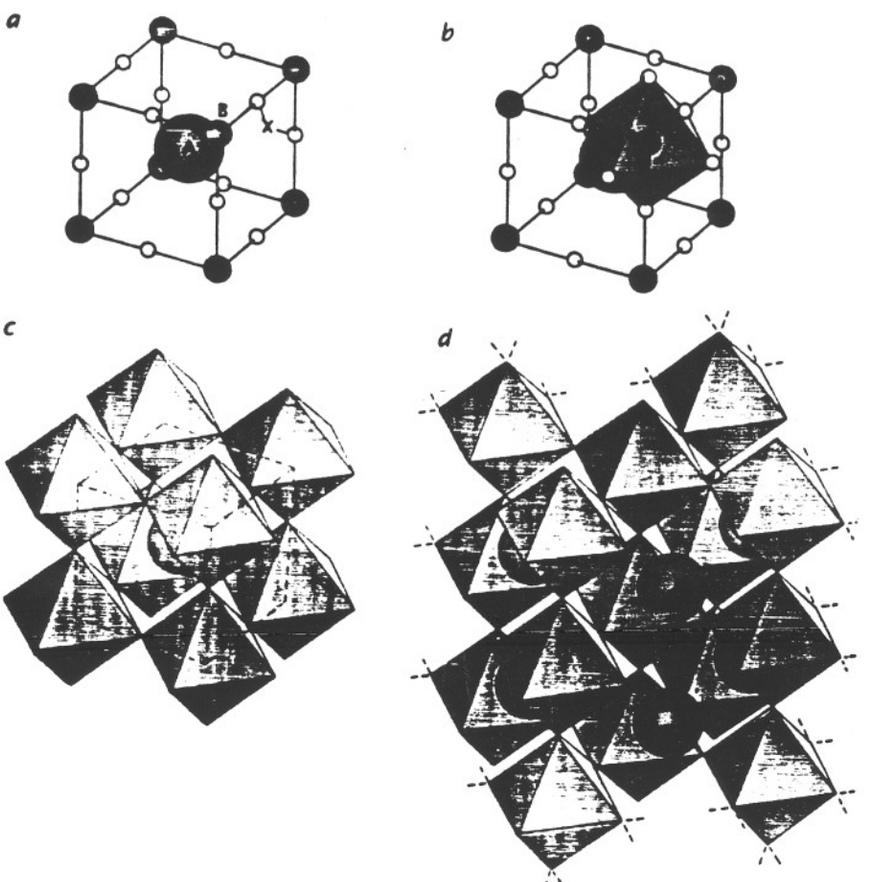


Fig. 5.8 *(a) Célula da estrutura perovskita ideal, (b) representação do octaédro formado pelos ânions X em torno de um cátion B. (c) e (d) Célula unitária representada por octaedros unidos entre si pelos vértices, em torno do cátion A.*

A amostra que utilizamos apresenta a forma de uma pastilha de espessura .14 cm com direções dos eixos a e b desconhecidas. Porém não foi observada qualquer diferença no espectro de absorção com a direção da polarização da luz incidente. O eixo c é tal que E⊥c. Na Fig. 5.9 mostramos o

espectro de absorção do $GdAlO_3:Cr^{+3}$.

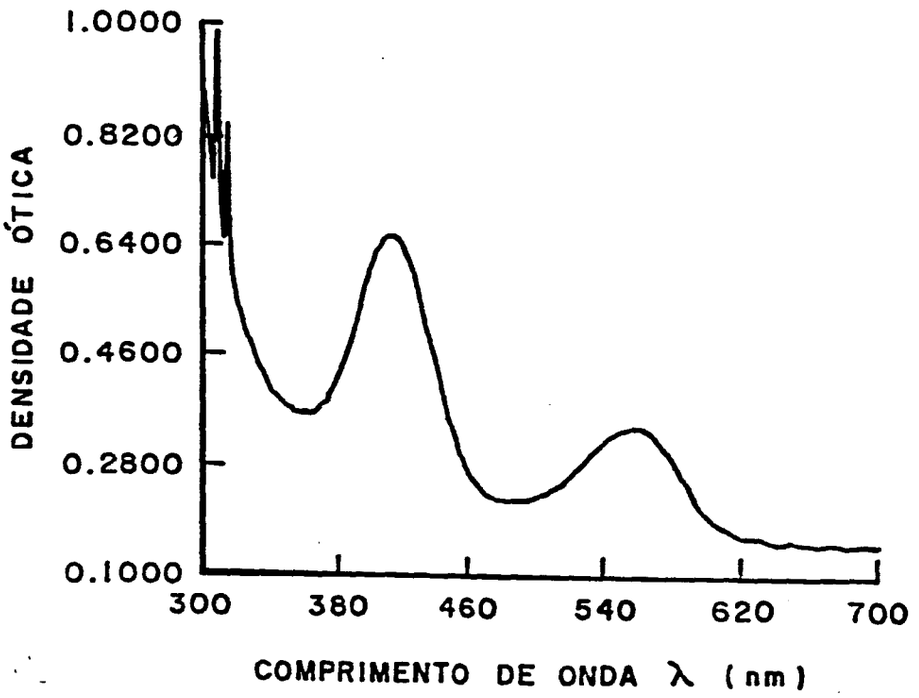


Fig. 5.9 *Espectro de Absorção do $GdAlO_3:Cr^{+3}$ à temperatura ambiente.*

5.3.2-RESULTADOS DE MDO TRANSIENTE NO $GdAlO_3:Cr^{+3}$

Na seção 2.5 foi proposto o modelo que prevê a interação de pares Cr-Cr no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ e também supõe que é a banda de transferência de carga que apresenta a contribuição principal para n_2. A interação de pares já foi verificada em 514 nm e parte da confirmação da contribuição da banda de transferência de carga já foi realizada na ref. [42], onde se mostra que, da mesma forma que para o Rubi, o valor de n_2' em função de λ também segue a forma da banda de absorção $^4T_2$.

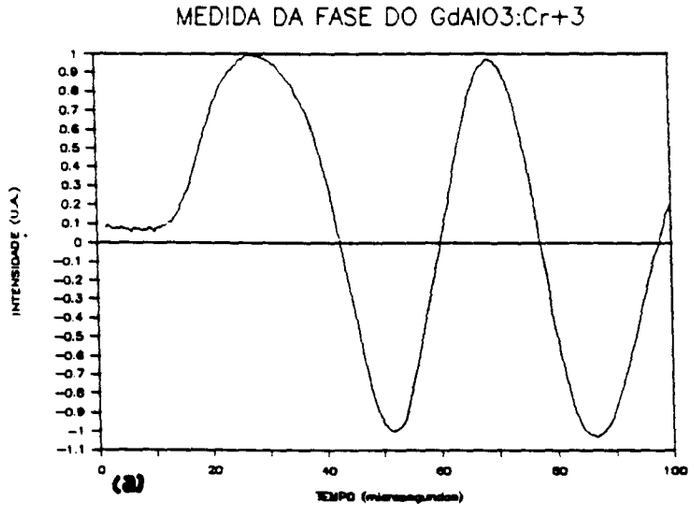
O que fizemos neste trabalho foi obter a dependência de r com a intensidade para uma amostra com concentração de 0.3% em 488 nm, a fim de verificarmos a validade da hipótese de interação de pares de Cr. Fizemos isso de duas formas diferentes: por MDO e por MDO transiente.

Na MDO transiente os resultados obtidos estão apresentados nas Figs. 5.10a, 5.10b e 5.10c. O ajuste dos pontos experimentais com a Eq. (2.18) nos fornece os seguintes resultados:

$$r = .25\ (\ 1 - 7.2\ I/(1+I/I_S)\ ) \qquad (514\ nm) \qquad (5.1)$$

$$r = .38\ (\ 1 - 1.9\ I/(1+I/I_S)\ ) \qquad (488\ nm) \qquad (5.2)$$

O que precisamos fazer agora é calcular o coeficiente $F(\nu)$ da Eq. (2.18) e verificar qual deve ser o fator multiplicativo do termo $I/(1+I/I_S)$.



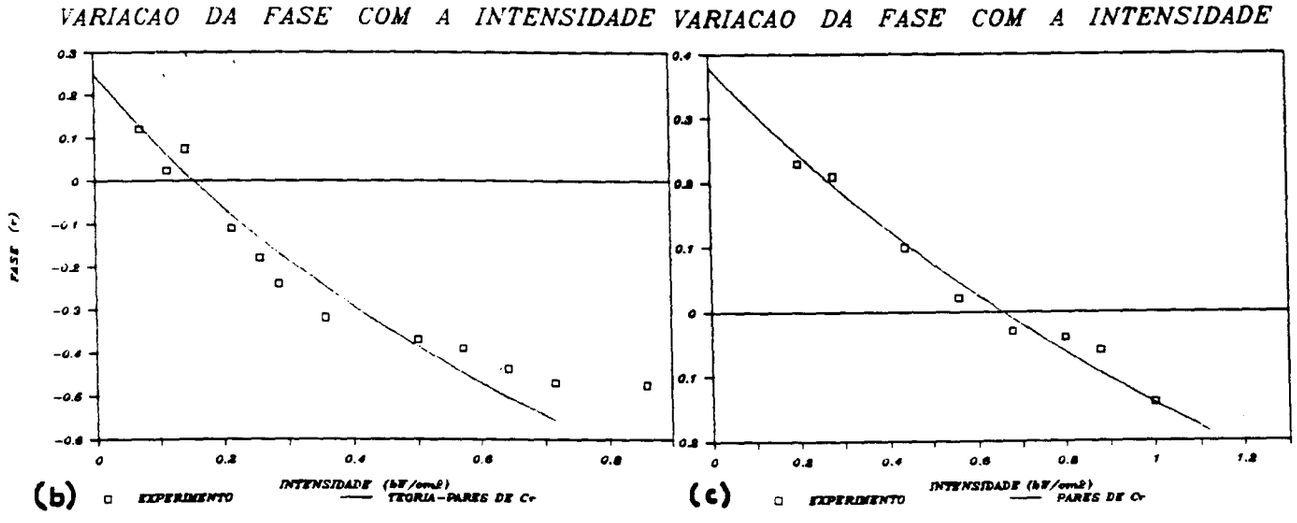


Fig. 5.10 *(a) Sinal da MDO transiente para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ para λ=514.5 nm, com I=0.14 kW/cm^2 e r=0.08. (b) Dependência da fase com a intensidade I para λ=514.5 nm, (c) λ=488 nm, ajustadas com as Eqs. (5.1) e (5.2) respectivamente.*

5.3.3-CÁLCULO DO COEFICIENTE F(υ)

Quando incluimos a absorção α_{te} ocorrida pela interação de pares Cr-Cr, o coeficiente de absorção α_e do estado excitado medido experimentalmente possui duas partes:

$$\alpha_e = N_0\,\sigma_e + N_0^2\,F(\upsilon) \qquad (5.3)$$

Para determinarmos o valor de F(υ) para um dado υ é necessário conhecermos a concentração de íons de Cr^{+3} (que na amostra que ultilizamos corresponde a $5{,}61 * 10^{19}$ cm^{-3}), o valor de σ_e e de α_e. Este último pode ser medido diretamente pelo processo utilizado nas refs. [14,42]. Na tabela 5.3 temos esses valores em 514 e 488 nm, obtidos a partir da ref. [42].

λ (nm)	$\alpha_e^{(1)}$ (cm^{-1})	σ_g (cm^2)	σ_e (cm^2)	F(υ)
514	3.02	$2.3*10^{-20}$	$4.6*10^{-21}$	$8.6*10^{-40}$
488	1.8	$1.2*10^{-20}$	$2.4*10^{-21}$	$5.7*10^{-40}$

Tabela 5.3 *Dados experimentais para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$, onde (1) foi obtido a partir da ref.[42]. σ_g foi determinado usando a relação $\sigma_g=h\upsilon/I_s\tau$ com I_s obtido a partir dos resultados de MDO (ver tabela 5.4) σ_e é obtido através da hipótese de que $\sigma_e/\sigma_g = 0.2$ feita na ref. [42].*

Usando os resultados da tabela 5.3 verificamos que os fatores multiplicativos ($N_oF(\upsilon)/(\sigma_s(1-\sigma_e/\sigma_g)I_s)$ da Eq. (2.18)) devem ser de 2.2 (514 nm) e 1.2

(488 nm), o que não está em acordo com os valores obtidos nas Eqs. (5.1) e (5.2). Além disso, os valores de r_0 obtidos possuem valores muito maiores do que os esperados pela Eq. (2.14) já que deveriam ser de 0.08 (514 nm) e 0.04 (488 nm). Até o momento não sabemos a que atribuir essa discrepância.

5.3.4-RESULTADOS DE MDO

Na Fig. 5.11 temos o comportamento da curva de ganho Γ_1 para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ em 488 nm, mostrando claramente o crescimento da assimetria de Γ_1 com o aumento da intensidade. Também observamos que a posição do pico se desloca para frequências mais altas com o crescimento da intensidade. Como r é dependente da intensidade vemos que a curva de ganho de Γ_1 corta o eixo de frequências para intensidades altas.

Através do ajuste das curvas de Γ_1 mostradas na Fig. 5.11 pela expressão teórica dada pela Eq. (3.39) obtivemos os resultados mostrados na tabela 5.4.

λ (nm)	n_2'(cm^2/kW)	r	I_s(kW/cm^2)	τ (ms)
514	$14*10^{-5}$	0.2	1.2	14
488	$6*10^{-5}$	0.1	2.4	14
458	$7*10^{-5}$		1.7	14

Tabela 5.4 *Comparação entre os parâmetros obtidos por MDO para o* $GdAlO_3:Cr^{+3}$ *em 488 nm , 514.5 nm e 458 nm.*

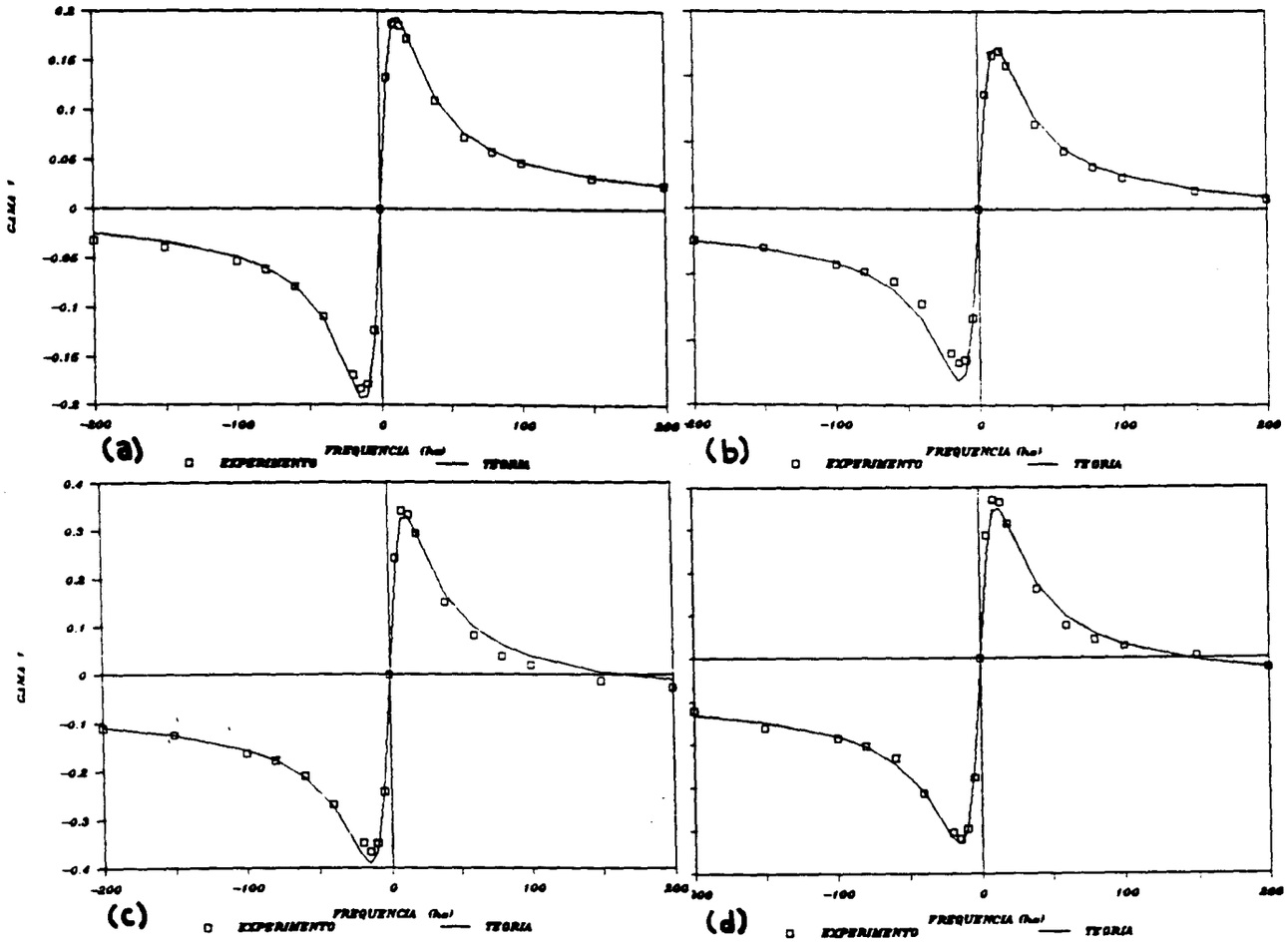


Fig. 5.11 Γ_1 *no* $GdAlO_3:Cr^{+3}$ *em diversas intensidades (a) 0.2* kW/cm^2 *, (b) 0.4* kW/cm^2 *, (c) 0.5* kW/cm^2 *e (d) 0.7* kW/cm^2 *para* λ*=488 nm e ajustadas com os parâmetros da Tabela 5.4 e usando a Eq. (3.39).*

A partir da tabela 5.3 observamos que a não linearidade do $GdAlO_3:Cr^{+3}$ é muito menor em 488 nm que em 514.5 nm, o que significa que o ganho obtido no processo de MDO em 488 nm é menos efetivo. Além disso, a intensidade de saturação em 488 nm é maior que o dobro que em 514.5 nm, o que pode ser

entendido analisando o espectro de absorção do $GdAlO_3:Cr^{+3}$, pois como em 488 nm o coeficiente de absorção é menor que em 514.5 nm, consequentemente a intensidade de saturação em 488 nm deve ser maior.

O fato de n_2' ser menor em 488 nm se deve ao fato de que, como já foi mostrado na Eq. (2.11) o índice de refração não linear real deve acompanhar a forma da banda de absorção. Na Fig. 5.9 temos o espectro de absorção da amostra de $GdAlO_3:Cr^{+3}$ utilizada e vemos que n_2' deve ser maior para 514.5 nm. Para nos certificarmos obtivemos o valor de n_2' e de I_s em 458 nm, de onde conseguimos $n_2'=7*10^{-5}$ cm^2/kW e $I_s=1.7$ kW/cm^2, que correspondem a valores intermediários entre 488 nm e 514.5 nm, conforme se esperava pelo espectro de absorção.

Outra observação importante a ser feita está nos valores de r obtidos em I = 0, que mais uma vez não estão de acordo com o previsto teóricamente.

A curva de n_2' dada pela Eq. (2.11) pode ser construída pois conhecemos todos os parâmetros envolvidos. Essa curva está apresentada na Fig. 5.12. Quanto ao parâmetro de ganho Γ_2 temos na Fig. 5.13 o resultado obtido em 488 nm.

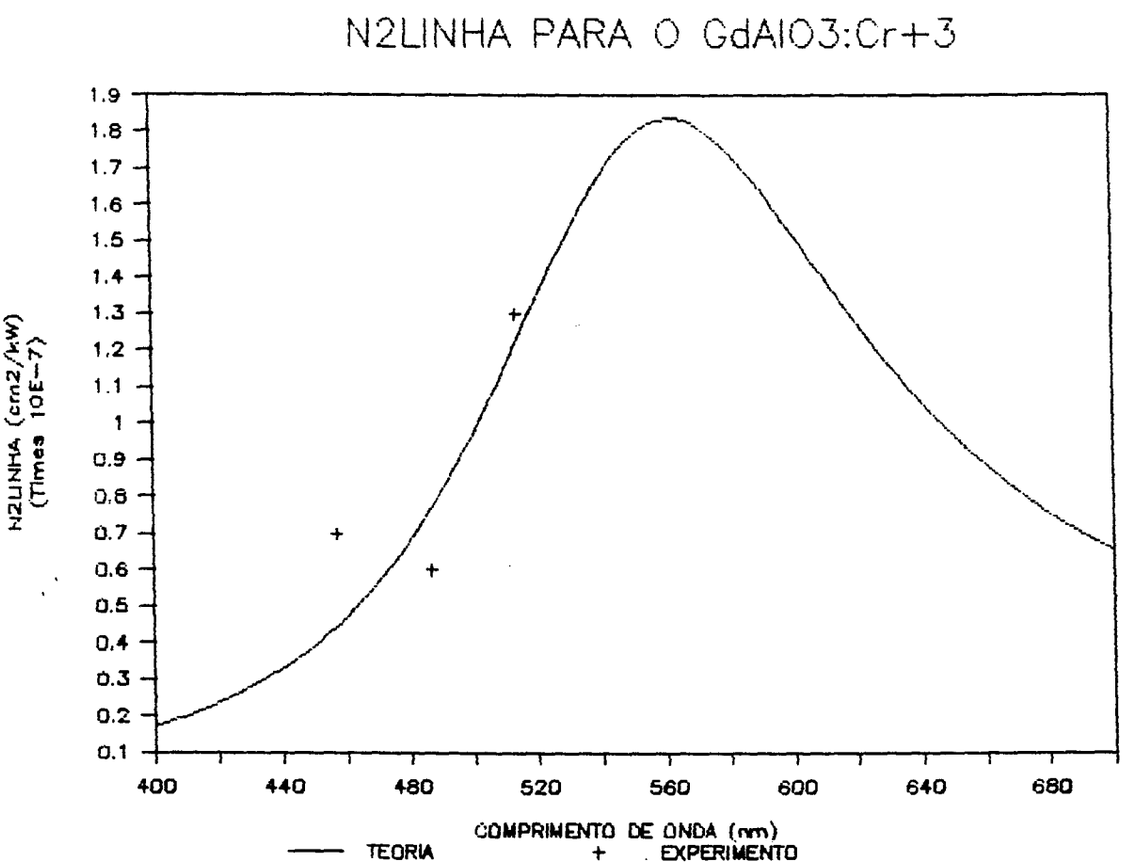


Fig. 5.12 *n_2' para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ na região do espectro visível. Os pontos experimentais foram obtidos da tabela 5.4. A teoria é dada pela Eq. (2.11) usando os seguintes parâmetros: I_s dado pela Eq. (2.12a), $n_0 = 5.61*10^{19}$, ω_e=40000 cm^{-1}, $\gamma_e = 5000\ cm^{-1}$, $\omega_0 = 18000\ cm^{-1}$ e $\gamma_g = 5000\ cm^{-1}$.*

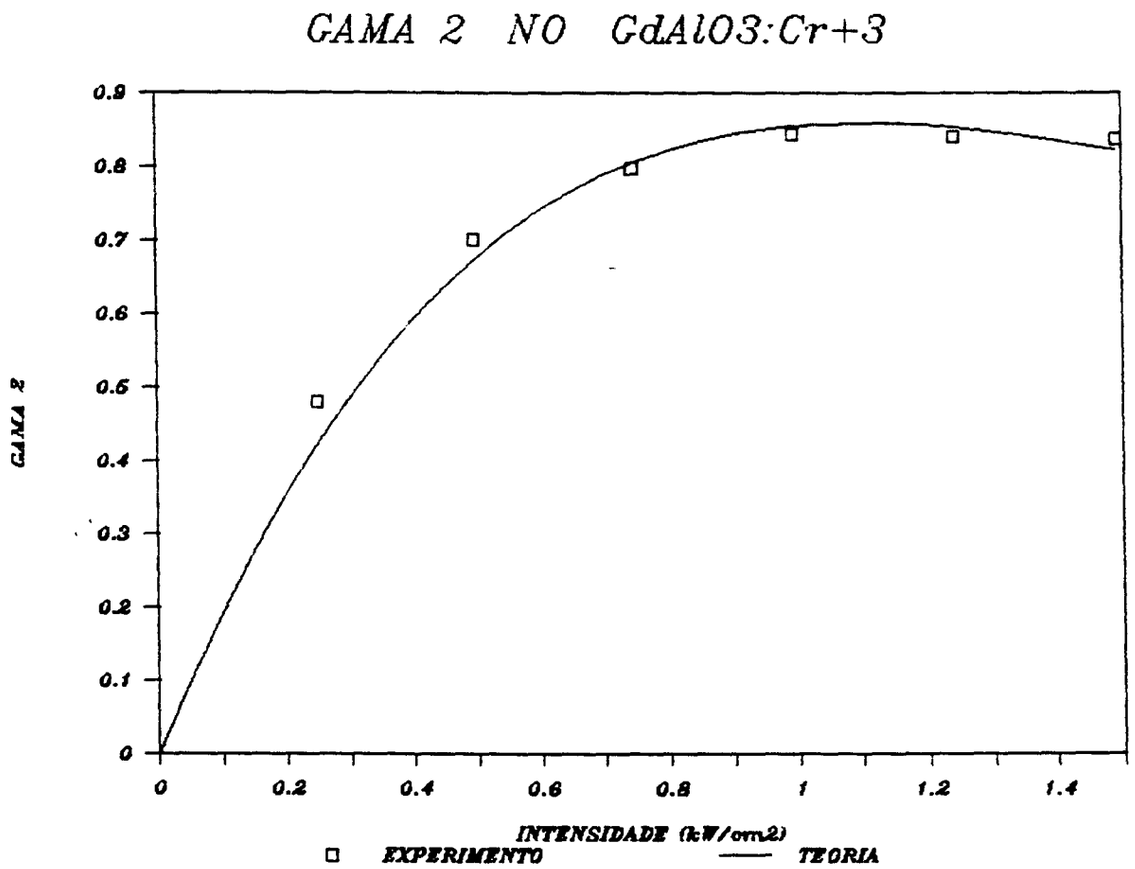


Fig. 5.13 Γ_2 no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ com $n_2'=6\#10^{-6}$ cm^2/kW e $I_S=2.4$ kW/cm^2 e frequência da rampa de 11 hz , usando a Eq. (3.40).

6-CONCLUSÕES

A técnica de MDO se mostrou adequada para a obtenção dos parâmetros n_2', I_s e τ, conforme foi verificado com o Rubi, onde os obtivemos com boa concordância com os valores já conhecidos na literatura [9,10]. A aplicação da MDO pode ser extendida a materiais fotorrefrativos e outros meios não lineares cujos tempos de resposta sejam compatíveis com a frequência de oscilação do PZT. Esta limitação restringe a utilização da MDO a meios com tempos de resposta da ordem de ms.

A MDO transiente também foi testada com o Rubi, medindo a fase em 514.5 nm, que deveria ser de 0.03. Na Tabela 5.2 verificamos que o valor obtido está em bom acordo, se considerarmos o erro da técnica na medida de fases pequenas. É importante ressaltar que o valor da fase na MDO transiente é extremamente dependente do alinhamento do sistema, podendo apresentar erro de até 0.1 na medida de uma mesma fase. Por isso, foi necessário realizar várias medidas para uma mesma intensidade e depois tomar um valor médio.

Quanto aos resultados obtidos para o $GdAlO_3:Cr^{+3}$ algumas considerações devem ser feitas. Os parâmetros já conhecidos para este cristal são bastante limitados, dificultando a avaliação dos resultados aqui obtidos. A falta de dados em relação a n_2' já chegou provocar uma controvérsia em relação à importância relativa das grades dispersiva (devida a n_2') e a absortiva (devida a n_2'') [22,23,29.,30]. Na literatura conhecemos os valores de n_2', I_s, τ e r apenas em 514.5 nm [29,30]. Neste trabalho os obtivemos em 488 e 458 nm, conforme indicado na Tabela 5.4. Os valores de n_2', I_s e τ estão de acordo com o resultado esperado.

Observamos, por exemplo, que o ganho no $GdAlO_3:Cr^{+3}$ é maior em 514 nm, o que significa que a eficiência no processo de transferência de energia entre o feixe fraco e o feixe forte é menor em 488 nm. Isso já era esperado pelo modelo de sistema de três níveis (ver Fig. 5.12). Ou seja, devemos esperar que a transferência de energia do feixe forte para o fraco se torne mais eficiente à medida em que nos aproximamos do centro da banda $^4T_2$.. Em 458 nm, há uma pequena discrepância no valor de n_2' quando comparado com o previsto na Fig. 5.12 . Mas isso se deve ao fato de que para este comprimento de onda devemos levar em conta os efeitos da banda de absorção $^4T_1$. Quanto às intensidades de saturação, temos tanto em 488 como em 514 nm os resultados estão de acordo com o espectro de absorção do $GdAlO_3:Cr^{+3}$ (Fig. 5.9).

Porém, no que diz respeito a r ocorrem várias discrepâncias quando comparamos os resultados obtidos por MDO (Tabela 5.4), MDO transiente (Eqs. (5.1) e (5.2)) e o valor de r esperado segundo a teoria de interação de pares de Cr. O único resultado comum é a verificação da dependência funcional de r com a intensidade. Porém, as diferenças ocorrem no valor numérico dessa dependência. O que podemos dizer é que a MDO transiente apresenta uma variação de r com I muito maior do que a observada na MDO e a obtida pela teoria de interação de pares de Cr. Por exemplo, a fase para I=0 kW/cm^2 em 514 nm é aproximadamente o dobro (.25) da obtida por MDO, que deve ser de ~.13. De forma similar, o fator dependente da intensidade é seis vezes maior que o previsto teoricamente. Em 488 nm o valor de r_0 obtido por MDO transiente é superior ao de MDO e o fator dependente da intensidade é pelo menos três vezes maior que o esperado. Apenas os efeitos de saturação da fase (devido à saturação da população do estado excitado ^2E) puderam ser corretamente observados, já que o ajuste das curvas das Figs. 10b e 10c

forneceu as mesmas intensidades de saturação da MDO.

O motivo para ocorrerem estas diferenças ainda não é conhecido, sendo objeto de estudos futuros. Porém, algumas hipóteses podem ser feitas. Em primeiro lugar, devemos lembrar que o valor de r obtido por MDO é conseguido através do ajuste da curva de ganho Γ_1, que depende de quatro termos (n_2', r, I_S e τ). Ou seja, obtemos r de uma forma indireta e que dá margem a alguns erros. Como exemplo, podemos citar a dependência de r com o valor da intensidade $I_0^-(0,L)$ na Eq. (3.39). Este parâmetro é de difícil determinação, já que apresenta oscilações durante a medida e altera sensivelmente a simetria da curva de ganho Γ_1, afetando diretamente o valor de r. Já na MDO transiente a medida de r é feita da forma direta, sendo por isso, menos sujeita a erros. Porém, o processo de obtenção da fase é muito dependente do alinhamento do sistema. De qualquer forma, acreditamos que os resultados obtidos por MDO transiente são mais corretos, devido justamente ao fato de ser uma técnica simples de efetuar experimentalmente e por fornecer a fase sem a necessidade de efetuar ajustes de curvas.

Em relação ao aspecto teórico, devemos lembrar que a MDO supõe a utilização de meios opticamente finos, o que não ocorre na amostra de $GdAlO_3:Cr^{+3}$. Também temos outro fator, até o momento não levado em conta, que é a presença de um feixe difratado, mesmo em baixas intensidades. No caso da teoria de interação de pares, alguns pontos são importantes. O fator multiplicativo de $I/(1+I/I_S)$ na Eq. (2.18) que prevê a dependência de r com I é função de quatro parâmetros determinados experimentalmente: σ_g, N_0, $F(\nu)$ e I_S, cuja obtenção é feita de forma indireta. Além disso, o termo σ_e/σ_g não pode ser determinado exatamente, podendo assumir valores até 0.5 [42] (em 514 nm usamos σ_e/σ_g=0.2).

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. Y.R. Shen - Review of Modern Physics Vol. 48,1, January (1976).

2. R.A. Fisher - "Optical Phase Conjugation" , ed. Academic Press (1983).

3. Y.R. Shen - "The Principles of Nonlinear Optics", ed. John Wiley & Sons, Inc. (1984).

4. O. Svelto - Progress in Optics , Vol. XII , ed. E. Wolf, North-Holand Publishing Co.(1974).

5. S.A. Akhmanov, R.V. Khokhlov, A.P. Sukhorukov - Laser Handbook, Vol. 2, eds. F.T. Arecchi and E. O. Schulz-Dubois (1972) cap. E3.

6. S.A. Akhmanov, A.P. Sukhorukov and R.V. Khoklov - Soviet Physics Uspekhi, March-April (1968).

7. Encyclopedia of Physical Science and Technology Vol.9, Academic Press, London (1987) 103.

8. A. Yariv and P.Yeh - "Optical Waves in Crystals" , New York Wiley (1984).

9. I. McMichael, P. Yeh and A. Beckwith - Opt. Lett. **13**, 500 (1988).

10. S.A. Boothroyd, Chrostowaki and M.S. O'Sullivan - J. Opt. Soc. Am. **B6**, 766 (1989).

11. P. Yeh - J. Opt. Soc. Am. **B3**, 747 (1986)

12. Y. Silberberg and I. Bar-Joseph - J. Opt. Soc. Am. **B1**,662 (1984).

13. H.J. Eichler, P. Gunter, D.W. Pohl - "Laser Induced Dynamic Gratings", ed. Springer-Verloag, Vol. 50 (1986).

14. T. Kushida - Journal of the Physical Society of Japan **27**, 1331 (1966).

15. T.N.C. Venkatesan and S.I. McCall - Appl. Phys. Lett. **30**, 1282 (1975).

16 C.L. Adler and N.M. Lawandy - Opt. Comm. **81**, 33 (1991).

17 A. Yariv - "Quantum Electronics", 2nd Edition John Wiley & Sons.

18. R.C. Ohlmann, R. Mazelzsky and J. Murphy - "High Energy Cristalline Laser Materials", Technical Report of Westinghouse Labs, dez (1967).

19. M. Altarelli and D.L. Dexter - Opt. Comm. 2,36 (1970).

20. D. Staebler and J. Amodei - J. Appl. Phys. 43, 1042 (1972).

21. M.A. Kramer, W.R. Tomkin and R.W. Boyd - "Phys. Rev. A34, 2026 (1986).

22. J.C. Penaforte, E.A. Gouveia and S.C. Zilio - Opt. Lett. 15, 452 (1991).

23. S.C. Zilio, J.C. Penaforte, E.A. Gouveia and M.J.V. Bell - Opt. Comm. 86, 81 (1991).

24. P. Gunter and J.P. Huinard, eds., "Photorefractive Materials and their applications I", vol. 61 of Topics in Applied Physics, Springer-Verlarg, Berlin (1988).

25. Vinetskii V.L; Kuhtarev N.V; Odulov S.G; Soskin M.S; Sov. Phys. Usp 22, 742 (1979).

26. S.A. Boothroyd, J. Chrostowski and M.S. O'Sullivan - Opt. Lett. 14,946 (1989).

27. H.L. Fragnito, S.F. Pereira and A. Kiel - J.Opt. Soc. Am. B4, 1309 (1987).

28. S.A. Tonissi Jr., F.M.M. Yasuoka, L.A.O. Nunes e J.C. Castro - Rev. Fís. Aplic. e Instrum., 5, 412 (1990).

29. T. Catunda, J.C. Castro - Opt. Comm. 63, 185 (1987).

30. T. Catunda, J.P. Andreeta and J.C. Castro - Appl. Opt. 25, 2391 (1986).

31. H.C. Basso - Tese de Doutoramento IFQSC/USP São Carlos (1980) "Propriedades Ópticas dos íons isolados e dos pares de Cr^{+3} em $GdAlO_3$".

32. J.L. Duarte - Tese de Doutoramento IFQSC/USP São Carlos (1990) "Transferência de energia induzida por luz entre o Cr^{+3} e o Gd^{+3} no $GdAlO_3:Cr^{+3}$".

33. Encyclopedia of Physical Science and Technology, Vol. 7, Academic Press (1987)210.

34. H.J. Eichler, J. Eichler, J. Knof and C.H. Noak - Phys. Stat. Sol. A52, 481 (1979).

35. D.C. Cronemeyer - J. Opt. Soc. Am. 56, 1703 (1966).

36. T. Kushida - J. Phys. Soc. of Japan 21, 1331 (1966).

37. R.C. Powell, B. Dibartolo - Phys. Stat. Sol. **A10**, 315 (1972).

38. K. O. Hill - Appl. Opt. **10**, 1695 (1971).

39. H. Zhou, X. Mi, A. Jiang, R. Zhang and P. Yeh - Opt. Comm. **78**, 382 (1990).

40. H. Kogelnik - The Bell System Technical Journal **48**, 2909 (1969).

41. R.M. Hazen , Scientific American, June 52 (1988).

42. E. Gouveia - Tese de Doutoramento IFQSC/USP (1992) "Mistura de Ondas em meio Kerr e bi-estabilidade óptica em filmes".