UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS

Conjugação de Fase e Modulação Transver
sal de Fase em Cristais Dopados com Cr^{+3}

Tomaz Catunda

Tese apresentada ao Instituto
de Física e Química de São
Carlos, para obtenção do
título de Doutor em Ciências
"Física Básica"

Orientador: Prof.Dr.Jarbas Caiado de Castro Neto

São Carlos - São Paulo

1989

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE _____
Tomaz Catunda _____ APRESENTADA AO INSTITUTO DE
FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO,
EM 18 DE agosto DE 1989

Comissão Julgadora:

Prof. Dr. Jarbas Caiado de Castro Neto (orientador)

Prof. Dr. Cid B. de Araujo

Prof. Dr. Artemio Scalabrin

Prof. Dr. Carlos Henrique de Brito Cruz

Prof. Dr. Luiz Nunes de Oliveira

a minha filha

Victoria

e aos meus pais

Paulo e Cecília

Agradecimentos

Ao Jarbas pelo apoio e incentivo sempre presentes.

Ao Prof. Milton Ferreira de Souza pelo estímulo durante a graduação.

Aos colegas Adriano Causian, Luiz A. Cury e Luiz A. Oliveira Nunes que participaram diretamente neste trabalho.

Ao Dr. M. Hering (TH Ilmenan, RDA) e Jorge Hönel pela ajuda na parte computacional.

Ao colega Tabosa pelas discussões sobre Conjugação de Fase que muito contribuíram para este trabalho.

Aos varios amigos, colegas nos cursos de graduação, pos-graduação, e do laboratório pela amizade e colaboração.

Aos professores do Grupo de Ótica (Jarbas, Máximo, Zílio, Luis e Vanderley) e ao Lidério pelo apoio e discussões científicas.

Aos professores do Departamento de Física pela minha formação científica.

A Rosana, Isabel e ao Tuta pelos serviços de secretaria.

Ao Sr. Domingos, ao Gilberto e Paulinho pelo auxílio técnico no laboratório.

Ao Silvío e ao Ricardo pelo sistema de aquisição de dados e apoio na parte eletrônica e computacional.

Aos técnicos da Oficina de Ótica e da Oficina Mecânica pela eficiência, boa vontade e presteza com que sempre me atenderam.

Ao Samuel e ao Carlos pelas figuras deste trabalho.

A Nêuri pela digitação caprichosa desta tese.

A todos os funcionários do Instituto e do Departamento por proporcionarem uma excelente infraestrutura e ambiente de trabalho.

A FAPESP, CNPq, FINEP e USP pelo apoio financeiro.

Resumo

Neste trabalho estudamos teórica e experimentalmente o efeito de Conjugação de Fase por Mistura Degenrada de Quatro Ondas (CFMD40) e Modulação Transversal de Fase em cristais dopados com Cr^{+3} . Estudamos a CFMD40 em $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$ (rubi) e $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ com um laser de Ar (em $\lambda = 514 \text{ nm}$) obtendo um bom acordo entre os resultados experimentais e os teóricos (nestes cálculos usamos os valores de n_2 de um trabalho anterior [1]). O modelo teórico que fizemos explica muito bem o comportamento de saturação da eficiência da CFMD40 que não era compreendido em trabalhos anteriores [47,48,2]. Usando os mesmos valores de n_2 obtivemos um bom acordo entre os resultados experimentais e teóricos para o efeito de Modulação Transversal de Fase. Também fizemos um modelo teórico para o efeito de Modulação Transversal de Fase em CFMD40 que explica nossas observações [2]. A não linearidade destes materiais foi investigada usando-se três técnicas experimentais diferentes [1,2] e por dois outros grupos [61,62] (para o rubi) através de mistura de duas ondas não degeneradas. Todas estas medidas estão em bom acordo.

Na alexandrita ($\text{BeAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{+3}$) estudamos o espectro de $\chi^{(3)}$ (ou n_2) em ressonância das linhas R. Nos atribuímos a forma assimétrica do espectro como sendo oriunda de duas contribuições para susceptibilidade, onde um termo é devido a interação ressonante com o sistema de dois níveis e o outro devido a mudança de polarizabilidade causada pela população do estado excitado (esta é a primeira vez que este efeito foi observado).

Abstract

In this work we studied theoretical and experimentally the effects of Phase Conjugation by Degenerate Four Wave Mixing and Transversal Phase (PCD4WM) Modulation in Cr^{+3} doped crystals. We studied the PDC4WM in $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (ruby) and $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ with an Ar laser (at $\lambda = 514 \text{ nm}$) and obtained a good agreement between our experimental and theoretical results (in these calculations we used the nonlinear refractive index n_2 values from a previous paper [1]). The theoretical model that we developed explains very well the saturation behaviour of the PDC4WM efficiency that was not understood in previous papers [47,48,2]. These values of n_2 are also in good agreement with our results in Transverse Phase Modulation. We also developed a theoretical model for the effect of Transverse Phase Modulation in PCDFWM that explains our observations [2]. The nonlinearity n_2 from these materials was investigated by us using three different techniques [1,2], by other two groups [61,62] (for the ruby) in nondegenerate two-wave mixing and all those measurements are in good agreement.

In alexandrite ($\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$) we studied the $\chi^{(3)}$ (or n_2) spectrum in resonance with the R lines. We attributed the asymmetric shape of the spectrum by the effect of two different contributions, one term due to the resonant interaction of the two-level system and the other due to the polarizability change caused by excited state population (this is the first observation of this kind of effect).

Índice

Cap. I. Introdução	1
Cap. II. Conceitos Básicos de Ótica não-linear relevantes para este trabalho	5
2.1. O que é Conjugação de Fase	5
2.2. Holografia	9
2.3. Redes Dinâmicas induzidas por Laser e CFMD40	14
2.4. Conjugação de Fase por Espalhamento Brillouin Estimulado	17
2.5. Autofocalização e Autodefocalização	17
2.6. Automodulação de Fase	21
2.7. Bibliografia sobre Conjugação de Fase	25
Cap. III. Ótica não-linear e CFMD40	26
3.1. Noções de Ótica não-linear	26
3.1.1. Introdução	26
3.1.2. Termos de 2ª ordem (Mistura de 3 Ondas)	29
3.1.3. Termos de 3ª ordem (Mistura de 4 Ondas)	33
3.2. Equação de Onda no Meio não-linear	36
3.3. Exemplos de alguns processos de Mistura de Ondas	40
3.3.1. Geração de 2º harmônico	41
3.3.2. Conjugação de Fase por Mistura Quase Degenerada de 4 Ondas (CFMD40)	41
3.3.3. Redes Induzidas por Lasers	42
3.4. Teoria Básica da CFMD40	46
3.5. CFMD40 em meio do tipo Kerr com absorção linear	54
3.6. CFMD40 em Sistema de Dois Níveis	57
Cap. IV. Cristais dopados com Cr^{+3} e CFMD40	70

4.1. Características Espectroscópicas de cristais dopados com Cr^{+3}	70
4.2. Cálculo da concentração (ou seção de choque) do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$	74
4.3. Efeito não-linear (variação de índice de refração) em cristais dopados com Cr^{+3} e Nd^{+3}	78
4.4. Experiências de redes induzidas por lasers e CFMD40 em cristais dopados com Cr^{+3}	84
Cap. V. CFMD40 em Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$	88
5.1. CFMD40 no regime de baixa intensidade	88
5.2. Modelo teórico para CFMD40 em meio com n_2 saturável	97
5.3. Efeitos de saturação na CFMD40 em Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$	102
Cap. VI. Espectro de $\chi^{(3)}$ das linhas da Alexandrita	110
Cap. VII. Automodulação Transversal de Fase em Cristais de Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$	119
7.1. Propagação de Feixes Gaussianos	119
7.2. Integral de Difração de Kirchhoff	121
7.3. Automodulação Transversal de Fase	124
7.4. Modulação Transversal de fase em Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$	134
7.4.1. Teoria	134
7.4.2. Resultados Experimentais	144
Cap. VIII. Efeitos Transversos em CFMD40	154
8.1. Motivação	154
8.2. Efeito de Modulação Transversal de Fase na CFMD40 pelo modelo de YARIV e PEPPER	156
8.3. MTF - CFMD40 em Meios com Absorção Linear	164

Cap. IX. Discussão dos Resultados e Conclusão	169
Apêndice A	173
Apêndice B	175
Apêndice C	183
Referências Bibliográficas	185

I. Introdução

Neste trabalho estudamos efeitos de ótica não-linear associados a mudança de índice de refração com a intensidade da luz em cristais dopados com $\text{Cr}^{+3} : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (rubí), $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ e $\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$ (alexandrita). Estudamos os efeitos de redes induzidas por laser, Conjugação de Fase por Mistura Degenerada de Quatro Ondas (CFMD40), Modulação Transversal de Fase e o efeito da Modulação Transversal de Fase em CFMD40. Esta parte da ótica não-linear tem sido extensivamente estudada nos últimos dez anos devido a enorme potencialidade destes efeitos, principalmente a CFMD40 e a Biestabilidade Ótica, em ciência aplicada (ótica adaptativa, computação ótica, chaveamento ultra-rápido, etc) e ciência pura (sistemas não lineares, caos, "squeezed-states", espectroscopia não-linear, etc). Têm sido estudados diversos meios tais como gases, sólidos, líquidos, aerossóis, plasmas, com diversos tipos de lasers cobrindo a região espectral do ultra violeta até o infra-vermelho ($\sim 10 \mu\text{m}$). No Capítulo II fazemos uma discussão qualitativa de alguns termos cuja compreensão é necessária para leitura deste trabalho: ótica não-linear, redes induzidas por laser, CFMD40 e automodulação de fase. No Capítulo III mostramos através do formalismo da ótica não-linear como, a partir de um determinado termo da polarização não-linear, calcularmos a amplitude do campo gerado num processo de mistura de ondas. Este procedimento teórico será então usado no cálculo dos modelos teóricos tradicionais de CFMD40 no Capítulo III e de novos modelos que fizemos neste trabalho (Capítulo V e Capítulo VIII).

O estudo destes efeitos não-lineares em cristais dopados com Cr^{+3} (e também para qualquer meio ativo laser) é muito importante para a compreensão de sua ação laser devido aos efeitos de "hole burning", distorções da frente de onda do laser devido ao índice de refração não-linear e o aparecimento de um deslocamento da frequência ("frequency shift") durante o pulso de laser curto (lasers com chaveamento Q-Q switch) [11]. O efeito de "hole burning" espacial é o aparecimento de uma modulação de

ganho e índice de refração provocada pela modulação de intensidade da luz, que é produzida pela onda estacionária da cavidade no meio ativo do laser. Os efeitos de deslocamento de frequência, alargamento do pulso e aparecimento de uma estrutura estocástica em seu espectro ocorrem devido a uma variação muito rápida da fase da frente de onda provocada pela variação do índice de refração do meio (que é o efeito de automodulação de fase), ou seja, estes efeitos também estão associados ao "hole burning". A primeira experiência sobre redes induzidas por lasers [3] foi feita em 1968 no rubi com o intuito de demonstrar experimentalmente o efeito de "hole burning". Depois deste trabalho diversos tipos de experiência tem sido feitos em mais de dez tipos diferentes de cristais com Cr^{+3} e também Nd^{+3} , Ti^{+3} e Eu^{+3} . Desde o primeiro trabalho [3] no rubi já era sabido que o efeito não-linear ocorre devido a uma mudança de suscetibilidade complexa do meio provocada pela população do estado excitado metaestável do Cr^{+3} [44-57], Nd^{+3} [48,51,59], Ti^{+3} [58] e Eu^{+3} [65]. Entretanto havia uma controvérsia sobre a origem, dispersiva ou absorptiva, que só foi esclarecida recentemente com a medida do índice de refração não-linear n_2 do rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ [1,57]. Neste trabalho mostramos que o valor da não-linearidade dispersiva é dez vezes maior que o da absorptiva, que estão associadas as partes real e imaginária, respectivamente, de n_2 . No Capítulo IV nesta tese discutimos o efeito não-linear em cristais com Cr^{+3} e fazemos um resumo da literatura sobre este assunto.

No Capítulo V discutimos o efeito de CFMD40 em rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$. Na seção V.1 descrevemos as medidas da eficiência da CFMD40 nestes materiais (no regime de baixa intensidade) onde obtivemos um bom acordo entre os resultados experimentais e teóricos calculados a partir dos valores de n_2 previamente medidos [1]. Esta parte desta tese (seção 5.1) já foi publicada [2], entretanto, um ponto importante que são os efeitos de saturação na CFMD40 nestes materiais não foram bem compreendidos. Nós achávamos que estes efeitos de saturação estavam associados a efeitos transversos (formação de anéis e aberrações que apareciam no feixe

conjugado) o que não é verdade. Na seção 5.2 desenvolvemos um modelo teórico para meios com n_2 saturável, ou seja, $n_2 \propto (1 + I/I_s)^{-1}$, que explica muito bem (na seção 5.3) a curva experimental de LIAO e BLOOM^[47] para o rubi e nosso resultado para o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$.

Embora diversos materiais com Cr^{+3} tenham sido estudados recentemente na literatura apenas uma vez ^[46] o efeito não-linear foi utilizado o laser em ressonância com uma linha estreita (a linha R do rubi). Entretanto, neste trabalho ^[46] a origem do efeito não-linear não foi bem compreendida o que nos motivou a estudar este problema usando uma outra técnica experimental e outro material. Escolhemos para este estudo, que descrevemos no Capítulo VI, o cristal de alexandrita ($\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$) que é semelhante ao rubi porém tem uma seção de choque na linha R que é sete vezes maior que a do rubi (o que resulta numa não-linearidade maior devido a intensidade de saturação menor). Observamos o espectro de $\chi^{(3)}$ através de uma experiência de auto-difração onde usamos um laser de corante pulsado, de alta potência e sintonizável na região das duas linhas R da alexandrita ($\lambda \sim 680 \text{ nm}$). Observamos um espectro assimétrico em relação ao centro da linha que explicamos como sendo resultado da interferência de dois termos da suscetibilidade não-linear (não é de nosso conhecimento que este efeito já tenha sido previamente abordado na literatura).

No Capítulo VII estudamos o efeito do aparecimento de anéis e aberrações, ou seja, variação do padrão de intensidade do feixe do laser no campo distante após sua propagação no cristal não-linear. Estes efeitos podem ser calculados se conhecemos a forma da modulação de índice de refração (transversal a direção de propagação) que ocorre no meio não-linear e é equivalente a uma modulação de fase, por isso o efeito é chamado de Modulação Transversal de Fase. Através deste estudo pudemos entender qualitativamente o aparecimento destes efeitos transversos que observamos na CFDM40. Existe uma modulação de índice de refração que não muda o perfil de intensidade dentro do cristal (supondo que o cristal é muito fino

para que ocorra autofocalização) por isso não altera o valor da eficiência da CFMD40 mudando apenas o padrão de intensidade do feixe no campo distante.

No Capítulo VIII desenvolvemos o modelo teórico para tratar este efeito de Modulação Transversal de Fase na CFMD40 que não havia sido investigado na literatura mas, ao nosso ver, é muito importante, pois pode introduzir distorções no campo conjugado destruindo a sua característica peculiar de ser livre de aberrações, etc. O cálculo da forma do feixe conjugado é feito de uma maneira bastante simples (tal como no Capítulo VII através da integral de difração de Kirchhoff) e o método pode ser empregado para vários tipos de modelos teóricos usados e na CFMD40 (meio tipo Kerr, sistema de dois níveis, etc) e para outros processos de Ótica não linear.

II. Conceitos Básicos de Ótica não-linear relevantes para este trabalho

2.1. O que é conjugação de Fase ?

Consideremos uma frente de onda qualquer que se propaga no sentido positivo do eixo Z

$$\vec{E}_p(r,t) = \text{Re } \vec{F}(\vec{r}) e^{i(\omega t - kz)} \quad (2.1)$$

a frente de onda é dada por sua amplitude $\vec{F}(\vec{r})$ que pode levar em conta imperfeições e distorções que ocorrem quando um feixe de laser se propaga num meio qualquer, como por exemplo um vidro defeituoso. Como $\vec{F}(\vec{r})$ é uma função complexa podemos escrever $\vec{F}(\vec{r}) = \vec{\epsilon}_p(\vec{r}) e^{i\varphi(\vec{r})}$, onde $\vec{\epsilon}_p(\vec{r})$ e $\varphi(\vec{r})$ são reais logo (2.1) fica

$$\vec{E}_p(\vec{r},t) = \vec{\epsilon}_p(\vec{r}) \text{Re} \left[e^{i(\omega t - kz + \varphi(\vec{r}))} \right] \quad (2.2)$$

Define-se o campo conjugado $\vec{E}_c(\vec{r},t)$ como sendo o complexo conjugado da parte espacial do campo $\vec{E}_p(\vec{r},t)$, ou seja:

$$\vec{E}_c(r,t) = \vec{\epsilon}_c(\vec{r}) \text{Re} \left[e^{i(\omega t + kz + \varphi(\vec{r}))} \right] \quad (2.3)$$

$\vec{E}_c(\vec{r},t)$ se propaga no sentido contrario de $\vec{E}_p(\vec{r},t)$ mas a forma da frente onda $\vec{E}_c$ é a mesma ponto a ponto pois $\vec{\epsilon}_c(\vec{r}) = \vec{\epsilon}_p^*(\vec{r})$. Podemos notar também que

$$\vec{E}_c(r,t) = \vec{\epsilon}_c(\vec{r}) \text{Re} \left[e^{i(\omega(-t) + kz + \varphi(\vec{r}))} \right]$$

ou seja $\vec{E}_c$ é igual ao complexo conjugado da parte temporal de $\vec{E}_p(\vec{r},t)$ o que equivale a trocar o sinal $t \rightarrow -t$, por isto o efeito também é chamado de Reversão Temporal. Numa experiência de Conjugação de Fase temos um campo incidente $\vec{E}_p(\vec{r},t)$ e o campo refletido é proporcional ao campo conjugado $\vec{E}_c(\vec{r},t)$, ou seja, dependendo do meio não linear, da intensidade e

do processo através do qual a conjugação é obtida haverá amplificação ou atenuação do campo $\vec{E}_p(\vec{r},t)$.

A Figura 2.1 compara a reflexão de um espelho convencional com a reflexão de um espelho de Conjugação de Fase (ECF). No ECF o feixe volta na mesma direção e a mesma divergência do feixe incidente.

Figura 2.1. As propriedades de um Espelho de Conjugação de Fase (ECF) são comparadas com as de um espelho convencional. Para o mesmo feixe iluminando ambos os espelhos vemos que o feixe é meramente refletido pelo espelho convencional. O ECF redireciona o feixe divergente em um convergente, de maneira que a "reversão temporal" seja feita independentemente do ângulo de incidência. (Esta figura foi copiada da referência [6]).

Para ilustrar melhor suas propriedades vamos comparar o ECF com um espelho comum. Na Figura 2.2a temos um campo incidente que se propaga na direção $\vec{k}$ e é refletido por um espelho comum na direção $\vec{k}'$, temos:

$$\vec{k}_{\parallel} = \vec{k}'_{\parallel} \quad (\text{componente paralela ao plano do espelho})$$

$$\vec{k}_{\perp} = -\vec{k}'_{\perp} \quad (\text{componente perpendicular ao plano do espelho})$$

A Figura 2.2b mostra o que acontece quando este mesmo campo é refletido por um ECF. Neste caso temos $\vec{k}' = -\vec{k}$ (válido para as duas componentes $k'_{\perp}$ e $k'_{\parallel}$) qualquer que seja o ângulo de incidência. A Figura 2.2c e d) ilustra novamente a diferença quando temos uma onda plana que passa por um bastão de vidro. Vê-se que a distorção de fase em (2) é compensada em (4) para o ECF enquanto que no espelho comum a distorção original de (2) é duplicada em (4).

Mostraremos agora uma aplicação prática do ECF para um sistema de fusão a laser, o objetivo do processo é focalizar precisamente um laser num alvo onde ocorrerá a fusão. Na Figura 2.3a o alvo é iluminado por um pulso de laser, uma pequena parte da luz refletida passa por uma lente que colima o feixe para um amplificador e incide num ECF. O feixe conjugado ("refletido" pelo ECF) é novamente amplificado e atinge o alvo. Vemos que o ECF exerce um papel fundamental nesta experiência pois usando tecnologia convencional seria necessário um sistema complicado de sensores e servomecanismo para focalizar precisamente o laser. Neste exemplo o ECF é usado como Ótica Adaptativa que trata de sistemas para correções de distorções na propagação de lasers. Em cavidades ressonantes o ECF tem a interessante propriedade de manter a cavidade sempre estável independentemente de variações de seu comprimento (como acontece nas cavidades comuns).

Figura 2.2. Comparação entre o espelho de Conjugação de Fase (ECF) e um espelho convencional [31]

- a) reflexão de um feixe que incide na direção $\vec{k}$ em um espelho convencional;
- b) para a reflexão em ECF temos $\vec{k}' = -\vec{k}$;
- c) a evolução de uma onda plana que é distorcida por um bastão de vidro e depois refletida por um espelho comum;
- d) o mesmo processo para um ECF. Vê-se que a onda incidente (1) é reconstruída em (4) (o mesmo não acontece em c).

Figura 2.3. Exemplo de Ótica Adaptativa a Fusão - o alvo é iluminado por um laser de prova de baixa potência de diâmetro grande. O objeto espalha radiação em todas as direções e parte desta radiação incide num amplificador que amplifica sua potência. O ECF cria o feixe conjugado com alta potência que é direcionado no objeto alvo. Como o efeito é coerente para o caso de um sistema com N amplificadores - ECF a potência do feixe é proporcional a N^2 . (A figura foi copiada da referência [6]).

2.2. Holografia

Discutiremos rapidamente os princípios básicos da Holografia, devido sua semelhança com o processo de CFM40, seguindo a apresentação feita por YARIV [15].

O esquema básico da holografia está mostrado na Figura 2.4. Uma frente de onda plano-paralela de um laser ilumina um objeto (cuja imagem será reconstruída através do holograma) e um espelho plano. O feixe refletido pelo espelho e a luz espalhada pelo objeto na direção do meio fotosensível são o feixe de referência $\vec{E}_r(\vec{r}, t)$ e feixe objeto $\vec{E}_0(\vec{r}, t)$. Consideremos o que acontece quando os dois feixes incidem no meio.

Figura 2.4. O Esquema Básico da Holografia

- a) os feixes de referência E_r e objeto E_o interferem no meio fotosensível gravando o holograma;
- b) o Holograma é lido pelo feixe E_r reconstruindo a imagem do objeto. O observador vê a imagem virtual do objeto. (A figura foi copiada da referência [15]).

$$E_0(\vec{r}, t) = \epsilon_0 e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})}$$

$$E_r(\vec{r}, t) = \epsilon_r e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \quad (2.4)$$

com $|k_1| = |k_2| = \frac{n_0 2\pi}{\lambda}$

onde n_0 é o índice de refração do meio e λ o comprimento de onda de luz no vácuo.

$$\vec{k}_1 = k \left(\sin(\theta/2) \hat{i} + \cos(\theta/2) \hat{k} \right)$$

$$\vec{k}_2 = k \left(-\sin(\theta/2) \hat{i} + \cos(\theta/2) \hat{k} \right)$$

O campo total é a soma dos dois campos, logo:

$$E(x, z) = e^{i\omega t} \left[\epsilon_0 e^{-ik(x \sin \theta/2 + z \cos \theta/2)} + \epsilon_r e^{-ik(-x \sin \theta/2 + z \cos \theta/2)} \right] \quad (2.5)$$

Se o meio fotosensível é uma emulsão fotográfica a densidade de prata depositada é proporcional a intensidade do campo, ou seja, proporcional a:

$$|E(x, z)|^2 = |\epsilon_0|^2 + |\epsilon_r|^2 + \epsilon_0 \epsilon_r^* e^{-2ikx \cos(\theta/2)} + \epsilon_0^* \epsilon_r e^{+2ikx \cos(\theta/2)} \quad (2.6)$$

Supondo por simplicidade ϵ_0 e ϵ_r reais (no caso geral há apenas um deslocamento da rede) temos:

$$|E(x, z)|^2 = \epsilon_0^2 + \epsilon_r^2 + 2 \epsilon_0 \epsilon_r \cos\left(2 \pi x / \Lambda\right) \quad (2.7a)$$

com:

$$\Lambda = \frac{2 \pi}{2 k \sin(\theta/2)} = \frac{\lambda}{2 n_0 \sin(\theta/2)} \quad (2.7b)$$

É importante observar que θ é o ângulo entre os feixes dentro do material. Se o ângulo no ar é θ_0 (onde o índice de refração é 1.0) dentro do meio de índice de refração n_0 para θ_0 pequeno temos $\theta = \theta_0/n_0$.

Para reconstrução da imagem ilumina-se o holograma com o feixe de referência $E_r(\vec{r}, t)$. A Figura 2.4b mostra este feixe incidindo na modulação (de período Λ) de índice de refração. A Figura 2.5 mostra a reflexão do feixe incidente. Para que haja interferência construtiva entre cada reflexão é preciso que a diferença de caminho ótico entre cada uma seja igual a λ (este fato é conhecido como condição de Bragg), logo na Figura 2.5 temos:

$$AO + OB = \lambda/n_0$$

mas

$$AO + OB = 2d \sin \theta$$

portanto

$$2d \sin \theta = \lambda/n_0 \quad (2.8)$$

Figura 2.5. A condição de Bragg exige que a diferença de caminho ótico $AO+OB$ seja igual a λ/n_0 .

Como Λ é dado por (2.7b) vemos que a condição de BRAGG é satisfeita somente quando o feixe que ilumina o holograma incide na direção de $E_r(\vec{r}, t)$ e o feixe difratado sai na direção de $E_0(\vec{r}, t)$. Por isto dizemos que há uma reconstrução da imagem, um observador na direção do feixe difratado vê a imagem (virtual) do objeto.

Figura 2.6. Redes Dinâmicas Induzidas por Lasers. Esta figura mostra a rede induzida pelos campos E_0^+ e E_0^- que geram uma modulação de índice de refração $\Delta \tilde{n}$ de período Δ (equação 2.7b). Na parte (a) esta rede é detetada através do feixe E_s que é gerado pela difração do feixe de prova de baixa intensidade E_p . A parte (b) mostra o processo de autodifração.

O processo análogo a CFMD40 ocorre quando o feixe de reconstrução incide na mesma direção que $E_r(\vec{r}, t)$ mas no sentido oposto (veja Figura 2.4). Este feixe é então difratado na mesma direção e com o sentido oposto ao feixe $E_0(\vec{r}, t)$, temos a reconstrução do objeto propagando-se no sentido oposto a incidência, ou seja, é o Campo Conjugado.

Figura 2.7. O processo de CFMD40

- a) E_1 e E_p geram o holograma de período d_1 que é difratado por E_2 ;
- b) E_2 e E_p geram o holograma de período d_2 que é difratado por E_1 .

(Esta figura foi copiada da referência [2.6]).

2.3. Redes Dinâmicas induzidas por Laser e CFMD40

As propriedades óticas (índice de refração e coeficiente de absorção) da matéria ficam moduladas espacialmente na região de interferência de dois feixes de luz intensos. Desta maneira redes permanentes têm sido construídas na holografia por processos fotográficos. Entretanto, há o caso das redes dinâmicas ou transientes que desaparecem depois que a fonte de luz (em geral um laser) é desligada. Estas redes têm

sido produzidas num grande número de sólidos, líquidos e gases, e são detetadas através da difração de um laser de prova (Figura 2.6a) ou pela autodifração ou seja, a difração dos próprios feixes que geraram a rede (Figura 2.6b). O processo de autodifração vai ser discutido em maiores detalhes na seção III.2.3.

A amplitude difratada na primeira ordem da rede é em primeira aproximação proporcional a amplitude da modulação do índice de refração complexo $\Delta \tilde{n} = \Delta n - i \Delta \alpha / 2$, onde Δn é a parte real da modulação $\Delta \tilde{n}$ e $\Delta \alpha$ é a modulação do coeficiente de absorção da intensidade da luz. A eficiência de difração η (definida como a razão da intensidade da luz difratada pela incidente) para a primeira de difração é dada por: [11]

$$\eta = \left| \omega \frac{\Delta \tilde{n} L}{2 c} \right|^2 = \left(\omega \frac{\Delta n L}{2 c} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \alpha L}{4} \right)^2 \quad (2.9)$$

a expressão acima é válida para baixos valores de η e baixa absorção $\alpha L \ll 1$ (L é o comprimento da amostra).

A expressão (2.9) mostra que a eficiência de difração ocorre devido a dois fatores: uma rede dispersiva (também conhecida como rede de fase) devido a Δn e uma rede absorptiva (ou rede de amplitude) devido a $\Delta \alpha$.

O esquema básico de CFMD40 está mostrado na Figura 2.8. Temos dois feixes de bombeamento contrapropagantes E_1 e E_2 (que se propagam na mesma direção mas em sentidos opostos) e um feixe de prova E_p que incidem num meio não linear. Assim como a holografia o processo é coerente pois os três feixes são oriundos do mesmo laser.

Podemos considerar os feixes E_1 e E_p incidindo no meio e gerando uma modulação cosenoidal de intensidade de luz dada por (2.7) (neste caso os campos E_1 e E_p fazem o papel de E_r e E_0 da holografia). Como no meio não linear o índice de refração complexo varia com a intensidade I da luz (em geral supõe-se $\tilde{n} = \tilde{n}_0 + n_2 I$) a modulação

de intensidade gera uma modulação de índice de refração que atua como um holograma para o feixe E_2 . A condição de Bragg impõe que E_2 seja difratado na direção de E_p se propagando no sentido oposto, ou seja, é o Campo Conjugado. De (2.7) se E_1 e E_p incidem em ângulo θ o período da modulação de índice de refração é $\Lambda_1 = \lambda / 2 n_0 \sin(\theta/2)$ (veja Figura 2.7). Analogamente podemos pensar que os campos E_2 e E_p geram o holograma (que é a modulação do índice de refração) que difrata E_1 gerando E_c . A diferença neste caso é que o ângulo entre E_2 e E_p é $\phi = 180 - \theta$, por isso o período da modulação é $\Lambda_2 = \lambda / 2 n_0 \cos(\theta/2)$ (veja Figura 2.6). Como em geral θ é pequeno temos $\Lambda_1 \gg \Lambda_2$.

Figura 2.8. Esquema básico do efeito de CFMD40.

A diferença principal entre a holografia e CFMD40 é que os dois processos ilustrados na Figura 2.7 ocorrem simultaneamente na CFMD40. Na Holografia o processo é feito em duas partes distintas, primeiro grava-se o holograma e depois a imagem é reconstruída (o holograma é lido). Na CFMD40 tudo ocorre simultaneamente e o tempo de reposta de E_c depende das características do meio (podendo variar de horas até ~ femtoseg). Por isto este processo pode ser aplicado para correção de distorções rápidas, como espelho para cavidades ressonantes, etc. (o efeito de CFMD40 também é denominado como Holografia de Tempo Real).

2.4. Conjugação de Fase por Espalhamento Brillouin Estimulado

Como nosso trabalho é sobre CFMD40 comentaremos o efeito de Espalhamento Brillouin Estimulado muito brevemente. Inicialmente podemos dizer que ambos os processos ocorrem devido a uma modulação espacial do índice de refração induzida pela luz, ou seja, ambos ocorrem em meios não lineares.

Na CFMD40 um dos feixes de bombeamento é espalhado por uma rede holográfica (induzida pelos outros dois feixes incidentes) gerando o feixe conjugado. No processo por Espalhamento Brillouin Estimulado a luz é espalhada por uma onda sonora no meio que é induzida pela própria luz. Isto ocorre num meio onde a densidade aumenta com a intensidade do campo elétrico da luz (este mecanismo é chamado eletrostricção). Acima de um certo limite de intensidade tal que as perdas de amortecimento da onda sonora sejam superadas (pois o processo precisa ser coerente), o feixe incidente é espalhado no sentido oposto de sua propagação ("back-scattered") com uma frequência diminuída pela frequência do som. Em certas condições o ganho é maior quando o feixe espalhado é o conjugado do incidente, por isto se o feixe incidente sofre uma aberração a onda acústica se modifica de tal forma que a onda espalhada é o conjugado. Ao contrário da CFMD40 neste processo a eficiência é sempre menor que um (em alguns casos se aproxima de um) por isso não há amplificação.

2.5. Autofocalização e Autodefocalização

Apresentarei uma discussão abreviada do efeito de autofocalização e autodefocalização que são efeitos onde aparece uma alteração da forma do feixe de luz devido a variação do índice de refração induzida pela luz. Considerando a propagação de um feixe gaussiano, com um perfil de intensidade $I(r) = I_0 e^{-2r^2/w^2}$, num meio não linear do tipo

Kerr o perfil de intensidade do feixe provoca uma alteração no perfil de índice de refração do meio dado por $n(r) = n_0 + n_2 I(r)$. Em primeira aproximação este perfil gaussiano de índice de refração faz com que o meio se comporte como uma lente (onde o perfil de índice de refração) é do tipo $n = n_0 - m r^2$ [15], pois $n(r) \sim n_0 + n_2 I_0 - 2n_2 I_0 r^2 / w^2$. A autofocalização ocorre com $n_2 > 0$ o que equivale a uma lente convergente ($m > 0$) e para $n_2 < 0$ ocorre a autodefocalização que equivale a uma lente divergente ($n'_2 < 0$). A grande diferença é que no caso da autofocalização e autodefocalização a distância focal da lente $f = L/2m$ [15] (onde L é o comprimento do meio e n'_2 equivale a $n_2 I_0$ no meio não linear) depende da intensidade da luz.

Para se entender o efeito de autofocalização é preciso considerar conjuntamente a difração do feixe de luz conjuntamente com o efeito da "lente" criada pelo meio não linear. Podemos pensar no meio não linear como um guia de ondas onde o índice de refração é $n_0 + n_2 I$ na região interna e n_0 na região externa (veja Figura 2.9). O feixe de luz fica preso no guia quando ocorre reflexão total. Sendo $\theta_d = 1.22 \lambda/D$ o ângulo de difração (D é diâmetro do feixe), a reflexão total ocorre quando:

$$\sin \theta' = \frac{n_0}{(n_0 + n_2 I)} \sim 1 - \frac{n_2 I}{n_0} \quad (2.10)$$

mas

$$\sin \theta' = \cos(90 - \theta_d) \approx 1 - \frac{\theta_d^2}{2} \quad (2.11)$$

igualando (2.10) e (2.11) e lembrando que $I = 4P/\pi D^2$ onde P é a potência do feixe, temos:

$$P = P_{cr} = \frac{\pi n_0 (1.22 \lambda)^2}{8 n_2} \quad (2.12)$$

onde P_{cr} é conhecido com a potência crítica para autofocalização.

Figura 2.9. O Efeito de Modulação de Fase Temporal (Espacial).

- a)** O perfil de fase $\Delta\phi(t)$ vs tempo para um pulso gaussiano (consideramos a resposta do meio como sendo instantânea);
- b)** A variação de frequência instantânea do pulso $\Delta\omega = \Delta\dot{\phi} = \frac{\partial}{\partial t} \Delta\phi$. Para dois instantes 1 e 2 temos o mesmo valor de $\Delta\omega$ porém o valor da fase é diferente. Esta figura serve para explicar também o efeito de modulação espacial de fase. Neste caso em (a) temos um perfil espacial transversal de fase $\Delta\phi(r)$ em função da posição r . Este perfil de fase gera um componente de vetor de onda transversais $k_{\perp} \propto \frac{\partial}{\partial r} \Delta\phi(r)$.

Quando $P > P_{cr}$ o efeito convergente da autofocalização é maior que o efeito divergente da difração e o feixe é focalizado (ou autofocalizado) no meio não linear. Para $P = P_{cr}$ há um balanço destas duas "forças" opostas e o feixe se propaga no meio não-linear sem alterar seu diâmetro (este processo é conhecido como autoaprisionamento ou "self-trapping" da luz). Para $P < P_{cr}$ o feixe diverge com um ângulo $\theta < \theta_d$ (onde $\theta = \theta_d$ para $P = 0$). É importante observar que a condição de autofocalização depende da potência P do feixe de luz e não de sua intensidade I . Ocorre que para um determinado valor de P ambos os fatores $n_2 I$ e θ_d são proporcionais a $1/D^2$ por isto a dependência é cancelada.

Uma teoria um pouco mais completa supõe um feixe gaussiano com amplitude ϵ dada por:

$$\epsilon(r,z) = \frac{\epsilon_0}{f^2(z)} e^{-r^2/w^2 f^2(z)} \quad (2.13a)$$

com:

$$f^2(z) = 1 - \left(\frac{P}{P_{cr}} - 1 \right) \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \quad (2.13b)$$

$$\text{e } z_0 = \frac{k w^2}{2}.$$

Para $P = 0$ (2.13) dá a propagação de um feixe gaussiano num meio linear e para $P > P_{cr}$ ocorre um aumento da amplitude do campo até seu colapso ($f(z) = 0$) em $z = z_f$, conhecido como comprimento de autofocalização:

$$z_f = \frac{z_0}{\sqrt{P/P_{cr} - 1}} \quad (2.14)$$

O caso $n_2 < 0$ temos $P_{cr} < 0$ o que provoca em (2.13) um aumento da divergência do feixe com a potência como era esperado para a autodefocalização.

2.6. Automodulação de Fase

No caso de autofocalização transiente observou-se um grande alargamento espectral da luz emitida na região do filamento da autofocalização. Com pulsos com largura de linha da ordem de nanosegundos este alargamento pode chegar a dezenas de cm^{-1} enquanto que para largura de pulsos de picosegundos este alargamento pode ser maior que milhares de cm^{-1} . Este efeito é conhecido como Automodulação de Fase e será tratado aqui através de um modelo simples [17]. Consideremos um pulso de laser $|E(t)|^2$ que se propaga num filamento auto-aprisionado ("self-trapped") de comprimento L . Supondo que a resposta não-linear é instantânea $\Delta n(t) = n_2 |E(t)|^2$, e a fase da onda dada por $\phi(t, z=L) = \omega t - knL$ aparece uma modulação de fase $\Delta \phi(t) = k \Delta n(t) L$. Sendo a frequência do campo definida por $\omega = \frac{\partial \phi}{\partial t}$, a modulação de fase $\Delta \phi$ gera uma modulação em frequência $\Delta \omega(t)$ dada por:

$$\Delta \omega(t) = \frac{\partial (\Delta \phi)}{\partial t} \quad (2.15)$$

esta modulação $\Delta \omega$ aparece como um alargamento do espectro que pode ser calculado através da transformada de Fourier:

$$|E(\omega)|^2 = \left| \int_0^\infty \varepsilon(t) e^{i(\omega_0 t + \delta \phi(t))} dt \right|^2 \quad (2.16)$$

Supondo que o pulso tem uma forma temporal gaussiana (veja Figura 2.9) então o espectro deve ter as seguintes características. Em primeiro lugar como $\Delta \phi(t)$ é simétrica o espectro de potência (2.16) deve ser simétrico em relação a frequência do laser ω_0 . Em segundo lugar, a variação de frequência máxima deve ser dada por $|\Delta \omega|_{\max} = \left| \frac{\partial \Delta \phi}{\partial t} \right|_{\max}$ que corresponde ao ponto de inflexão da curva $\Delta \phi(t)$. Em terceiro lugar,

tomando dois pontos 1 e 2 (veja Figura 2.9) com mesma frequência $\Delta \omega = \frac{\partial \Delta \phi}{\partial t}$ em geral eles têm fases diferentes ϕ_1 e ϕ_2 . Estas duas ondas de mesma frequência irão interferir construtivamente ou destrutivamente dependendo de sua diferença de fase $\phi_1 - \phi_2$. Desta maneira o espectro deve apresentar máximos e mínimos em ambos os lados ($\omega - \omega_0$ positivo ou negativo). O número de picos em cada lado do espectro é aproximadamente dado pelo menor número inteiro próximo de $\Delta \phi_{\max}/2\pi$. No entanto, para pulsos curtos o tempo de resposta do meio não linear não pode ser considerado instantâneo em relação ao tempo do pulso. Este fato provoca uma assimetria na curva $\Delta \phi(t)$ e consequentemente uma assimetria no espectro.

O efeito de Automodulação espacial de fase também é possível pois existe um perfil de fase na direção transversal a propagação do feixe $\Delta \phi(r) = k \Delta n(r) L$. Esta distorção da frente de onda origina o efeito de autofocalização quando o meio é longo. Quando o meio é curto ($L \ll Z_f, z_0$) o efeito é completamente análogo a automodulação temporal de fase. Novamente a Figura 2.9 ilustra o perfil gaussiano de fase $\Delta \phi(r)$. Se $(\Delta \phi(r))_{\max}$ é muito maior que 2π o espectro de potência do feixe $E(k_{\perp})$ (onde $k_{\perp}$ é a componente de $\vec{k}$ perpendicular a direção de propagação) apresenta máximos e mínimos que resultam de interferência construtiva e destrutiva. Este fato pode ser interpretado claramente, no limite da ótica geométrica, usando a equação que descreve a trajetória de um raio que se propaga num meio com índice de refração $n(r)$. Supondo que o raio incide no meio numa direção paralela ao eixo z (ou seja $\vec{k} = k \hat{z}$) ao abandonar o meio ele sofre um desvio angular $\theta(r)$ dado por: [18]

$$\theta(r) = \frac{1}{n_0} \int_0^L \frac{\partial}{\partial r} n(r) ds \quad (2.17)$$

ou seja, o feixe adquire uma componente de vetor de onda: $k_{\perp} \sim k \theta(r) = \frac{\partial}{\partial r} \Delta \phi(r) = k L \frac{\partial n(r)}{\partial r}$.

$$k_{\perp} \sim k \theta(r) \sim \frac{\partial}{\partial r} \Delta \phi(r) \sim k L \frac{\partial n(r)}{\partial r} \quad (2.18)$$

vemos que $k_{\perp}$ de (2.18) é completamente análoga a $\Delta \omega$ de (2.15). Temos então as mesmas características na modulação temporal de fase $\Delta \phi(t)$ mas agora com um perfil gaussiano no espaço $\Delta \phi(r)$ (veja novamente Figura 2.9). Em primeiro lugar o espectro de $k_{\perp}$ deve ser simétrico em relação a origem $k_{\perp} = 0$ (lembre que como o feixe do laser se propaga na direção z seu espectro de $k_{\perp}$ está centrado na origem). Em segundo lugar o valor máximo de $k_{\perp}$ é dado por $|k_{\perp}|_{\max} = \left| \frac{\partial}{\partial r} \Delta \phi(r) \right|_{\max} \propto |\theta(r)|_{\max}$. Em terceiro lugar (observando novamente Figura 2.9) dois feixes incidindo em posições 1 e 2 diferentes sofrem o mesmo desvio $\theta(r)$ (ou adquirem o mesmo valor de $k_{\perp}$), portanto saem paralelos e vão interferir construtivamente ou destrutivamente num plano de observação longe do meio) dependendo do valor de suas fases ϕ_1 e ϕ_2 . Novamente o número de máximos e mínimos no espectro de $|E(k_{\perp})|^2$ é $\Delta \phi(r)_{\max}/2\pi$. Uma distinção de caráter formal precisa ser feito entre os dois processos. Embora $\Delta \phi(r)$ tenha simetria cilíndrica o espaço de $k_{\perp}$ está num plano (onde há duas dimensões), o que modifica a expressão matemática para o cálculo do espectro de potência de $|E(k_{\perp})|^2$:

$$|E(k_{\perp})|^2 = \left| 2\pi \int_0^{\infty} \epsilon_0 e^{-r^2/\omega^2} e^{-i\Delta \phi(r)} r dr J_0(2\pi k_{\perp} r) \right|^2 \quad (2.19)$$

Na verdade, a medida do espectro de potência $|E(k_{\perp})|^2$ é feita medindo-se ao padrão de intensidade da luz difratada (veja Figura 2.10). O efeito de Automodulação Transversal de Fase foi mencionado na literatura para explicar o padrão de intensidade após sua passagem por um meio não linear térmico [19] (onde o perfil de índice de refração ocorre devido a variação de temperatura do meio devido ao aquecimento do laser). Mais recentemente o efeito tem sido mencionado em cristais líquidos [20] (veja Figura 2.10) e neste trabalho em cristais dopados com Cr^{+3} .

Figura 2.10. Padrão de intensidade em forma de anéis da luz de um laser de Argônio após sua passagem por filme fino de cristal líquido. A foto foi revelada com a intensidade da região central reduzida. Neste experimento foram observados até $N \sim 50$ anéis [20].

2.7. Bibliografia sobre Conjugação de Fase

Na bibliografia deste capítulo coloquei alguns artigos de revisão e livros sobre Conjugação de Fase. As referências [3] a [8] são artigos gerais escritos em nível de divulgação científica. As referências [9] a [11] são três livros publicados sobre este assunto. Eles abordam vários aspectos tais como: teoria e processos de Conjugação de Fase, experiências em diversos materiais (vapores atômicos, semicondutores, cristais fotorefrativos ...), aplicações em física básica e aplicações tecnológicas. As referências [12] e [13] são dois números de revistas especializadas em ótica dedicados especialmente ao tema de Conjugação de Fase. A referência [14] cita em ordem cronológica os trabalhos pioneiros e mais relevantes desde 1968. Os livros de YARIV [15] e SHEN [17] são os mais utilizados em Eletrônica Quântica e Ótica não-linear respectivamente.

III. Ótica não-linear e CFMD40

Neste capítulo faremos uma discussão sobre a teoria do efeito de CFMD40. Para isto iniciaremos fazendo uma breve introdução a Misturas de Ondas em Ótica não-linear. O objetivo é mostrar como se obtém o campo gerado por um processo não linear a partir de um determinado termo de interesse da polarização não linear. Em seguida discutiremos os modelos mais importantes sobre CFMD40 que são os modelos de YARIV e PEPPER [25] e o modelo de ABRAMS e LIND [31]. Uma abordagem detalhada destes modelos é fundamental para o entendimento dos cálculos feitos nos Capítulos V, VI, VII e VIII que, ao contrário do material apresentado neste capítulo, são contribuições originais deste trabalho.

3.1. Noções de Ótica não linear

3.1.1. Introdução

Na Ótica Linear é bem conhecido que as propriedades óticas da matéria variam com a frequência (ou comprimento de onda) da luz mas não com sua intensidade. Pode-se dizer que o objeto de estudo da Ótica não-linear é a variação destas propriedades com a intensidade da luz [21]. No entanto este campo de pesquisa só ganhou impulso com o aparecimento do Laser, fonte de luz coerente e com alta intensidade. As fontes clássicas de luz (fontes térmicas) usadas até então tinham intensidade muito baixa, de tal maneira que o campo elétrico da luz E era muito menor que o campo elétrico atômico E_a . No limite $E/E_a \rightarrow 0$ a suscetibilidade elétrica $\chi(E)$ é praticamente independente de E . Por isso, em geral podemos expandir $\chi(E)$ numa série de potências de E

$$\chi(E) = \chi^{(1)} + \chi^{(2)} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (3.1)$$

desta maneira a polarização induzida no material $P = \chi(\vec{E}) \cdot \vec{E}$ fica:

$$P(E) = \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (3.2)$$

Na interação da luz com a matéria considerou-se que o sistema atômico é perturbado pela interação com o campo eletromagnético da luz, por isso o parâmetro natural da expansão é E/E_a . Desta maneira podemos estimar a ordem de grandeza dos fatores em (3.1), normalizando em relação a $\chi^{(1)} = 1$ temos:

$$\chi^{(2)} E \sim \frac{E}{E_a} \therefore \chi^{(2)} \sim \frac{1}{E_a} \frac{a_0^2}{e} = 3.3 \cdot 10^{-9} \left(\frac{V}{cm} \right)^{-1} \quad (3.3)$$

a_0 = raio de Bohr

e = carga do elétron

$$\chi^{(3)} E^2 \sim \left(\frac{E}{E_a} \right)^2 \therefore \chi^{(3)} \sim \frac{1}{E_a^2} \sim 1.1 \cdot 10^{-17} \left(\frac{V}{cm} \right)^{-2} = 10^{-12} \left(\frac{\text{stat volt}}{cm} \right)^{-2} \quad (3.4)$$

Podemos comparar o valor de $\chi^{(3)}$ dado por (3.4) com o valor experimental de $\chi^{(3)} = 2.7 \times 10^{-13}$ esu. É preciso observar que em (3.4) normalizamos o valor $\chi^{(1)} = 1$, porém para o CS_2 $n_0 = 1.63$ logo $\chi^{(1)} = 0.13$ (pois $n_0^2 = 1 + 4\pi \chi^{(1)}$) e $\chi^{(3)} = 10^{-12} \chi^{(1)} = 1.3 \cdot 10^{-13}$ esu.

Compreendemos agora porque as propriedades não lineares não eram observadas com as fontes térmicas de luz. Estas fontes têm intensidade $\sim 10^3 \text{ W/cm}^2$ (equivalente a $E \sim 10^3 \text{ V/cm}$) enquanto que um pulso de laser focalizado pode chegar a intensidades equivalentes a campos E maiores que E_a ($E_a \sim 10^8 \text{ V/cm}$ que equivale a intensidade $I \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$). A relação entre intensidade I (W/cm^2) e o campo elétrico (V/cm) é dada por

$$E \left(\frac{V}{cm} \right) = 27.5 I^{1/2} \left(\frac{W}{cm^2} \right)^{1/2} \quad (3.5a)$$

$$E \left(\text{stat volt} / \text{cm} \right) = 0.0916 \, I^{1/2} \left(\text{W} / \text{cm}^2 \right)^{1/2} \quad (3.5b)$$

Desta maneira para fonte térmica ($E \sim 10^3 \text{ V/cm}$) a razão entre o segundo termo de (3.1) e o primeiro é muito pequena $\sim 10^{-6}$ e os outros são menores ainda.

A inclusão dos termos não lineares nas equações de Maxwell dá origem a uma série de novos fenômenos. As equações de Maxwell (e a equação de onda) passam a ser não lineares o que significa que o princípio de superposição não é mais válido. Na Ótica Linear as ondas se propagam independentemente uma da outra enquanto que na Ótica não-linear há interação e troca de energia entre elas (via meio não-linear) gerando os efeitos não lineares.

Os termos $\chi^{(n)}$ em (3.1) e (3.2) dependem da frequência de cada um dos campos e do tipo de processo não linear que ocorre (veremos isto em alguns exemplos). Na verdade $\chi^{(n)}$ é um tensor de ordem n cujos elementos dependem da direção e frequência dos n campos incidentes no meio $E_1, E_2, \dots, E_n$ que interagem gerando um campo E_{n+1} (é um processo de ordem n).

Quando a frequência de um ou mais dos campos, ou sua soma ou diferença, se aproxima da frequência de transição de um nível atômico (ou seja, há ressonância) os termos de $\chi^{(n)}$ ressonantes aumentam em algumas ordens de grandeza. Por isso, na ressonância nem sempre a expansão (3.1) continua sendo válida porque mesmo os termos de mais alta ordem continuam a ser importantes e não podem ser desprezados. Por exemplo, podemos saturar uma transição da linha D do vapor de Na com intensidades menores que 10^{-2} W/cm^2 . Este fato torna possível experiências em ótica não-linear com intensidades relativamente baixas. Porém, é preciso que esta intensidade de luz esteja concentrada numa largura espectral da ordem da largura de linha da ressonância, que para o Na é $\sim 10^8 \text{ Hz}$.

Neste trabalho a intensidade de saturação dos materiais utilizados é $\sim 10^3 \text{ W/cm}^2$ o que permite saturar o meio com um laser de 1 W de potência focalizado 10^{-3} cm^2 .

Na Ótica Linear é comum escrevermos o campo como $E = \epsilon \cos(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \phi)$, no entanto na Ótica não-linear é mais conveniente escrever:

$$E = \frac{1}{2} \epsilon(r) e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} + \text{c.c.} \quad (3.6)$$

c.c. - complexo conjugado.

Discutiremos agora alguns efeitos não lineares para ilustrar o que foi dito. É importante ter em mente que cada termo da polarização não linear, que oscila com uma determinada frequência ω e vetor de onda $\vec{k}$, pode produzir um campo proporcional ao termo da polarização que o gerou. Na seção 3.2 discutiremos como calcular a amplitude do campo a partir da polarização não-linear usando a equação de onda de Maxwell. Veremos que a amplitude do campo não depende somente da suscetibilidade do meio mas também da condição de casamento de fase ("phase matching").

3.1.2. Termos de 2ª Ordem (Mistura de 3 Ondas)

Os termos de $\chi^{(2)}$ correspondem a efeitos de 2ª ordem, também denominados genericamente de mistura de três ondas pois envolvem três campos:

- **geração de 2º harmônico** - o termo $\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ corresponde a uma polarização não linear que oscila na frequência $\omega_1 + \omega_2$ dada por:

$$P_{NL}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) =$$

$$\chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \varepsilon_1 \varepsilon_2 e^{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \quad (3.7)$$

esta polarização atua como um termo de fonte na equação de onda gerando o campo com frequência $\omega_1 + \omega_2$. No caso em que $E_1 = E_2$ podemos ter apenas um feixe $E = E_1 = E_2 \propto e^{i\omega t}$ e gerar um campo que oscila com 2ω .

• **retificação ótica** - se tomamos o termo $E_1 E_2^*$ temos um efeito completamente diferente que é dado por $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2)$. No caso $\omega_1 = \omega_2$ o termo $\chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega_1)$ significa que está sendo gerada uma polarização não linear estática ($\omega_3 = 0$):

$$P_{NL}^{(2)}(0; \omega_1, -\omega) = \chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega) \varepsilon e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \varepsilon^* e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} = \chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega) |\varepsilon|^2 \quad (3.8)$$

Convém observarmos porém que escrevendo $E = \varepsilon \cos(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})$ temos:

$$P_{NL}^{(2)} = \chi^{(2)} E^2 = \frac{\chi^{(2)}}{2} \left[1 + \cos(2\omega t - 2\vec{k} \cdot \vec{r}) \right] \quad (3.9)$$

onde o primeiro termo é estático, a retificação ótica, e o segundo termo é a geração de segundo harmônico. Este exemplo mostra que escrever os campos na notação exponencial é muito mais conveniente pois cada termo da polarização não linear (referente a cada processo específico) já aparece isolado. É importante observar ainda que a resposta do meio não linear depende sensivelmente da frequência (devido às ressonâncias da interação da luz com a matéria) porisso, em geral $\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega) \neq \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$. Ou seja, a amplitude da polarização não-linear é diferente para cada processo.

É conveniente representar graficamente os processos em ótica não linear como mostra a Figura 3.1. Na Figura 3.1a temos a representação do processo de geração de 2º harmônico no qual dois ftons de frequências ω_1 e ω_2 são transformados (via meio não linear) em um fton de frequência $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. A energia $\hbar\omega$ e o momento $\vec{p} = \hbar \vec{k}$, com $|\vec{k}| = n(\omega) \omega/c$, são conservados portanto:

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (3.10a)$$

$$\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad (3.10b)$$

a equação da conservação do momento é vetorial, porém se os três campos se propagam na mesma direção e sentido temos:

A condição (3.10) é chamada de casamento de fase ("phase matching"). No caso $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ a condição de casamento de fase impõe que $n(2\omega) = n(\omega)$ o que não acontece na grande maioria dos materiais. O efeito de geração de segundo harmônico foi observado experimentalmente pela primeira vez focalizando-se um laser de rubi num cristal de quartzo [22]. Como a condição de casamento de fase não foi satisfeita a eficiência deste processo foi $\sim 10^{-8}$. Atualmente consegue-se eficiências ~ 1 usando-se cristais biaxiais numa particular posição em que $n_e(2\omega) = n_o(\omega)$, onde n_e e n_o os índices de refração do raio extraordinário e do raio ordinário, respectivamente.

A Figura 3.1b representa o processo de retificação ótica (note a diferença em relação à Figura 3.1a). Neste caso a flecha para cima representa o campo E enquanto a flecha para baixo representa o campo E^* , porisso o campo resultante tem frequência nula.

(a)
GERAÇÃO DE 2º
HARMÔNICO

(b)
RETIFICAÇÃO ÓTICA

(c)
GERAÇÃO DE 3º
HARMÔNICO

(d)
MISTURA DE 4 ONDAS
NÃO RESSONANTE

(e)
MISTURA DE 4 ONDAS
NÃO RESSONANTE

(f)
RESSONÂNCIA
RAMAN "CARS"

(g)
RESSONÂNCIA
DE 2 FOTONS

Figura 3.1. Representação Gráfica dos Processos em Ótica Não Linear.

As linhas cheias representam os níveis de energia reais do sistema e as linhas tracejadas os níveis de energia virtuais (que são os níveis de energia do campo eletromagnético quantizado). A contribuição dos campos E_j é representada com uma flecha para cima (frequência positiva), para os campos E_j^* a flecha é para baixo (frequência negativa) e campo gerado também é representado com uma flecha para baixo. Os processos a-e são não ressonantes enquanto que os processos f e g apresentam ressonâncias (devido a superposição dos níveis de energia reais e virtuais).

3.1.3. Termos de 3ª ordem (Mistura de 4 Ondas)

- **geração de 3º harmônico** - o efeito é análogo a geração de 2º harmônico (veja Figura 3.1c). No caso em que os fotons incidentes tem frequências $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$ é gerado um foton de frequência $\omega_4 = 3\omega$. A polarização não linear $P_{NL}^{(3)}$ deste processo é dada por:

$$P_{NL}^{(3)} = \chi^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega) \epsilon^3 e^{i(3\omega t - 3\vec{k} \cdot \vec{r})} \quad (3.12)$$

- **Mistura de 4 Ondas não Degeneradas** - citarei um exemplo destes processos que é dado pelo termo:

$$P_{NL}^{(3)} = \chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2, \omega_1) \epsilon_1 \epsilon_2^* \epsilon_1 e^{i[(2\omega_1 - \omega_2)t - (2\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \quad (3.13)$$

Neste caso temos $E_1 = E_3$ e a frequência gerada é $\omega_4 = 2\omega_1 - \omega_2$. A Figura 3.1d mostra a representação gráfica deste processo no caso não-ressonante, ou seja, os níveis de energia indicados por linhas tracejadas são níveis virtuais. Quando os níveis são virtuais não há diferença entre os processos da Figura 3.1d, e porém quando existir níveis de energia reais do material próximos aos níveis virtuais (veja Figura 3.1 f,g) o processo é ressonante. Como os processos ressonantes tem uma amplitude de $\chi^{(3)}$ muito maior isto distingue os casos f) e g) da Figura 3.1 dependendo da posição dos níveis de energia. No caso f) existe uma ressonância na absorção de dois fotons de frequência ω_1 e no caso g) existe uma ressonância Raman (este processo é chamado "Cars" espalhamento coerente anti-stokes).

- **CFMD40**

$$P_{NL}^{(3)} = \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega_1) E_1 E_2 E_p^* \quad (3.14)$$

é este o termo de $\chi^{(3)}$ que gera o Campo Conjugado E_c . A equação (3.14) mostra que a frequência de oscilação do campo é $\omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_p$. O vetor de onda de propagação é $\vec{k}_c = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_p$, como na configuração da CFMD40 (veja Figura 2.7 e Figura 2.8) os dois feixes de bombeio são contrapropagantes logo $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0$ e $\vec{k}_c + \vec{k}_p = 0$. A Figura 3.2a mostra a representação do processo de CFMD40 para o caso de uma transição de um foton para um estado excitado real. Em geral a experiência a CFMD40 é feita com o laser sintonizado em $\omega \sim \omega_0$ (onde $\hbar\omega_0$ é energia da transição para o estado excitado) para obter-se um alto valor de $\chi^{(3)}$. No caso em que o processo não é ressonante ele também pode ser representado pela Figura 3.2b. Uma observação importante sobre a CFMD40 é que como todos os campos oscilam na mesma frequência a condição de casamento de fase é satisfeita automaticamente. Este fato determinou a grande popularidade do processo de CFMD40 sobre, por exemplo, o processo de Conjugação de Fase por Mistura de 3 Ondas [9] que é não degenerado o que acarreta problemas de casamento de fase.

• Conjugação de Fase por Mistura de 4 Ondas Quase Degeneradas (CFM40QD)

Neste processo temos a mesma geometria da CFMD40, porem o campo de prova oscila com $\omega_p = \omega - \delta$ (com $\delta \ll \omega$) e a frequência dos campos de bombeio é $\omega_1 = \omega_2 = \omega$. A polarização é dada por:

$$P_c^{NL} = \chi^{(3)}(\omega + \delta; \omega, \omega, -\omega + \delta) E_1 E_2 E_p^* \quad (3.15a)$$

Figura 3.2. Representação Gráfica dos Processos de CFMD40 (a e b) e CFMQD40 (c). Para distinguir os quatro campos envolvidos neste processo indexamos as frequências $\omega_1, \omega_2, \omega_p$ e ω_c . Nos casos (a) e (b) $\omega_1 = \omega_2 = \omega_f = \omega_p$, no caso (c) $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\omega_p = \omega - \delta$ e $\omega_c = \omega + \delta$ (embora na figura não esteja representada proporcionalmente devemos ter $\delta \ll \omega$).

A condição de conservação de energia (o equivalente a equação (3.10a) do processo de mistura de duas ondas) impõe $\omega_c = \omega + \omega - (\omega - \delta) = \omega + \delta$. O processo de CFM40QD está representado na Figura 3.2c. Como $k(\omega) = n(\omega) \omega/c$, temos:

$$k_c \sim n_0(\omega - \delta)/c \quad (3.15b)$$

onde fizemos a aproximação $n(\omega - \delta) = n(\omega) = n_0$ válida se $\delta \ll \omega$. De (3.15a) a polarização se propaga com vetor de onda k'_c dado por:

$$k'_c = n_0(\omega + \delta)/c \quad (3.15c)$$

portanto existe uma diferença de vetor de onda:

$$\Delta k'_c = k_c - k'_c = 2n_0 \delta/c \quad (3.15d)$$

Veremos em 3.3 que o processo só ocorre quando $\Delta k_c L < 2\pi$ onde L é o comprimento do meio (devido a condição de casamento de fase).

3.2. Equação de Onda no Meio Não Linear

As equações de Maxwell são:

$$\nabla \cdot \vec{D} = 4\pi\rho \quad (3.16)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{4\pi}{c} \vec{j} + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

$$\nabla \times \vec{E} = - \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

Trataremos apenas meios homogêneos, não magnéticos, não condutores e sem cargas livres. O vetor deslocamento $\vec{D}$ é dado por

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi \vec{P} \quad (3.17)$$

onde $\vec{P}$ é a polarização que dividimos em uma componente linear $\vec{P}_L$ e outra não linear $\vec{P}_{NL}$

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{-NL} \quad (3.18)$$

onde $\vec{P}_L = \chi_0 \vec{E}$ é a polarização no limite de $\vec{E}$ pequeno.

Tomando o rotacional na última das equações (3.16) e substituindo na terceira temos:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P^L + P^{NL}) \quad (3.19)$$

Analisemos agora a equação de onda (3.19) acima. No vácuo $\vec{P} = 0$ temos uma onda que se propaga com a velocidade c . Podemos reescrever (3.19) lembrando que $P = \chi E$.

$$\nabla^2 E - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial t^2} \quad (3.20)$$

onde $n_0^2 = 1 + 4\pi\chi_0$.

No caso linear ($\vec{P}_{NL} = 0$) temos uma onda que se propaga com velocidade c/n_0 . No caso não-linear como não conhecemos a solução de

(3.20) escrevemos cada campo que participa do processo E_i ($i = 1, 2, \dots$ etc) como:

$$E_j = \epsilon_j(\vec{r}) e^{i(\omega_j t - \vec{k}_j \cdot \vec{r})} \quad (3.21)$$

com

$$k_j = n(\omega_j) \frac{\omega_j}{c}$$

Substituindo (3.21) em (3.20) encontramos, em princípio, $\epsilon_i(r)$. Para resolver (3.20) é conveniente fazer a aproximação do pacote que varia lentamente (ou aproximação de Born), que consiste em supor que $\epsilon(\vec{r})$ varia muito mais lentamente que $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})$. Para um campo que se propaga na direção z temos:

$$|k^2 \epsilon| \gg \left| k \frac{\partial \epsilon}{\partial z} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 \epsilon}{\partial z^2} \right| \quad (3.22)$$

Usando (3.22) em (3.20) obtemos uma equação em primeira ordem para $\epsilon_i(r)$.

$$\frac{\partial \epsilon_j}{\partial z} = -i \frac{2\pi}{n_0^2} k_j P_j e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{p/CGS}) \quad (3.23a)$$

$$\frac{\partial \epsilon_j}{\partial z} = -\frac{i}{2n_0^2} k_j P_j e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{p/MKS}) \quad (3.23b)$$

onde P_j é a amplitude do j -ésimo termo da polarização não-linear dado por:

$$P_j^{NL}(r) = \frac{1}{2} P_j(r) e^{i(\omega_j t - \vec{k}_j \cdot \vec{r})} + \text{c.c.} \quad (3.24)$$

como em geral $\vec{k}'_j$ é diferente de $\vec{k}_j$ nem sempre a condição de casamento de fase $(\Delta \vec{k}_j = \vec{k}_j - \vec{k}'_j = 0)$ é exatamente estabelecida. É importante observar que a expressão para a polarização não linear em geral tem muitos termos (cada tensor $\chi^{(n)}$ tem muitos termos). No entanto, em (3.23) e (3.24) só tomamos o termo que oscila com a mesma frequência ω_j e aproximadamente o mesmo vetor de onda $\vec{k}_j$ (isto é $\Delta \vec{k}_j \ll \vec{k}_j$) do campo E_j pois mostraremos que as componentes fora da condição de casamento de fase não contribuem. Outra observação é que estamos tratando o caso estacionário quando escrevemos $\epsilon_j = \epsilon_j(r)$. Para o estudo da evolução temporal (isto não será discutido neste trabalho) temos que considerar $\epsilon_j = \epsilon_j(r,t)$ e neste caso substituímos o lado esquerdo de (3.23) por

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_0}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) \epsilon$$

Em (3.23) vemos analiticamente o que já havia sido comentado: a polarização não linear atua como um termo de fonte dando origem a um novo processo. Além disso como P_{NL} é dado pelo produto dos campos (3.1) a interação entre as ondas é descrita por (3.23) que é uma expressão geral e válida para todo processo não linear (de qualquer ordem). O que é específico de cada processo são os termos de P_{NL} que estão em condição de casamento de fase com um (ou mais) dos campos E_j .

A solução (3.23) fica simplificada quando se supõe que a amplitude da polarização não linear $P_j(r)$ é constante. Supondo que k_j e Δk_j na direção z , logo de (3.23a) temos

$$\begin{aligned} \epsilon_j(z) &= -i \frac{2\pi k_j}{n_0} P_j \int_0^L e^{-i\Delta k_j z} dz \\ \epsilon_j(z) &= i \frac{2\pi k_j}{n_0} P_j \left(\frac{1 - e^{-i\Delta k_j L}}{\Delta k_j} \right) \end{aligned} \quad (3.25)$$

Supondo, por exemplo um processo genérico de mistura de 4 ondas:

$$P_j = \chi^{(3)}(\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 e^{-j \vec{k}_j \cdot \vec{r}} \quad (3.26)$$

a intensidade do campo gerado é proporcional a $|\epsilon_j|^2$ dado por:

$$|\epsilon_j|^2 = \left(\frac{2\pi}{n_0} k_j \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 L \right)^2 \left[\frac{\sin(\Delta k_j L/2)}{\Delta k_j L/2} \right]^2 \quad (3.27)$$

podemos generalizar (3.27) para um processo de mistura de $n+1$ ondas, a intensidade gerada é proporcional a $\left(\chi^{(n)} L \epsilon_1 \epsilon_2 \dots \epsilon_n \right)^2$ vezes o termo em colchetes ao quadrado de (3.27) que é o termo de casamento de fase. É importante notar que a intensidade do campo gerado $I \rightarrow 0$ quando $\Delta k_j > 2\pi$. Isto acontece devido a um processo de interferência pois ϵ_j e P_j se propagam com uma diferença de vetor de onda Δk_j . Desta forma define-se o comprimento crítico de coerência:

$$L_c = \frac{2\pi}{|\Delta k_j|} \quad (3.28)$$

vemos então que embora a intensidade do campo gerado seja proporcional a L^2 seu valor decresce quando L é grande devido ao termo de casamento de fase em (3.27).

3.3. Exemplos de alguns processos de Mistura de Ondas

Usaremos como exemplo para aplicação da teoria discutida em 3.1 alguns exemplos de processos não-lineares que foram qualitativamente discutidos em 3.1.

3.3.1. Geração de 2º harmônico

No processo de geração de 2º harmônico temos $E_1 = E_2$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\vec{k}_1 = \vec{k}_2 = \vec{k}$ e estamos interessados no campo E_3 com frequência $\omega_3 = 2\omega$. De (3.10) vemos que o vetor de onda de PNL é $\vec{k}' = 2\vec{k}(\omega)$. Para simplificar o cálculo desprezamos a potência perdida pelo campo incidente $d\epsilon/dz \sim 0$ tomando $\epsilon(z) = \epsilon$ constante. De (3.7), (3.25) e (3.27) temos:

$$|\epsilon_3|^2 = \left(\frac{2\pi}{n_0^2} k_3 \chi^{(2)} \epsilon_2 \right)^2 \left[\frac{\sin(\Delta k_j L/2)}{\Delta k_j L/2} \right]^2 \quad (3.28a)$$

com:

$$k_3 = k(2\omega) = \frac{2\omega}{c} n_0(2\omega) \quad (3.28b)$$

$$\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega) = \frac{2\omega}{c} [n_0(2\omega) - n_0(\omega)] \quad (3.28c)$$

onde $\epsilon = \epsilon_1 = \epsilon_2$ que são amplitudes constantes. Esta suposição só é válida quando se considera $\epsilon_2 \ll \epsilon$ pois o campo E perde energia para gerar o campo E_3 .

Citando o valor típico $\lambda = 1 \mu\text{m}$, $n(2\omega) - n(\omega) \sim 10^{-2}$ obtemos $L_c = 100 \mu\text{m}$ (equação 3.28) o que mostra que a condição de casamento de fase é bastante restritiva.

3.3.2. Conjugação de Fase por Mistura Quase Degenerada de 4 Ondas (CFMQD40)

Usando (3.15) e (3.27) obtemos:

$$|\epsilon_c|^2 = \left(\frac{2\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^* L \right)^2 \left[\frac{\sin(\Delta k_c L/2)}{\Delta k_c L/2} \right]^2 \quad (3.29)$$

com:

$$k = n_0 \omega / c$$

$$\Delta k_c = 2 n_0 \delta / c$$

$$\chi^{(3)} = \chi^{(3)}(\omega + \delta; \omega, \omega, \omega - \delta)$$

Existem dois fatores que precisam ser considerados na dependência do sinal com δ . O primeiro é a condição de casamento de fase que impõe que $\Delta K_c L \ll 2\pi$. O segundo é a dependência em frequência de $\chi^{(3)}(\omega + \delta; \omega, \omega, \omega - \delta)$ pois pode haver uma ressonância do tipo Raman que favoreça um determinado valor de δ (compare a Figura 3.2c com a Figura 3.1f). No caso da Figura 3.2c, em que o único nível de energia real do sistema está em sintonia com ω_1 , $\chi^{(3)}$ é máximo em $\delta = 0$. Neste caso o sinal é máximo em $\delta = 0$ por dois motivos, o primeiro é a condição de casamento de fase e o segundo é a resposta do meio não linear $\chi^{(3)}$.

3.2.3. Redes Induzidas por Lasers

É interessante observar que os processos de redes induzidas podem ser interpretados sob dois pontos de vista. No caso da experiência de autodifração (veja Figura 2.6) podemos pensar que os campos E_0^+ e E_0^- produzem no meio não linear modulação de intensidade que gera a rede induzida como acontece para os campos E_1 e E_p na Figura 2.7. A primeira ordem $m = -1$ da difração do campo E_0^- nesta rede sai na direção $\vec{k}_1^-$ e para $m = +1$ na direção $\vec{k}_0^+$ (compare a Figura 2.6b com a Figura 2.5). A intensidade do campo espalhado pode ser calculada pela expressão (2.9) para η a eficiência de difração da rede. A segunda ordem da difração do campo

E_0^- ocorre na direção $\vec{k}_1^+$ para $m = +2$ e $\vec{k}_2^-$ para $m = -2$. Estes processos podem também ser interpretados como Mistura de Ondas Degeneradas (que são processos onde todos os campos oscilam na mesma frequência). No caso da difração de primeira ordem do campo E_0^- temos:

$$P_1^+ = \chi^{(3)} \epsilon_0^+ \epsilon_0^- (\epsilon_0^-)^* e^{i(\omega t - \vec{k}_0 \cdot \vec{r})} \quad (3.30a)$$

que é equivalente ao caso $m = 1$ e para $m = -1$ temos:

$$P_1^- = \chi^{(3)} \epsilon_0^- \epsilon_0^- (\epsilon_0^+)^* e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \quad (3.30b)$$

Para a 2ª ordem $m = 2$ temos que tomar os termos em $\chi^{(5)}$:

$$P_2^+ = \chi^{(5)} \epsilon_0^+ \epsilon_0^+ (\epsilon_0^- \epsilon_0^-)^* \epsilon_0^- e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \quad (3.31a)$$

para $m = +2$ e para o caso $m = -2$ temos:

$$P_2^- = \chi^{(5)} (\epsilon_0^+ \epsilon_0^+)^* \epsilon_0^- \epsilon_0^- \epsilon_0^- e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \quad (3.31b)$$

O caso da autodifração do campo E_0^+ gerando outros campos nas direções de $k_1^\pm$, $k_2^\pm$ é completamente análogo. É importante observar que os processos degenerados de $\chi^{(3)}$ representam uma modulação de índice de refração complexo $\Delta\tilde{n}$ que é proporcional a modulação de intensidade ($\tilde{n} = \tilde{n}_0 + \tilde{n}_2 I$), por isso a modulação $\Delta\tilde{n}$ também é senoidal. Como uma rede senoidal só tem componentes de primeira ordem na expansão de Fourier a rede não difrata luz nas ordens superiores $m > 2$. Os termos equivalentes a 2ª ordem só aparecem em $\chi^{(5)}$ que correspondem a uma relação não linear entre $\Delta\tilde{n}$ e o perfil de intensidade. FRAGNITO et al. [23] observaram em corantes orgânicos (absorvedores saturáveis) até a quarta ordem de difração. Neste

caso os termos de ordem mais alta $\chi^{(5)}$, $\chi^{(7)}$ e $\chi^{(9)}$ aparecem devido a saturação da não linearidade do meio.

Para o cálculo da intensidade dos campos no processo de mistura de ondas devemos usar as equações (3.30) e (3.27). Inicialmente escrevemos:

$$\vec{k}_0^\pm = k \left[\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \hat{k} \pm \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \hat{i} \right] \quad (3.32)$$

com $k = n_0 \omega/c$.

De (3.30) obtemos os vetores de onda das polarizações P_1^+ e P_1^- dados respectivamente por

$$\vec{k}_1^{+'} = \vec{k}_1^+ \quad (3.33a)$$

$$\vec{k}_1^{-'} = 2 \vec{k}_0^- - \vec{k}_0^+ = k \left[\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) + 3 \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \right] \quad (3.33b)$$

Verificamos então que $|\vec{k}_1^{+'}| = k$ e $|\vec{k}_1^{-'}| = k \sqrt{1 + \sin^2(\theta/2)}$, portanto de (3.27) temos:

$$|\epsilon_1^+|^2 = \left[\frac{2\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_0^+ \epsilon_0^- (\epsilon_0^-)^* \right]^2 \quad (3.34a)$$

$$|\epsilon_1^-|^2 = \left[\frac{2\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_0^- \epsilon_0^+ (\epsilon_0^+)^* \right]^2 \left[\frac{\sin(\Delta \vec{k}_1^-)}{\Delta \vec{k}_1^-} \right]^2 \quad (3.34b)$$

com $\Delta \vec{k}'_1 = k \left(1 - \sqrt{1 + \sin^2(\theta/2)} \right) \approx k \theta^2/8$ (a aproximação é válida para θ pequeno) ou seja, $\Delta k_1^+ = 0$ o que significa que a condição de casamento de fase é estabelecida na geração de E_1^+ , o que não acontece para E_1^- . Para observar o campo E_1^- é preciso usar $L < L_c$ que de (3.28) fica:

$$L_c = \frac{16\pi}{k \theta^2} \quad (3.35)$$

Pode-se mostrar que todos os campos gerados nas direções de $k_1^{+(-)}, k_2^{+(-)} \dots$ estão restritos a condição de casamento de fase por isso estes processos só podem ser observados em meios finos com $L \ll L_c$.

Consideremos agora o caso em que o campo E_0^- tem frequência $\omega_0^- = \omega - \delta$ e o campo E_0^+ tem frequência $\omega_0^+ = \omega$, ou seja, é o caso não degenerado. De maneira análoga ao procedimento para obtenção de (2.7a) obtém-se o padrão de intensidade:

$$|E_T|^2 = |E_0^+ + E_0^-|^2 = \epsilon_0^{+2} + \epsilon_0^{-2} + 2 \epsilon_0^+ \epsilon_0^- \cos \left(\frac{2\pi x}{\Lambda'} + \phi(z) - \frac{\delta t}{2} \right) \quad (3.36a)$$

$$\Lambda' = \frac{\lambda}{2 n_0 \sin(\theta/2) \left(1 + \delta/2\omega \right)} \quad (3.36b)$$

A equação (3.36) representa uma rede de volume de período Λ' , onde $\Lambda' \rightarrow \Lambda$ se $\delta \ll \omega$, que se move na direção do eixo x com velocidade $v = \Lambda' \delta / 4\pi$. Esta rede pode difratar, por exemplo, o feixe E_0^- gerando os campos E_1^- e E_1^+ .

Da mesma forma que os outros processos, os processos em redes induzidas por lasers podem ser representados graficamente. Os termos de $\chi^{(3)}$ de (3.30) têm a mesma representação gráfica da CFMD40 (Figura 3.2a). No caso não degenerado os campos difratados (dados por 3.34) têm a

mesma representação do processo de CFMQD40 (Figura 3.2c) que também é igual a do CARS (Figura 3.1f). Na verdade, assim como o processo de CFMD40 é interpretado como uma experiência de rede induzida por laser os processos de CFMQD40 e CARS também podem ser interpretados por redes que se movem (no caso do CARS $\delta = \omega_1 - \omega_2$). Entretanto esta analogia não foi percebida inicialmente nos trabalhos iniciais sobre CFMD40 de HELLWARTH [24] e YARIV/PEPPER [25]. O próprio YARIV [26] publicou um trabalho só para mostrar a analogia entre CFMD40 e holografia um ano após a publicação do primeiro trabalho sobre CFMD40, e onze anos após a publicação do primeiro trabalho sobre rede induzida [3] em 1967. Entre 1967 e 1977 vários autores se dedicaram a este problema e em 1971 o processo de CFMD40 foi proposto (embora com o nome de holografia dinâmica) e demonstrado experimentalmente na U.R.S.S. [27]. O processo de C.F. por espalhamento Brillouin foi observado experimentalmente em 1972 também na U.R.S.S. [28]. Na verdade HELLWARTH [24] propôs um processo que já era conhecido experimentalmente [27] mas que tinha sido interpretado sobre outro ponto de vista. Entretanto, após o trabalho de HELLWARTH e o de YARIV/PEPPER este problema sempre foi analisado com um processo de Mistura de Ondas em Ótica Não linear. O formalismo da Ótica não-linear revelou-se como o mais simples e mais poderoso para análise deste problema.

3.4. Teoria Básica da CFMD40

O primeiro trabalho teórico propondo o método de CFMD40 como um método capaz de recompor distorções de um feixe de luz, ou seja, criar a reversão temporal do feixe foi feito por HELLWARTH [24]. A ideia de HELLWARTH foi propor o processo de CFMD40, que já foi discutido qualitativamente no Capítulo I (veja Figura 2.7 e Figura 2.8), cujo termo da polarização não-linear é dado por:

$$P_c^{NL} = \chi^{(3)} E_1 E_2 E_p^*$$

$$= \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^* e^{i \left[(\omega + \omega - \omega) t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_p) \cdot \vec{r} \right]} \quad (3.37)$$

Devido a particular geometria usada (onde os dois campos E_1 e E_2 se propagam na mesma direção mas com sentidos opostos) temos $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0$. Além disso, como todos os campos oscilam na mesma frequência, temos $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2| = |\vec{k}_p| = |\vec{k}_c| = n(\omega) \cdot \omega/c$.

Desta maneira a equação (3.14) representa uma polarização não linear que oscila na frequência ω e se propaga com o vetor de onda $\vec{k}_c = -\vec{k}_p$ do campo conjugado, ou seja, a polarização não-linear conjugada P_c^{NL} é o termo da polarização que gera o campo conjugado E_c .

Uma grande vantagem do processo de CFMD40 sobre outros processos para obtenção da conjugação de fase, por exemplo o processo de mistura de 3 ondas, é que na CFMD40 a condição de casamento de fase é sempre cumprida uma vez que todos os campos oscilam na mesma frequência ω logo $\Delta \vec{k} = 0$ (veja equação 3.27). Procedendo de modo análogo ao feito para geração de segundo harmônico (item 3.1.2) temos de (3.23a):

$$\frac{d \epsilon_c}{d z} = i \frac{4\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^* \quad (3.38)$$

onde o fator 4π (ao invés de 2π como em (3.23a)) aparece devido ao fato de termos duas contribuições $\epsilon_1 \cdot \epsilon_2$ e $\epsilon_2 \cdot \epsilon_1$ que são iguais. Veremos mais tarde que cada uma destas contribuições representam uma das duas redes mostradas na Figura 2.7.

Se supomos $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_p \gg \epsilon_c$, para que possamos desprezar a energia perdida no processo de mistura de ondas pelos campos $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_p$

para geração do campo conjugado E_c , podemos então considerar ϵ_1 , ϵ_2 e ϵ_p constantes (também não estamos considerando a absorção linear do meio). Neste caso temos integrando equação (3.38):

$$\frac{\partial \epsilon_c}{\partial z} = i \frac{4\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^*$$

onde L é o comprimento do meio não linear em que todos os feixes interagem. Note que na equação (3.38) não aparece o sinal negativo como na equação (3.23) devido ao fato de que E_c se propaga no sentido negativo da coordenada z , $k_c = -k_z$. Integrando (3.38) obtemos:

$$\epsilon_c = i \frac{4\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^* L \quad (3.39)$$

A chamada refletância R ou eficiência do espelho de Conjugação de Fase definida como a razão da intensidade do campo conjugado gerado pela intensidade do feixe de prova incidente, $R = \left| \frac{\epsilon_c(0)}{\epsilon_p(0)} \right|^2$.

YARIV e PEPPER [25] deram um passo além a este modelo simples supondo que existem dois campos fortes E_1 e E_2 (são os campos de bombeamento) e dois campos fracos E_p e E_c (são os campos de prova) de tal maneira que se possa desprezar a variação de energia dos campos fortes E_1 e E_2 no processo de mistura de ondas (na literatura diz-se "desprezar a depleção dos feixes de bombeamento"). Desta maneira, obtém-se equações para os campos E_p e E_c :

$$\frac{d \epsilon_c}{d z} = i \frac{2\pi k}{n_0^2} \left\{ \chi^{(3)} \left(|\epsilon_1|^2 + |\epsilon_2|^2 + |\epsilon_c|^2 + |\epsilon_p|^2 \right) \epsilon_c + 2 \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p^* \right\} \quad (3.41a)$$

$$\frac{d \epsilon_p}{d z} = -i \frac{2\pi k}{n_0^2} \left\{ \chi^{(3)} \left(|\epsilon_1|^2 + |\epsilon_2|^2 + |\epsilon_c|^2 + |\epsilon_p|^2 \right) \epsilon_p + 2 \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_c^* \right\} \quad (3.41b)$$

onde no parêntesis do lado direito das equações (3.41) pode-se desprezar os termos $|\epsilon_p|^2$ e $|\epsilon_c|^2$ pois $\epsilon_p, \epsilon_c \ll \epsilon_1, \epsilon_2$. O sistema de equações (3.41) pode ser simplificado se fazemos:

$$\epsilon_c(z) = \epsilon'_c(z) \exp(-i Fz) \quad (3.42a)$$

$$\epsilon_p(z) = \epsilon'_p(z) \exp(+i Fz) \quad (3.42b)$$

$$\text{com } F = \frac{2\pi k}{n_0} \chi^{(3)} \left(|\epsilon_1|^2 + |\epsilon_2|^2 \right).$$

Esta mudança de variáveis é útil para o caso em que $\chi^{(3)}$ é real, o que se chama de não linearidade dispersiva, que é o caso deste modelo onde se despreza a absorção linear e consequentemente também a absorção não linear. Neste caso, vê-se que $i Fz$ é uma fase complexa que não altera a intensidade dos campos $I \propto |\epsilon|^2$. Porisso substituindo (3.42) em (3.41) obtemos:

$$\frac{d \epsilon'_c}{d z} = i Q^* (\epsilon'_p)^* \quad (3.43a)$$

$$\frac{d \epsilon'_p}{d z} = -i Q^* (\epsilon'_c)^* \quad (3.44b)$$

$$\text{com } Q^* = \frac{4\pi k}{n_0} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2.$$

Este sistema de equações obtido por YARIV e PEPPER [25] e independentemente por BLOOM e BJORKLUND [29], é o ponto de partida para a maior parte do formalismo da CFMD40.

Usualmente este modelo é utilizado supondo-se que todos os campos envolvidos no processo de CFMD40 são ondas planas. Neste caso a diferença de fase entre as amplitudes dos campos de prova ϵ_j e ϵ'_j (com

$j = c, p$) não é relevante pois não muda a intensidade dos campos. Por este motivo não faremos distinção entre os campos ϵ_j e ϵ'_j . No entanto, é importante observar que os campos E_1 e E_2 não são ondas planas mas têm um perfil $\epsilon(r)$ (onde r é a direção transversal a direção de propagação z) que em geral é gaussiano. Por isso, $F = F(r)$ ou seja, aparece uma modulação na fase dos campos E_c e E_p que pode alterar o padrão de intensidade $I(r)$ no campo distante em $z \gg L$. Veremos no Capítulo VIII que este efeito aparece devido a uma modulação do índice de refração do meio não-linear devido a presença dos feixes de bombeio que atua como elemento aberrador.

Resolve-se o sistema de equação (3.43) com as condições de contorno $\epsilon_p(0)$ e $\epsilon_c(L) = 0$ ou seja, o valor do campo de prova incidente em $z = 0$ $\epsilon_p(0)$ e o valor do campo conjugado incidente em $z = L$ que é nulo pois o campo é gerado devido ao processo de mistura de ondas:

$$\epsilon_p(z) = -i \frac{|k|}{k} \frac{\sin(|Q|L)}{\cos(|Q|L)} \epsilon_c^*(L) + \frac{\cos[|Q|(z-L)]}{\cos(|Q|L)} \epsilon_p(0) \quad (3.44a)$$

$$\epsilon_c(z) = \frac{\cos(|Q|z)}{\cos(|Q|L)} \epsilon_c(L) + i \frac{Q^* \sin[|Q|(z-L)]}{|Q| \cos(|Q|L)} \epsilon_p^*(0) \quad (3.44b)$$

substituindo $\epsilon_c(L) = 0$ obtém-se:

$$\epsilon_c(0) = -i \frac{Q^*}{|Q|} \tan(|Q|L) \epsilon_p^*(0) \quad (3.45a)$$

$$\epsilon_p(L) = \sec(|Q|L) \epsilon_p(0) \quad (3.45b)$$

logo:

$$R = |r|^2 = \left| \frac{\epsilon_c(0)}{\epsilon_p(0)} \right|^2 = \tan^2(|Q|L) \quad (3.46a)$$

$$R = |t|^2 = \left| \frac{\epsilon_p(L)}{\epsilon_p(0)} \right|^2 = \sec^2(|Q|L) \quad (3.46b)$$

A Figura 3.3a mostra os campos quando $\pi/4 < |Q|L < 3/4$ (com esta condição $R > 1$). É importante observar que para $QL = \pi/2$ temos $R = \infty$ e $T = \infty$, ou seja, há oscilação. Isto significa que podemos ter campos de saída $\epsilon_c(0)$ e $\epsilon_p(L)$ finitos e não nulos com entrada nula $\epsilon_p(0) = \epsilon_c(L) = 0$. A Figura 3.3b mostra a distribuição dos campos nesta condição de oscilação. É importante observar que este efeito de oscilação é uma solução matematicamente correta mas que não representa uma situação física. Neste caso, o modelo é inconsistente pois supusemos inicialmente que os feixes fortes (de bombeamento) E_1 e E_2 tão intensos que sua interação com o meio não linear podia ser desprezada. Porém pela conservação da energia, a energia dos feixes fracos (feixes de prova) só pode aumentar com a diminuição da energia dos feixes fortes e quando a eficiência é muito alta os feixes fracos tornam-se fortes (o que é inconsistente com o modelo).

Demonstramos que $\epsilon_c(r)$ é proporcional a $\epsilon_p^*(r)$ (a parte espacial) quando $\epsilon_p(r)$ é uma onda plana. No caso geral, para uma frente de onda qualquer, podemos expandir $E_p(x,y,z)$ em componentes de Fourier de ondas planas. Como o sistema de equações (3.45) é linear, cada componente de E_c será o conjugado de uma componente, ou seja, está havendo a Conjugação de Fase de toda a frente de onda

$$\epsilon_c(x, y, z) e^{i(\omega t + \vec{k} \cdot \vec{r})} \propto \epsilon_p(x, y, z) e^{i(\omega t + \vec{k} \cdot \vec{r})}$$

o campo E_c é uma réplica conjugada, amplificada (para $QL > \pi/4$) e coerente do campo E_p . Quando os campos E_1 e E_2 não são ondas planas veremos no Capítulo VII que o campo E_c continua sendo o campo conjugado no caso em que o raio médio w_p do perfil gaussiano do campo de prova é muito menor que o raio dos feixes de bombeio.

Figura 3.3. Amplificação e Oscilação na CFMD4

Podemos fazer algumas estimativas para o CS₂, um líquido não linear com $\chi^{(3)} \sim 10^{-12}$ e.s.u. Para a luz visível $\omega/c \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$, logo $Q \sim 10^{-7} \epsilon^2$ (e.s.u.) ou $Q \sim 10^{-9} I$ (de (1.14)) onde I é a intensidade em unidades de W/cm^2 . Para termos $R \sim 1$ com $L = 1 \text{ cm}$ é preciso $I \sim 10^9 \text{ W/cm}^2$, por isso no CS₂ o efeito de CFMD40 só pode ser observado com lasers pulsados de alta potência. Como $R \propto (\chi^{(3)})^2$ é mais interessante usar um meio não-linear ressonante, por exemplo no vapor de Na $\chi^{(3)} \sim 10^{-8}$ e.s.u. para frequência próxima da linha D.

Como era de se esperar no caso $|Q|L \rightarrow 0$ a expressão (3.46a) recai em (3.39) para o caso $\epsilon_c \ll \epsilon_p$. Neste limite podemos mostrar que (3.39) obtida a partir do formalismo de Mistura de Ondas dá o mesmo resultado para intensidade do campo conjugado que calculando a partir eficiência de difração da rede η dada por (2.9). Supondo um meio Kerr, $n = n_0 + n_2 I$, onde a linearidade é dispersiva (n_2 e $\chi^{(3)}$ são reais) e $\Delta\alpha = 0$, temos a formação de duas redes no processo de CFMD40. Na primeira rede os campos E_1 e E_p geram uma modulação de índice de refração $\Delta n_1 = 2 n_2 \epsilon_1 \epsilon_2$ (Figura 2.7a). De (2.9) a difração do campo E_2 nesta rede gera um campo conjugado E_{c1} de amplitude $\epsilon_{c1} = (\omega/c) n_2 L \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p$ (onde $k = n_0 \omega/c$). Analogamente na segunda rede (Figura 2.7b) temos $\Delta n_2 = 2 n_2 \epsilon_p \epsilon_2$ e a difração de E_2 gera $E_{c2} = (\omega/c) n_2 L E_1 E_2 E_p L$. Estes dois campos E_{c1} e E_{c2} são gerados com a mesma fase portanto a amplitude do campo total E_c é dada por sua soma: $\epsilon_c = 2 \frac{\omega}{c} n_2 \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p$.

Escrevendo:

$$n = n_0 + n_2 \epsilon^2 = \sqrt{1 + 4\pi \chi^{(1)} + 4\pi \chi^{(3)} \epsilon^2} \quad (3.47a)$$

obtem-se:

$$n_0 = \sqrt{1 + 4\pi \chi^{(1)}} \quad (3.47b)$$

no CGS

$$n_2 = \frac{2\pi}{n_0} \chi^{(3)} \quad (3.47c)$$

no MKS (veja Apêndice A)

$$n_2 = \frac{\chi^{(3)}}{2n_0} \quad (3.47d)$$

desta maneira temos $\epsilon_c = \frac{4\omega}{n_0 c} \chi^{(3)} \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_p L$ que difere de (3.39)

apenas por um fator n_0 (lembre que $k = n_0 \omega/c$). Neste trabalho vamos adotar (3.47c) o que determina a equação (3.38). Dependendo da convenção utilizada para definir o tensor $\chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega - \omega)$ pode se obter outra relação como por exemplo [30]: $n_2 = 12 (\pi/n_0) \chi^{(3)}$. No Capítulo IV (eq. 4.9) ainda faremos uma correção para a equação (3.47) considerando o fator do campo local da equação de Claussius Mosoti.

3.5. CFMD40 em meio do tipo Kerr com absorção linear

O modelo anterior também pode ser resolvido facilmente quando se considera a absorção linear dos campos. Sendo α o coeficiente de absorção da intensidade e $I \propto |E|^2$, chamamos α_0 o coeficiente de absorção do campo que é $\alpha_0 = \alpha/2$

$$E_1 = \epsilon_1(0) \exp(-\alpha_0 z')$$

$$E_2 = \epsilon_2(L) \exp[-\alpha_0(L - z')]$$

$$\therefore E_1 E_2 = \epsilon_2(0) \epsilon_2(L) \exp[-\alpha_0 L] \quad (3.48)$$

onde z' é a direção de propagação dos campos E_1 e E_2 . Incluindo o termo de absorção linear procede-se de maneira análoga ao feito para obtenção das equações (3.43):

$$\frac{d \epsilon_c}{d z} = \alpha_0 \epsilon_c + i \bar{Q}^* e^{-\alpha_0 L} \epsilon_p^* \quad (3.49a)$$

$$\frac{d \epsilon_p}{d z} = -\alpha_0 \epsilon_p - i \bar{Q}^* e^{-\alpha_0 L} \epsilon_c^* \quad (3.49b)$$

$$\text{com } \bar{Q} = \frac{4\pi k}{n_0} \chi^{(3)} \epsilon_1(0) \epsilon_2(L) .$$

A solução deste sistema é facilitada com a substituição de variáveis:

$$\epsilon_p = A(z) e^{-\alpha_0 z} \quad (3.50a)$$

$$\epsilon_c = B(z) e^{\alpha_0 (z-L)} \quad (3.50b)$$

desta maneira o sistema de equações (3.49) fica:

$$\frac{d A^*}{d z} = i \bar{Q} B e^{2\alpha_0 (z-L)} \quad (3.51a)$$

$$\frac{d B}{d z} = i \bar{Q} A^* e^{-2\alpha_0 z} \quad (3.51b)$$

cuja solução em termo das condições iniciais $A(0)$ e $B(L) = 0$ é:

$$A(z) = \frac{e^{\alpha_0 z} A(0) \left\{ -\alpha \sin [\gamma (z-L)] + \gamma \cos [\gamma (z-L)] \right\}}{\alpha_0 \sin (\gamma L) + \gamma \cos (\gamma L)} \quad (3.52a)$$

$$B(z) = \frac{e^{-\alpha_0 z} i \bar{Q}^* A^*(0) \sin [\gamma (z-L)]}{\alpha_0 \sin (\gamma L) + \gamma \cos (\gamma L)} \quad (3.52b)$$

com

$$\gamma^2 = \left| \frac{-2}{\bar{Q}} \right| e^{-2\alpha_0 L} - \alpha_0^2 \quad (3.52c)$$

de (3.51) e (3.49) os coeficientes de reflexão r , e transmissão t ficam:

$$r = \frac{\epsilon_c(L)}{\epsilon_c(L)} = i \bar{Q} e^{-\alpha_0 L} \frac{\tan(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \quad (3.53a)$$

$$t = \frac{\epsilon_p(L)}{\epsilon_p(0)} = \bar{Q} e^{-\alpha_0 L} \frac{\sec(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \quad (3.53b)$$

ou escrevendo a refletância $R = r^2$ (R também é chamado de eficiência da CFMD40) e transmitância T :

$$R = |\bar{Q}|^2 e^{-2\alpha_0 L} \left[\frac{\tan(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \right]^2 \quad (3.54a)$$

$$T = \gamma^2 e^{-2\alpha_0 L} \left[\frac{\sec(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \right]^2 \quad (3.54b)$$

Vemos que com absorção a condição de oscilação ocorre para $\gamma L > \pi/2$. Esta condição pode ser sempre obtida, isto é, para qualquer valor de α_0 , aumentando-se suficientemente a intensidade de bombeio, para que γ seja real ou seja $|\bar{Q}| e^{-\alpha_0 L} > \alpha_0$ (pois $\bar{Q} \propto I$). Na prática isto nem sempre é possível pois todo meio não linear satura e/ou se danifica a partir de uma determinada intensidade de luz. No caso que γ é imaginário $\left(\alpha_0 > |\bar{Q}| e^{-\alpha_0 L} \right)$ a equação (3.53) continua válida trocando-se $\tan(\gamma L)$ por $\tanh(|\gamma|L)$, porém neste caso não existe a condição de oscilação.

Este modelo descreve também um meio amplificador de ganho linear quando $\alpha_0 < 0$. Neste caso a condição de oscilação dada por (3.54) ocorre para $\gamma L < \pi/2$. No caso em que γ é imaginário a condição de oscilação fica:

$$\tanh(\gamma L) = -\gamma/\alpha_0 \quad (3.55)$$

3.6. CFMD40 no Sistema de Dois Níveis

Devido ao interesse de se obter alta eficiência na CFMD40 procura-se trabalhar com alta intensidade nos campos de bombeio, ou seja, intensidades da ordem da intensidade de saturação I_s do meio não-linear. Também é interessante trabalhar em sistemas ressonantes onde a não linearidade é alta. Nestes casos, não se pode parar no termo $\chi^{(3)}$ da expansão da polarização dada pela equação (3.2) e o modelo de YARIV/PEPPER deixa de ser válido. Porisso o modelo de ABRAMS e LIND [31] que irei descrever agora é um dos trabalhos teóricos mais importantes da literatura de CFMD40 pois calcula o efeito de CFMD40 para um sistema de dois níveis onde o efeito não linear é saturável. Embora em poucos meios não-lineares seja válida a aproximação de se considerar a interação da luz com apenas dois níveis o cálculo de ABRAMS e LIND tem sido utilizado para analisar diversas situações experimentais onde o efeito não-linear ocorre devido a uma absorção saturada (principalmente em corantes orgânicos [32]). Além disso o método de cálculo utilizado permite modificações e extensões do modelo, como por exemplo o sistema de 4 níveis, para melhor adaptá-lo a diversas situações experimentais. Neste trabalho usarei este método no Capítulo V para o cálculo da CFMD40 em cristais podados com Cr^{+3} .

Em geral usa-se a aproximação do sistema de dois níveis quando a frequência ω da radiação de luz incidente no meio é quase ressonante com uma transição entre dois níveis de energia E_1 e E_2 do sistema, ou seja, ω -

$\omega_0 = (E_2 - E_1) / \hbar$. Neste caso como a interação é ressonante despreza-se a interação da luz com os outros níveis de energia do sistema descrevendo-o por um sistema de dois níveis. O cálculo é feito usando-se o formalismo da matriz de densidade para o hamiltoniano dado por:

$$H = H_0 + H' = \begin{bmatrix} E_2 & -\mu E \\ -\mu E & E_1 \end{bmatrix} \quad (3.56)$$

onde H_0 é o hamiltoniano inicial do sistema com dois níveis de energia E_1 e E_2 e H' é o termo da interação dipolo e E o campo elétrico). Deste cálculo obtém-se o seguinte resultado: [33]

$$\chi(E) = -\frac{2\alpha_0}{k} \frac{i + \delta}{1 + \delta^2 + |E/E_s|^2} \quad (3.57)$$

com os parâmetros:

T_1, T_2 taxa de relaxação longitudinal e transversa

$k = \omega/c$ vetor de onda (c é a velocidade da luz no vácuo)

$\delta = (\omega - \omega_0) T_2$ desintonia do centro da linha normalizada.

$|E_s|^2 = \frac{\hbar^2}{T_1 T_2 \mu^2}$ campo de saturação do centro da linha

$\alpha_0 = \frac{\mu^2 \Delta N_0 T_2 k}{2 \epsilon_0 \hbar}$ coeficiente de absorção do campo não saturado, ou seja, para $|E|^2 \ll |E_s|^2$.

A Figura 3.4 mostra o gráfico da parte real e da parte imaginária da suscetibilidade $\chi(E) = \chi'(E) - i \chi''(E)$ dada pela equação (3.57). Como $\chi''(E)$ é proporcional ao coeficiente de absorções, $\chi''(E)$ define a forma

de linha de absorção que é uma Lorentziana cuja meia largura em frequência, para baixa intensidade $|E|^2 \ll |E_s|^2$, é $\Delta\nu = (\pi T_2)^{-1}$ (onde $\nu = \omega/2\pi$).

A diferença de população $\Delta N = N_1 - N_2$ é dada por:

$$\Delta N = \Delta N_0 \frac{1 + \delta^2}{1 + \delta^2 + \left| \frac{E}{E_s} \right|^2} = \frac{\Delta N_0}{1 + I/I_s} \quad (3.58)$$

onde $I = |E|^2$, $I_s = |E_s|^2 (1 + \delta^2)$ e $\Delta N_0 = (N_1 - N_2)_0$ é a diferença de população sem o campo de radiação.

Figura 3.4. Gráfico da parte real (X') e imaginária (X'') da suscetibilidade no limite não saturado $\left(\mu^2 E_0^2 T_2 \tau / \hbar^2 \ll 1 \text{ ou } |E/E_s|^2 \ll 1 \right)$.

Para as frequências óticas (na região do visível) $\hbar \omega \gg k T$, logo a população N_2 excitada termicamente (isto é, dada pela distribuição de Boltzmann) é desprezível conseqüentemente $\Delta N_0 = N_0$, que é a concentração de átomos. Para $I \gg I_s$ vemos pela equação (3.58) que $\Delta N \rightarrow 0$ ou seja, $N_2 = N_1 = N_0/2$. A medida que a intensidade aumenta ΔN , χ' e χ'' diminuem. Este fenômeno, que é chamado saturação, fica mais claro quando reescrevemos a equação (3.57) da seguinte forma:

$$\chi(E) = - \frac{2\alpha_0}{k(1 + \delta^2)} \frac{i + \delta}{i + I/I_s} \quad (3.59)$$

Vemos que $I_s = |E_s|^2 (1 + \delta^2)$ é um campo de saturação que depende do fator de desintonia δ , ou seja, quanto maior δ maior é a intensidade de saturação I_s . Uma consequência da saturação é o alargamento da forma de linha Lorentziana de absorção do valor a campo zero $\Delta \nu = (\pi T_2)^2$ para o valor saturado $\Delta \nu_{\text{sat}} = \Delta \nu \sqrt{1 + |E/E_s|^2}$.

O fato de que a suscetibilidade de um sistema de dois níveis varia com a intensidade, ou seja, o sistema é um meio não linear foi feita pela primeira vez observado em 1968 por JAVAN e KELLEY [34] para explicar o fenômeno de autofocalização. ABRAMS e LIND [31] calcularam a eficiência do efeito de CFMD40 para o sistema de dois níveis cuja suscetibilidade é dada por (3.57) ou (3.59). Neste modelo usa-se a mesma geometria do modelo de YARIV/PEPPER (veja Figura 2.8) e supõe-se também que existem dois campos fortes (E_1 e E_2), dois campos fracos (E_p e E_c) e se obtém duas equações diferenciais que consideram o efeito da interação não-linear apenas para os campos fracos.

Supõe-se que o campo total $E = E_0 + \Delta E$ onde $E_0 = E_1 + E_2$ é a soma dos campos fortes (feixes de bombeamento) e $\Delta E = E_p + E_c$ é a soma dos campos fracos (o feixe de prova e o feixe conjugado gerado). Com

$E_0 \gg \Delta E$ faz-se uma expansão para a polarização $P(E) = \epsilon_0 \chi(E)$ até a primeira ordem em ΔE :

$$P(E_0 + \Delta E) = \epsilon_0 \chi_0 E_0 + \epsilon_0 \chi_0 \Delta E + \epsilon_0 E_0 \left[\left(\frac{\partial \chi}{\partial E} \right)_{E_0} \Delta E \right] \quad (3.60)$$

onde $\chi_0 = \chi(E_0)$ e o termo em colchete é devido a variação da suscetibilidade com o campo. Como o campo é complexo o cálculo da derivada é feito do seguinte modo:

$$\frac{\partial \chi}{\partial E} \Delta E \rightarrow \frac{1}{2} \left[\frac{\partial \chi}{\partial E} \Delta E + \frac{\partial \chi}{\partial E^*} \Delta E^* \right]$$

obtem-se então a partir de (3.60) e (3.57) ou (3.59):

$$P = \chi_0 \epsilon_0 E_0 + \epsilon_0 \chi_0 \Delta E - \frac{\epsilon_0 \chi_0}{I_s} \frac{(E_0 \Delta E^* + E_0^* \Delta E) \cdot E_0}{1 + |E_0|^2 / I_s} \quad (3.61)$$

Percebemos então que este modelo é semelhante ao de YARIV e PEPPER no sentido em que considera os termos da polarização até a terceira ordem no campo porém, ele difere no sentido em que na expressão (3.61) não aparece um fator $\chi^{(3)}$ constante mas aparece o efeito da saturação no denominador do termo de terceira ordem.

Uma vez calculada a polarização procedemos como usualmente é feito em Ótica Não Linear, ou seja, colecionamos os termos da polarização que se propagam da mesma forma (com a mesma frequência ω e vetor de onda k) que os campos E_p e E_c . Matematicamente isto significa tomar as componentes de Fourier da polarização:

$$P_j = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{i\omega_j t} \int_0^{2\pi} P e^{-i\vec{k}_j \cdot \vec{r}} \quad (3.62)$$

com $j = p, c$ (P_p e P_c são as componentes do feixe de prova e feixe conjugado respectivamente).

Na prática a conta é feita simplesmente por inspeção da equação (3.61) tomando os termos da polarização que se propagam como E_p e E_c : (este cálculo está feito detalhadamente no Apêndice B). O termo da polarização conjugada P_c (veja B.6 no Apêndice B) fica:

$$P_c = \frac{\epsilon_0 \chi_0}{1 + |E_0|/I_s} \left[E_c - (E_1^2 + E_2^2 + 2 E_1 E_2) \frac{E_p^*}{I_s} \right] \quad (3.63)$$

Usando a aproximação do pacote que varia lentamente (equação 3.23b) obtemos:

$$\frac{\partial \epsilon_j}{\partial z} = -i \frac{k_j}{2 n_0^2} P_j \quad j = c, p \quad (3.64)$$

Substituindo (3.64) para $\epsilon_c(z)$ e $\epsilon_p(z)$ obtemos o sistema de equações:

$$\frac{d \epsilon_c}{d z} = - \frac{i k}{2} \left[A(z') \epsilon_c + B(z') \epsilon_p^* \right] \quad (3.65a)$$

$$\frac{d \epsilon_p}{d z} = + \frac{i k}{2} \left[A(z') \epsilon_p + B(z') \epsilon_c^* \right] \quad (3.65b)$$

onde $A(z')$ e $B(z')$ são dados em (B.8) e (B.9) do Apêndice B.

A diferença do sistema de equações (3.65) para os sistemas de equações (3.41) ou (3.49) obtidos neste modelo é que os coeficientes $A(z')$ e $B(z')$ em (3.65) não são constantes. ABRAMS e LIND optaram por usar a aproximação WKB supondo que $A(z')$ e $B(z')$ variam muito rapidamente

(em distâncias $\sim \lambda$) comparados a $\epsilon_p(z)$ e $\epsilon_c(z)$ cuja distância típica de variação é $L \gg \lambda$, onde L é comprimento do meio não-linear. Desta maneira substituiu-se $A(z')$ e $B(z')$ em (3.65) pelos valores médios:

$$\langle A(z') \rangle = \frac{1}{\lambda} \int_0^\lambda A(z') dz'$$

e analogamente para $\langle B(z') \rangle$. Obtém-se então (veja Apêndice B para detalhes do cálculo):

$$\frac{d \epsilon_c(z)}{d z} = \eta \epsilon_c(z) + i \beta^* \epsilon_p^*(z) \quad (3.66a)$$

$$\frac{d \epsilon_p^*(z)}{d z} = -\eta^* \epsilon_p^*(z) + i \beta \epsilon_c(z) \quad (3.66b)$$

com

$$\eta = \frac{\alpha_0 (1 - i \delta) \left[1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)}{I_s} \right]}{(1 + \delta^2) \left\{ 1 + 2 \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)}{I_s} + \left[\frac{(\epsilon_1^2 - \epsilon_2^2)}{I_s} \right]^2 \right\}^{3/2}}$$

$$\beta = - \frac{\alpha_0 (1 - i \delta) 2 \frac{(\epsilon_1^2 - \epsilon_2^2)}{I_s}}{(1 + \delta^2) \left\{ 1 + 2 \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)}{I_s} + \left[\frac{(\epsilon_1^2 - \epsilon_2^2)}{I_s} \right]^2 \right\}^{3/2}}$$

O sistema de equações (3.66) é igual ao sistema (3.49) e sua solução é dada por:

$$\epsilon_c(0) = -i\beta \frac{\tan(\gamma L)}{\gamma + \eta_r \tan(\gamma L)} \epsilon_p(0) \quad (3.67)$$

com $\gamma^2 = |\beta|^2 - \eta_r^2$

ou escrevendo a expressão para a eficiência $R = \left| \frac{\epsilon_c(0)}{\epsilon_p(0)} \right|^2$:

$$R = \frac{|\beta| \tan(\gamma L)}{\gamma + \eta_r \tan(\gamma L)} \epsilon_p(0) \quad (3.68)$$

onde η_r é a parte real de η .

As mesmas observações que foram feitas para o modelo de YARIV e PEPPER com absorção, cuja solução é dada por (3.54). No caso $\eta_r^2 > |\beta|^2$ troca-se $\tan$ por $\tanh$, a condição de oscilação é $\tan(|\gamma|L) = -\gamma/\eta_r$ para γ real e $\tanh(|\gamma|L) = -\gamma/\eta_r$ no caso em que γ é imaginário e η_r é negativo. Escrevendo $\eta = \eta_r + i\eta_i$ nota-se que o fator $i\eta_i$ no sistema de equação (3.66) provoca apenas uma mudança de fase nos campos E_c e E_p igual ao fator iFz da equação (3.42) para o modelo YARIV-PEPPER. Pelos mesmos argumentos discutidos na seção 3.3 este termo não muda a energia total do feixe conjugado produzido mas apenas o perfil de intensidade do feixe fora do meio não linear para $z \gg L$. Este fato será estudado no Capítulo VII deste trabalho também.

Analisaremos agora a dependência da eficiência do meio não linear dada por (3.68) em função de três parâmetros do meio não linear: o produto do coeficiente de absorção (ou ganho para $\alpha < 0$) pelo comprimento adimensional do meio $\alpha_0 L$, a intensidade dividida pela intensidade de saturação I/I_s e o parâmetro de desintonia δ . A Figura 3.5 mostra R no caso em que o laser está sintonizado no centro da linha $\delta = 0$ para vários valores de $\alpha_0 L$ (com $\alpha_0 > L$). Neste caso a CFMD40 ocorre devido apenas a uma grade de absorção. Observa-se que o pico ocorre em geral para $I \sim I_s$. A

refletividade aumenta com o aumento de $\alpha_0 L$ mas não chega a um. Para se obter alta refletividade trabalha-se ou com o laser fora de sintonia ($\delta \neq 0$) ou com um meio invertido (meio com ganho em que $\alpha_0 < L$). A Figura 3.6 mostra o caso $\alpha_0 < 0$ para $\delta = 0$. Observa-se que a refletividade é muito mais alta que no caso do meio absorvedor (Figura 3.5) e que o pico da refletividade ocorre para $I \ll I_s$. Isto ocorre porque o ganho saturado é reduzido para $I > I_s$. Altas refletividades são obtidas (em meios absorptivos) trabalhando-se fora do centro da linha e aumentando α_0 . Isto ocorre devido a contribuição da rede dispersiva (e também devido a diminuição da absorção) que começa a dominar a refletividade. Para se manter a absorção constante deve-se aumentar α_0 na mesma proporção que $(1 + \delta^2)$ ou seja, deve-se manter o fator $\alpha_{ef} L = \alpha_0 L / (1 + \delta^2)$ constante.

Figura 3.5. Refletividade (ou eficiência da CFMD40) versus $|E/E_s|^2$ para vários valores de αL ($\alpha_0 L > 0$ absorção) no centro da linha $\delta=0$.

Figura 3.6. Refletividade versus $|E/E_s|^2$ para vários valores de αL ($\alpha_0 L < 0$ ganho) no centro da linha.

A Figura 3.7 mostra que pode-se obter alta refletividade aumentando-se δ mas mantendo $\alpha_{ef} L = 1.0$. Por exemplo, no caso $\delta = 8$ a refletividade máxima ocorre para $I = 60 |E_s|^2$ que equivale a $I = 0,95 I_s$ (lembre que $I_s = (1 + \delta^2) E_s^2$).

Figura 3.7. Refletividade versus $|E/E_s|^2$ para $\alpha_{\text{eff}} L = \alpha_0 L / (1 + \delta^2) = 1.0$ fixo. As curvas mostram o aumento de $|E/E_s|^2$ necessário para obter-se máximo R quando δ aumenta.

BROWN [35] aprimorou o modelo de ABRANS e LIND introduzindo o efeito da absorção e depleção dos campos de bombeio E_1 e E_2 . Em outras palavras é considerada a perda de energia dos campos de bombeio por absorção e a troca de energia com os campos de prova E_p e E_c pelo processo de mistura de ondas. Neste caso quatro equações acopladas para todos os campos precisam ser resolvidas numericamente. A Figura 3.8 mostra um exemplo desta solução para o caso $\delta = 15$ com $\alpha_{\text{ef}} L = 1$. A curva A é a solução obtida de (3.68) que prevê que a refletividade diverge para dois valores da intensidade de bombeio. A curva B é o resultado da solução numérica que considera o efeito de absorção mas não de depleção dos feixes de bombeio. A

curva c (pontilhada) mostra o resultado quando os efeitos de absorção e depleção são considerados para valores de I_p/I (onde $I = I_1 = I_2$ é a intensidade de bombeio e I_p a intensidade do feixe de prova) que variam de 0,001 a 1.

As curvas cheias mostram que a inclusão do efeito de depleção reduz a eficiência máxima que era praticamente infinita na curva pontilhada (onde apenas a absorção dos feixes de bombeio é considerada) para um valor finito que diminui quando a razão I_p/I aumenta. Isto permite averiguar a eficiência total do processo de CFMD40 (incluindo a energia de bombeio).

O modelo de ABRANS e LIND foi abordado com bastante detalhe pois o mesmo método de cálculo será utilizado para o modelo teórico que explica nossos resultados experimentais no Rubi e $GdAlO_3 : Cr^{+3}$ (Capítulo V).

Figura 3.8. Refletividade vs I/I_{sat} ($I_{sat} = (1 + \delta^2) |E_s|^2$) para o caso $\alpha_{eff} L = \alpha_0 L / (1 + \delta^2) = 1$ e $\delta = 15$. A curva cheia representa a solução de ABRANS e LIND [31] e as curvas pontilhadas e tracejadas a solução numérica de BROWN [35] (Figura retirada da referência [35]).

IV. Cristais Dopados com Cr^{+3} e CFMD40

4.1. Características Espectroscópicas de Cristais dopados com Cr^{+3}

Os cristais que estudamos são dopados com Cr^{+3} , íon que tem a mesma estrutura eletrônica do Ar e mais três elétrons de valência na camada externa 3d. Os níveis de energia do Cr^{+3} já são bem conhecidos tanto para o íon livre como para o íon submetido a um campo cristalino de simetria octaédrica. A estrutura dos níveis no Rubi é totalmente descrita considerando o íon num campo octaédrico com distorção trigonal e perturbação spin-órbita. A Figura 4.1a e b mostra o esquema de níveis e o espectro de absorção do Rubi.

O Rubi tem duas bandas bem largas (aproximadamente 1000 Å) no violeta e no verde [36]. Para emissão Laser o cristal é iluminado por uma lâmpada intensa ("flash lamp") que transfere os íons Cr^{+3} para as bandas $^4\text{T}_2$ e $^4\text{T}_1$. Os íons decaem não radiativamente em um tempo médio de $w_{32}^{-1} \sim 5 \cdot 10^{-8}$ seg para o nível superior ^2E . Este nível é composto de dois níveis 2A e E separados por 29 cm^{-1} devido a distorção trigonal do campo octaédrico. Como a transição é fracamente permitida, o tempo de vida espontâneo dos átomos de nível $\tau_0 \sim 3 \cdot 10^{-3}$ seg é longo (para transições permitidas $\tau \sim 10^{-8}$ seg) e o nível é chamado metaestável. As taxas de transição espontâneas entre os níveis $3 \rightarrow 2$ e $3 \rightarrow 1$ são $w_{31} \sim 3 \cdot 10^5 \text{ seg}^{-1}$ e $w_{32} \sim 2 \cdot 10^7 \text{ seg}^{-1}$, logo 99% dos átomos excitados em 3 vão para 2 enquanto 1% decaem para 1 (a eficiência quântica desta transição é ~ 1). Veja Figura 4.1a.

O Aluminato de Gadolínio é um composto de estrutura perovskita. Na sua dopagem o Cr irá substituir preferencialmente o Al. Este sistema foi estudado inicialmente para obtenção de lasers, pois apresenta duas vantagens sobre o Rubi:

Figura 4.1. Níveis de Energia e Espectro de Absorção do Rubi.

- a) Diagrama simplificado dos níveis de energia do Cr^{3+} no rubi
b) Espectro de absorção do estado fundamental (linha cheia) e estado excitado (linha pontilhada) do rubi normalizado a população 100%. N. Note que nesta notação K_0 e K_1 são os coeficientes de absorção do estado fundamental do cristal de rubi com $L=3 \text{ cm}$. Esta figura foi retirada da Referência [37].

- 1) $\tau_0 \sim 10 \text{ mseg}$ (~ 3 vezes maior que no Rubi) o que torna o bombeamento mais eficiente;
- 2) a banda de luminescência é mais larga (ocorre entre 722 nm e 724 nm).

No entanto, o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{3+}$ não foi utilizado em lasers devido a dificuldade de se obter cristais de boa qualidade ótica. Nossos cristais foram crescidos pelo Prof. H. Scheel (que aperfeiçoou sua técnica de crescimento) e pelo Dr. J. P. Andreeta.

O estudo da espectroscopia visível do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ foi feita inicialmente por MURPHY e OHLMAN [39] e mais recentemente por BASSO e COLABORADORES [40]. O diagrama de níveis é basicamente igual ao do Rubi com algumas diferenças. A separação de energia entre os níveis $2\bar{A}$ e $\bar{E}$ é $\Delta E = 18 \text{ cm}^{-1}$ e a relação entre τ_0 no Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ é inversamente proporcional ao quadrado da relação entre ΔE nos dois cristais. Isto significa que o fato de τ_0 ser maior para o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ ocorre devido a menor distorção cristalina. A Figura 4.2 mostra o espectro de absorção do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$.

A Alexandrita [41] ($\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$) foi o terceiro material dopado com Cr^{+3} , depois do Rubi e $\text{Cr} : \text{YAG}$, onde foi observada a ação laser. Entretanto, na Alexandrita a ação laser ocorre não apenas nas linhas R, como nos dois primeiros, mas também na banda vibrônica onde o laser funciona como um sistema de quatro níveis e é sintonizável de 700 a 818 nm.

As propriedades espectroscópicas do Cr^{+3} em Alexandrita são similares as do Cr^{+3} em outros óxidos hospedeiros com simetria octaédrica, incluindo Al_2O_3 e YAlO_3 (veja Figura 4.3). Eles têm duas linhas bem definidas $4A - 2E$ (linhas R) e duas bandas largas de absorção $4T_1, 4T_2$. A intensidade e a posição relativa destas transições varia entretanto de hospedeiro para hospedeiro. Em geral, se o Cr^{+3} está num sítio que possui simetria de inversão as transições por dipolo elétrico entre estados na configuração d^3 são proibidas. Como consequência o íon Cr^{+3} que reside numa simetria de inversão, como no YAlO_3 , tem uma transição de dipolo magnético de zero-fonon fraca. As transições assistidas por fonons ou vibrônicas tendem também a ser mais fracas no sítio com simetria de inversão que no sítio sem simetria de inversão como em Al_2O_3 . Por exemplo, o tempo de vida espontâneo do Cr^{+3} no YAlO_3 a 4K é 54 ms enquanto que no Al_2O_3 é 3.7 ms. Na Alexandrita o íon Cr^{+3} pode ocupar dois tipos de sítio, um com simetria de inversão e outro sítio sem simetria de inversão (com simetria de espelho - "mirror site") cujos tempos de vida espontâneos

são 60 ms e 1.32 ms respectivamente a 4K. As linhas R para o sítio com simetria de inversão R_{1i} e R_{2i} estão em 689.3 e 695.0 nm. Para o sítio sem simetria de inversão temos as linhas R_{1m} em 680.4 e R_{2m} em 678.5 nm. A 300K a seção de choque da linha R_{1m} é 2.10^{-19} cm^2 - 7 vezes maior que no Rubi. A porcentagem de íons Cr^{+3} nos sítios sem simetria de inversão é 78% e os restantes 22% ficam nos sítios com simetria de inversão.

Figura 4.2. Espectro de Absorção do íon Cr^{+3} no $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$. Foi subtraída a banda de absorção do Gd^{+3} , cujo máximo é em 290 nm. Figura retirada da Referência [40].

Figura 4.3. Espectro de Absorção da Alexandrita a temperatura ambiente segundo a Referência [41].

4.2. Cálculo da concentração (ou seção de choque) do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$

O coeficiente de absorção é dado pelo produto da seção de choque de absorção σ pela concentração N_0 de Cr^{+3} : $\alpha(\lambda) = N_0 \sigma(\lambda)$ (a absorção ocorre devido a uma transição no Cr^{+3}). No caso de um material onde existem valores tabelados na literatura para a seção de choque podemos determinar a concentração de Cr^{+3} através da medida do coeficiente de absorção α . Isto foi feito para as amostras de Rubi porém não pode ser feito para o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ devido a falta de uma amostra padrão (com seção de choque ou concentração conhecida). Nestes cristais conhecemos somente a concentração de Cr^{+3} usada na solução com a qual o cristal é crescido no entanto, a concentração de Cr^{+3} no cristal é, em geral, bastante diferente. Inicialmente a concentração de Cr^{+3} foi medida numa amostra de $\text{GdAl}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{+3}$ no IPEN pelos métodos de luminescência de raios-X e

absorção atômica. Obteve-se para esta amostra (com $\alpha_1 = 1.25 \text{ cm}^{-1}$ em $\lambda = 5145 \text{ Å}$) $(1.0 \pm 0.2)\%$ de Cr em relação ao GdAlO_3 , que equivale a $N = 1.9 \cdot 10^{20} \text{ Cr}^{+3}/\text{cm}^3$. Veremos nos Capítulos V e Capítulo VII que intensidade de saturação I_s calculada a partir deste valor (I_s é inversamente proporcional a seção de choque) não concorda com nossos resultados experimentais. Por este motivo resolvemos calcular a seção de choque do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ através da fórmula de Ladenberg que descrevemos a seguir.

A fórmula de Ladenberg é uma consequência da relação entre os coeficientes A e B de Einstein. A razão A/B é uma constante qualquer que seja a transição atômica, onde $A=1/\tau_0$ é a taxa de transição espontânea e B é proporcional a seção de choque de absorção. Para uma transição de dipolo elétrico num cristal uniaxial a fórmula de Ladenberg pode ser escrita da seguinte forma: [42]

$$\tau_{R_1}^{-1} = 16\pi n_0^2 v^2 c \int_{R_1} \left(\frac{2}{3} \sigma_{\perp} + \frac{1}{3} \sigma_{\parallel} \right) dv \quad (4.1)$$

onde consideramos acima o caso da linha R_1 do Rubi (para τ_{R_2} a expressão é similar). Em (4.1) v deve ser colocado em cm^{-1} , $\sigma_{\perp}$ e $\sigma_{\parallel}$ são as seções de choque perpendicular e paralela ao eixo c , n_0 é o índice de refração, e soma sobre as polarizações e a razão das degenerescências do estado fundamental para o excitado ($=2$) foi incluída. NELSON e STURGE [42] obtiveram um excelente acordo para o tempo de vida do Rubi calculado teoricamente e medido experimentalmente (a diferença obtida foi $\sim 5\%$). Por exemplo a $T = 20\text{K}$ na linha R_1 temos $\int \sigma_{\perp} dv = 2.0 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^{-1}$ e $\int \sigma_{\parallel} dv = 0.2 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^{-1}$. Usando (4.1) obtemos $\tau^{-1} = 235 \text{ seg}^{-1}$ enquanto o valor experimental é 262 seg^{-1} .

No nosso caso queremos calcular $N_0 = \alpha/\sigma$ a partir dos valores experimentais para $\alpha(v)$ e τ , logo (4.1) fica:

$$N = \frac{16\pi n_0^2 v^2 c}{\tau} \int (\alpha_a + \alpha_b + \alpha_c) dv \quad (4.2)$$

onde α_a , α_b e α_c são os coeficientes de absorção da linha $^4A_F - ^2E$ com o campo polarizado nas direções a , b e c respectivamente. A Figura 4.4 (a,b) mostra o espectro de absorção do $GdAlO_3 : Cr^{+3}$ a temperatura de 1.6K, 6K e 20K, com o campo polariza paralelo ao eixo a e o paralelo ao eixo b . A Figura 4.4c mostra a dependência da probabilidade de transição $W = \tau_0^{-1}$ com a temperatura, τ_0 é praticamente constante igual a 16 m sec para $T > 3.8^\circ K$ e depois decresce. A Tabela 4.1 mostra o valor do coeficiente de absorção integrado $\int \alpha dv$ e taxas de transição obtidos da Figura 4.4. Note que a absorção é mais intensa em $T = 1.6K$ devido ao menor valor de τ_0 (ou maior valor de W), a taxa de transição W é 1.8 vezes maior a $T = 1.6K$ que a $T = 6K$ o que é consistente, dentro do erro experimental, com o fator da área 2.2 do aumento da absorção integrada.

Tabela 4.1. Valores do coeficiente de absorção integrado das linhas R do $GdAlO_3$ e taxa de transição W obtidas da referência [40]

T (K)	$\int \alpha_b dv$ (cm ⁻²)	$\int \alpha_a dv$ (cm ⁻²)	W (seg ⁻¹)
1.6	11.8	6.3	151 ± 6
6	5.3	3.2	82 ± 6
20	5.1	3.2	82 ± 6

Figura 4.4. Espectro de Absorção da linha $^4A_2 - ^2E$, polarizado. A luz se propaga na direção do eixo c e com polarização paralela ao eixo a (parte a) e ao eixo b (parte b). Figura retirada da Referência [40].

Para o cálculo de N através de (4.2) não dispomos do valor experimental de $\int \alpha_c d\nu$. No Rubi o valor da seção de choque integrada na direção do eixo c é um fator ~ 0.1 (fazendo a média para as linhas R_1 e R_2) da seção de choque na direção perpendicular ao eixo c . Supondo que o mesmo fator se repete no $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ temos $\int \alpha_c d\nu = 0,51 \text{ cm}^{-2}$ o que nos dá $\frac{1}{3} \int (\alpha_a + \alpha_b + \alpha_c) d\nu = 3.0 \text{ cm}^{-2}$. Como estamos somando a absorção das duas linhas é preciso dividir o lado direito de (4.2) por 2 pois esta expressão foi calculada para uma linha, obtemos então para esta amostra $N = 2.7 \cdot 10^{19} \text{ Cr}^{+3}/\text{cm}^3$. Esta amostra tem $\alpha = 1,0 \text{ cm}^{-1}$ no pico da banda em $\lambda = 550 \text{ nm}$ e $\alpha_1 = 0,62 \text{ cm}^{-1}$ para $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ o que equivale a $\sigma = \alpha/N = 2,3 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$. Calculando $I_s = h \omega / \sigma \tau$ com $\tau = 10 \text{ ns}$ (para $T = 300\text{K}$) obtém-se $I_s = 1600 \text{ W/cm}^2$ para $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ que é o comprimento de onda do laser de Ar que usamos nas experiências.

4.3. Efeito não-linear (variação de índice de refração) em cristais dopados com Cr^{+3} e Nd^{+3}

A primeira experiência realizada de rede induzida por lasers foi feita em 1967 no Rubi com o intuito de demonstrar o efeito de "hole burning". A rede é formada devido a modulação de intensidade de luz que aparece devido a onda estacionária na cavidade. Esta modulação espacial de intensidade provoca uma modulação espacial do ganho (pois este é saturável) e do índice de refração complexo, este é o efeito conhecido como "hole burning" que significa queimar buraco. A primeira demonstração experimental direta deste efeito foi feita por BOERSCH e EICHLER [3] que observaram a formação da rede em um laser de Rubi através da difração de um feixe de prova por esta rede (veja Figura. 4.5). Observou-se que a taxa de decaimento desta rede era determinada pelo tempo de vida do estado excitado 2E do Rubi. Este foi o primeiro experimento onde se observou a formação de uma rede dinâmica induzida por laser (historicamente as redes óticas dinâmicas foram produzidas inicialmente por ultrassom). No mesmo ano

de 1967 GERRITSEN [43] usou um corante saturável como meio não linear para observar o efeito de autodifração. Neste trabalho demonstrou-se a aplicação deste experimento como holografia de tempo real e processamento de imagens.

Figura 4.5. Montagem experimental para investigação da difração em uma rede formada devido ao "hole-burning" espacial num laser de rubi. A Figura (retirada da Referência 9 pg. 6) não foi desenhada em escala, o bastão de rubi tinha 10 cm de comprimento e 1 cm de diâmetro.

Depois destes experimentos pioneiros vários trabalhos têm sido realizados em cristais dopados com Cr^{+3} ou Nd^{+3} e em corantes absorvedores saturáveis (discutiremos estes trabalhos na seção 4.4). A origem física do efeito não linear é a mesma, ou seja, a modulação de intensidade da luz cria uma modulação de população entre o estado excitado e o estado fundamental que gera uma rede de índice de refração complexo

cuja parte real chamamos de rede dispersiva e sua parte imaginária chamamos de rede absorptiva. Na rede dispersiva existe uma modulação da parte real do índice de refração e na rede absorptiva ocorre a modulação da parte imaginária do índice de refração (que é proporcional ao coeficiente de absorção). Podemos entender estes experimentos em cristais dopados com Cr^{+3} e Nd^{+3} e em corantes considerando-se um sistema de 3 níveis de energia (veja Figura 4.6).

Figura 4.6. Diagrama de Energia do Sistema de 3 Níveis.

Nos cristais dopados com Cr^{+3} o estado fundamental é o nível $4A_2$, o estado intermediário 2 é a banda $4T_2$ e o estado metaestável 3 é o nível $2E$ (veja Figura 4.1a). O elétron é bombeado do nível 1 para o 2 da onde decai rapidamente para o nível metaestável 3, como esta transição é muito rápida a população do nível 2 é desprezível. Analogamente em corantes os níveis 1 e 2 representam os singletos S_0 e S_1 , após a absorção o sistema relaxa rapidamente para o estado tripleto T_0 (nível 3) e é criada uma modulação de população entre os níveis 1 e 3.

Podemos calcular as populações N_1 , N_2 e N_3 correspondentes aos níveis 1, 2 e 3 através das equações de taxa. A priori supomos que a

relaxação dos níveis 2 para 3 é tão rápida que a população do nível 2 é desprezível. Além disso desprezamos o decaimento direto do nível 2 para o nível 3, pois a taxa de transição do nível 2 para o nível 3 é muito maior, desta forma aproximamos ~ 1 a eficiência quântica de bombeio do nível 3. Desta maneira, temos:

$$\frac{d N_1}{d t} = - \frac{\sigma I}{\hbar \omega} N_1 + \frac{N_3}{\tau_0} \quad (4.3a)$$

$$\frac{d N_3}{d t} = \frac{\sigma I}{\hbar \omega} N_1 - \frac{N_3}{\tau_0} \quad (4.3b)$$

$$N_0 = N_1 + N_3 \quad (\text{com } N_2 \sim 0) \quad (4.3c)$$

onde I é a intensidade de luz de frequência ω na transição entre os níveis 1 e 2, σ a seção de choque desta transição e τ_0 o tempo de vida espontâneo no estado metaestável 3. Como a população total N_0 é constante devemos ter $\frac{d N_1}{d t} = - \frac{d N_3}{d t}$ como pode ser observado nas equações (4.3a) e (4.3b). Substituindo-se de (4.3c) $N_1 = N_0 - N_3$ em (4.3b) obtém-se:

$$\frac{d N_3}{d t} = \frac{I}{I_s} \frac{N_0}{\tau_0} - \frac{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)}{\tau_0} N_3 \quad (4.4)$$

onde $I_s = \hbar \omega / \sigma \tau_0$.

Supondo-se que em $t=0$ o sistema está no estado fundamental, ou seja, $N_1 = N_0$ e $N_3 = 0$, e neste instante é ligado o laser com intensidade I de (4.4) e (4.3c) obtemos:

$$N_3(t) = N_0 \frac{\frac{I}{I_s}}{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)} \left(1 - e^{-t/\tau}\right) \quad (4.5a)$$

$$N_1(t) = \frac{N_0}{\left(1 + \frac{I}{I_s}\right)} \left(1 + \frac{I}{I_s} e^{-t/\tau}\right) \quad (4.5b)$$

$$\text{com } \tau = \frac{\tau_0}{1 + \frac{I}{I_s}}$$

Devido a distribuição da população entre o estado excitado 3 e o fundamental 1 a suscetibilidade do meio fica dada por:

$$\chi = \frac{N_1 \chi_1 + N_3 \chi_3}{N_0} + \chi_m \quad (4.6)$$

onde χ_i é a suscetibilidade do Cr^{+3} no estado i ($i = 1$ ou 3) e χ_m é a contribuição da matriz hospedeira (o cristal puro sem dopagem com Cr^{+3}). O índice de refração complexo n pode ser calculado através da equação de Claussius Mosoti (no sistema CGS):

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{N_1 \chi_1 + N_3 \chi_3}{N_0} + \chi_m \right) \quad (4.7)$$

chamado n_0 o índice de refração quando $I = 0$ (ou seja $N_1 = N_0$ e $N_3 = 0$) podemos escrever $n = n_0 + \Delta n$. Supondo $\Delta n \ll n_0$, veremos que $\Delta n/n_0 < 10^{-4}$, podemos expandir (4.7) e usando (4.5) obtemos:

$$\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} (\chi_1 + \chi_m) \quad (4.8a)$$

$$\Delta n = \frac{2\pi}{9} \frac{(n_0^2 + 2)^2}{n_0} \frac{(\chi_3 - \chi_1)}{1 + \frac{I}{I_s}} I (1 - e^{-t/\tau}) \quad (4.8b)$$

No caso estacionário ($t \gg \tau$) podemos escrever:

$$n = n_0 + \frac{n_2 \cdot I}{1 + I/I_s} \quad (4.9a)$$

$$\text{com } n_2 = \left(\frac{9}{2\pi} \right) \frac{(n_0 + 2)^2}{n_0} \frac{(\chi_3 - \chi_1)}{I_s}$$

A parte real de $n_2 = n'_2 - i n''_2$ é proporcional a diferença de polarizabilidade entre os estados 3 e 1:

$$n'_2 \propto \text{Re} \frac{|\chi_3 - \chi_1|}{N_0} \quad (4.10a)$$

É importante notar que na notação que estamos usando χ_i é a suscetibilidade, e χ_i/N_0 é a polarizabilidade atômica do Cr^{+3} no estado i . Na verdade, não chamamos a polarizabilidade de α , como é usual, para não confundir com α do coeficiente de absorção.

A parte imaginária de n_2 pode ser escrita em termo dos coeficientes de absorção α_1 e α_3 dos estados excitado e fundamental:

$$n''_2 = \frac{c}{2\omega} (\alpha_3 - \alpha_1) \frac{I}{I_s} \quad (4.10b)$$

A grande vantagem do sistema de três níveis é que a intensidade de saturação I_s (eq. 4.4) é muito menor que no sistema de dois níveis. Se não houvesse o nível metaestável 3 a intensidade de saturação do sistema de dois níveis seria da ordem de $\hbar\omega/\sigma T_1$ onde T_1 é o tempo de relaxação longitudinal da população. Em sólidos estes tempos são em geral muito curtos $\sim 10^{-9}$ seg provocando uma alta intensidade de saturação. Na presença do terceiro nível metaestável o bombeamento ótico transfere através do nível intermediário 2 a população do estado fundamental para o

estado excitado reduzindo a intensidade de saturação por várias ordens de magnitude. Entretanto, o tempo de resposta do sistema é determinado pelo tempo de vida do estado metaestável que é longo (veja equação 4.8b).

4.4. Experiências de redes induzidas por lasers e CFMD40 em cristais dopados com Cr³⁺

Como já mencionado na seção anterior a primeira observação de redes dinâmicas induzidas por laser em Rubi foi feita com o intuito de demonstrar experimentalmente o efeito de "hole burning" [3]. Posteriormente HILL [44] usou o Rubi para formação de holograma transientes formados pela interferência de dois feixes de um laser de Ar ($\lambda = 514 \text{ nm}$). Como não haviam dados sobre a polarizabilidade do Rubi no estado excitado a experiência foi justificada pela rede absorptiva pois o coeficiente de absorção do estado excitado já era conhecido na época (1971). EICHLER e colaboradores [45] estudaram o efeito da rede térmica no Rubi, criando a rede com o 2º harmônio de um laser pulsado de Nd : YAG e usando um feixe de He-Ne como feixe de prova, e observaram que a eficiência de difração da rede térmica é muito menor que a da rede devido a modulação de população. A primeira experiência de Biestabilidade Ótica em sólidos à temperatura ambiente [46] foi realizada no Rubi (a 77K e a 300K) com um laser de Rubi contínuo em ressonância com linha R₁. Entretanto, neste experimento a origem do efeito não linear não foi bem compreendida.

O Rubi foi também em 1978, o primeiro sólido utilizado para observação do fenômeno de CFMD40 com um laser de Ar [47]. Nesta experiência os autores usaram o formalismo teórico da CFMD40 para justificar a curva experimental da eficiência R em função da intensidade de bombeio:

$$R = \frac{(\alpha_3 - \alpha_1)}{a_1} \frac{I_1 I_2}{I_s^2} \left[1 - 4 e^{-\alpha_1 L} + 2 e^{-2\alpha_1 L} \right] \quad (4.11)$$

Expandindo a expressão (4.11) para $\alpha_1 L \rightarrow 0$ e de (4.10b) obtemos:

$$R = 4 \left(\frac{2\omega}{c} n_2' L I \right)^2 \quad (4.12)$$

a expressão (4.12) acima está errada pois difere do modelo de YARIV e PEPPER devido ao fator 4. Na expressão (4.11) só foi incluído o efeito de n_2'' (rede absorptiva) pois o valor de n_2' (rede dispersiva) não era conhecido para o Rubi. Entretanto os autores fizeram estimativas que a contribuição de n_2' seria quatro vezes maior que a de n_2'' . O cálculo foi feito usando as relações de Kramers-Kronig e modelando o espectro de n_2'' por Lorentzianas.

Depois deste trabalho no Rubi diversos outros materiais com Cr^{+3} e Nd^{+3} foram estudados: Nd^{+3} em vidro silicato [4.11], $\text{Nd}_x \text{La}_{1-x} \text{P}_5\text{O}_{14}$ [49], $\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$ (Alexandrita) [50], $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ [1,2], Nd^{+3} em alumina β [51], $\text{YAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ [52], Cr^{+3} em garnets [53], Cr^{+3} em cerâmica vítrea [54], $\text{Be}_2\text{Al}_2(\text{SiO}_3)_6 : \text{Cr}^{+3}$ (Esmeralda) [55], Cr^{+3} em diversos óxidos e fluoretos (neste trabalho foi feito um estudo sistemático de mais de dez compostos) [56].

A controvérsia sobre a origem dispersiva (devido a n_2') ou absorptiva (devido a n_2'') do efeito não-linear em cristais dopados com Cr^{+3} só foi esclarecida com a medida de n_2 em Rubi e GdAl_2O_3 através de um método interferométrico [1]. Neste trabalho colocamos o cristal num dos braços de um interferômetro de Michelson (feito com um laser de He-Ne). Usando espelhos dicróicos incidimos um feixe de Ar na mesma direção do feixe de He-Ne e observamos a variação de fase do interferômetro devido a presença do laser de Ar. Utilizando a técnica diferencial interferométrica conseguimos medir variações de fase menores que 10^{-2} rad o que nos permitiria medir n_2 menor que $10^{-10} \text{ cm}^2/\text{W}$. No Rubi obtivemos $n_2' = 11 n_2''$ e como a eficiência da CFMD40 é proporcional ao quadrado de n_2 isto significa que o efeito de n_2'' é completamente desprezível. A Tabela 4.2

mostra os resultados que obtivemos n_2' , n_2'' , I_s , τ_0 , n_0 e o valor da diferença de polarizabilidade $(\chi_3 - \chi_1)/N_0$ calculada usando os valores medidos de n_2' e I_s em (4.9b). Para o $GdAlO_3 : Cr^{+3}$ não calculamos o valor de n_2'' pois não existe na literatura a medida do coeficiente de absorção do estado excitado. Entretanto fizemos medidas [57] que indicavam também $n_2'' \ll n_2'$ para o $GdAlO_3 : Cr^{+3}$.

Recentemente o valor da diferença de polarizabilidade $(\chi_3 - \chi_1)/N_0$ do Cr^{+3} foi medido pela técnica de CFMD40 em nove cristais hospedeiros diferentes [56]. Obteve-se valores que variam de 0.05 a 0.11 Å para óxidos e 0.01 a 0.07 Å³ para fluoretos . Para o íon Ti^{+3} [58] em Al_2O_3 obteve-se 4 ± 2 Å³ e para o Nd^{+3} [59] varia entre 0.01 - 0.05 Å³ dependendo do material.

Tabela 4.2. Parâmetros importantes para o efeito não linear: τ_0 é tempo de vida espontâneo do estado excitado ($T = 300K$), I_s é a intensidade de saturação para $\lambda = 5145$ Å , $n_2 = n_2' - in_2''$ o índice de refração não linear , α_1 coeficiente de absorção do estado fundamental, n_0 índice de refração linear e $(\chi_3 - \chi_1) / N_0$ a diferença de polarizabilidade entre o estado fundamental e o estado excitado. O valor calculado para I_s do $GdAlO_3:Cr^{+3}$ (seção 4.2) desta tabela é diferente do valor anterior nas referências [1] e [2] devido a alteração de I_s o valor de $(\chi_3 - \chi_1)/N_0$ também foi alterado.

	$\frac{n_2'}{\alpha_1}$	$\frac{n_2''}{\alpha_1}$	$(I_s \text{ W/cm}^2)$	$\frac{\chi_3 - \chi_1}{N_0}$	τ_0	n_0
	$10^{-8} \text{ (cm}^3/\text{w)}$		$p/\lambda = 5145 \text{ Å}$	Å^3	(m seg)	
Rubi	$1.25 \pm .2$	.14	1500	0.17	3.8	1.77
$GdAlO_3 : Cr^{+3}$	3.8	—	1600	0.35	10	2.0

É importante observar que a medida de n_2 usando o processo de CFMD40 não esclarece sobre a origem absorptiva ou dispersiva do efeito não linear pois o sinal medido é proporcional a $|n_2|^2$. No caso do método interferométrico mede-se diretamente a variação de índice de refração pela variação da fase no interferômetro. No caso da experiência de autodifração (Veja Fig. 2.6) temos um processo (entre os vários possíveis) em que o campo espalhado E_s sai na mesma direção que o campo incidente E_1 . Desta maneira colocando um detetor na direção de E_1 mede-se $I = (E_1 + E_s)^2 \sim E_1^2 + 2 E_1 E_s$ supondo $E_s \ll E_1$. Se o campo E_s oscila com uma frequência diferente de E_1 o termo $E_1 E_s$ pode ser medido usando-se uma detecção heterodina (pois este termo oscila com a diferença de frequências). Esta técnica foi usada em vidros boratos dopados com fluoresceína [60] onde obteve-se $n_2' \sim 5 n_2''$, e no Rubi [61,62] onde os valores de n_2 da Tabela 4.2 foram confirmados.

Vimos no Capítulo III que quando existe uma diferença de frequência entre os campos que escrevem a rede isto corresponde a uma rede que se movimenta. Se a rede se movimenta muito rapidamente em relação ao tempo de resposta do meio não-linear o valor do campo espalhado tende a zero. Por este motivo foi observado em $YAlO_3 : Cr^{+3}$ uma largura de linha de 9.8 Hz compatível com o tempo de vida $\tau_0 = 34$ m seg [52].

V. CFMD40 em Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$

Neste Capítulo o efeito de CFMD40 é primeiramente estudado no limite de baixa intensidade com o intuito de se comparar sua eficiência com os valores de n_2 medidos em nosso trabalho anterior [1]. Na segunda parte deste capítulo descrevo o modelo teórico que fizemos para analisar a CFMD40 num meio do tipo Kerr com índice de refração não-linear saturável (para o regime $I \sim I_s$) e comparo os resultados deste modelo com resultados experimentais para o Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$.

5.1. CFMD40 no regime de baixa intensidade

No limite $I \ll I_s$ podemos desprezar a saturação do índice de refração não-linear dada pelo denominador da equação (4.8b) supondo $n = n_0 + n_2 I$ com n_2 dado por (4.9b). Neste limite podemos utilizar o modelo de YARIV e PEPPER [25] com a absorção linear (descrito na seção 2.3). Para os cristais de $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ e Rubi temos no limite de baixa intensidade (veja equação (3.52c))

$$\gamma^2 = |\bar{Q}|^2 e^{-2\alpha_0 L} - \alpha_0^2 \approx \alpha_0^2 \quad (5.1)$$

$$\therefore \gamma = i\alpha_0 \quad (5.2)$$

Neste caso em que γ é imaginário na equação (3.53) devemos substituir $\tan(i\alpha_0 L)$ por $\tanh(\alpha_0 L)$ obtendo:

$$r = -i \frac{\bar{Q}}{\alpha_0} e^{-\alpha_0 L} \left(\frac{1 - e^{-2\alpha_0 L}}{2} \right) \quad (5.3)$$

substituindo o valor de $\bar{Q}$ da equação (3.49) e n_2 de (3.47c) obtemos a refletância $R = r^2$ ou eficiência da CFMD40:

$$R = \left(\frac{4 n_2 \omega}{\alpha_1 c} \right)^2 e^{-\alpha_1 L} \left(\frac{1 - e^{-2\alpha_0 L}}{2} \right)^2 I_1 \cdot I_2 \quad (5.4a)$$

A expressão (5.4a) foi escrita em termos de $\alpha_1 = 2 \alpha_0$ (α_1 é o coeficiente de absorção do estado fundamental para a intensidade do campo). Podemos reescrever a equação (5.4a) considerando o fato de que os 4 feixes envolvidos no processo de CFMD40 têm um perfil gaussiano de intensidade. Este fato provoca um aumento de $4/3$ na eficiência da CFMD40 (veja Apêndice C para detalhes do cálculo).

$$R = G \cdot F \cdot I_1^2 \quad (5.4b)$$

com $G = \frac{4}{3} \left(\frac{4 n_2 \omega}{\alpha_1} \right)^2$.

$$F = e^{-2\alpha_1 L} \left(\frac{1 - e^{-\alpha_1 L}}{2} \right)^2$$

em (5.4b) colocamos $I_2 = I_1 e^{-\alpha_1 L}$ devido a nossa configuração experimental o segundo feixe de bombeamento é obtido pela reflexão do primeiro por um espelho colocado atrás do cristal.

O fator G é um parâmetro que depende das propriedades do material enquanto que F depende apenas do comprimento adimensional de absorção do meio $\alpha_1 L$. Para os materiais que usamos neste trabalho o efeito não-linear ocorre devido a população do estado excitado por isso n_2 é proporcional ao coeficiente de absorção α_1 . Logo o fator n_2/α_1 é uma constante do material que não depende da concentração de Cr^{+3} por exemplo. Substituindo as expressões e (4.9b) e (4.4b) para n_2 e I_s vemos

que $G = \left[\sigma \tau_0 (\chi_3 - \chi_1) / N_0 \hbar \right]^2$ onde nesta notação $(\chi_3 - \chi_1)/N_0$ é a diferença de polarizabilidade entre os estados excitado e fundamental. Como G não depende de α_1 a dependência da eficiência em α_1 recai apenas na função $F = F(\alpha_1 L)$ cujo valor máximo ocorre para $\alpha_1 L \sim 0.8$. Isto significa que independentemente do material e no limite de intensidade que a equação (5.4) é válida a eficiência é máxima para $\alpha_1 L \sim 0.8$. Este fato não é surpreendente pois em ótica não linear a intensidade do campo gerado é proporcional ao quadrado do comprimento do meio (veja 3.27) porém devido a absorção dos campos de bombeio a intensidade é máxima para $\alpha_1 L \sim 1$.

Montagem Experimental

Para observação da CFMD40 utilizamos a montagem experimental convencional esquematizada na Figura 5.1. O laser de Ar (contínuo com $P = 800 \text{ mW}$ em $\lambda = 514.5 \text{ nm}$) passa por uma pá dentada girante ("chopper") e incide no cristal. Este feixe E_1 é refletido pelo espelho e_2 gerando o feixe contrapropagante E_2 . O separador de feixe S_2 divide parte do feixe incidente gerando o feixe de prova E_p e um feixe de referência que é detectado no detector D_1 (um fotodiodo). O feixe de prova E_p incide fazendo um pequeno ângulo ($\theta \sim 2^\circ$) com o feixe de bombeio E_1 . O feixe conjugado E_c se propaga no sentido contrário de E_p e é observado no detector D_2 (fotodiodo) através do separador S_1 .

Nesta primeira parte do trabalho estamos interessados em analisar o comportamento do campo conjugado no regime de baixa intensidade onde temos pela equação (5.4) $R \propto I_1 I_2$, ou seja, para intensidade do feixe $I_c \propto I_1 I_2 I_p$. Neste caso, como a intensidade do sinal é baixa, é conveniente usar um separador de feixe S_2 com refletância $\sim 50\%$ para o feixe de prova. Para trabalharmos no limite de baixa intensidade a experiência foi feita sem focalizar o laser de Ar e o raio médio do feixe na posição do cristal foi $w = 0,76 \text{ mm}$. A determinação do perfil de intensidade do laser na posição do cristal foi feita varrendo-se um orifício de $25 \mu\text{m}$ de

diâmetro ("pinhole") através de um estágio de deslocamento micrométrico e focalizando a luz transmitida num fotodiodo. Sendo o perfil de intensidade gaussiano dado por:

L : LENTE CONVERGENTE FOCO = f

e₁, e₂: ESPELHOS COM AJUSTE MICROMÉTRICO

S₁, S₂: BEAM SPLITTER

MONTAGEM EXPERIMENTAL

Figura 5.1. Montagem experimental para experiência de CFMD40. Os dois feixes fortes E₁ e E₂ estão contrapropagantes, o feixe E₂ é obtido pela reflexão de E₁ no espelho e₁ e E_p através do separador de feixe S₂.

$$I(r) = I_0 e^{-2r^2/w^2} \quad (5.5)$$

$$\text{com } I_0(r) = \frac{2P}{\pi w^2}$$

o máximo valor do perfil de intensidade gaussiano é I₀ mas adota-se como valor da intensidade o seu valor médio I = P/π w² (onde P é a potência total). O parâmetro w, que é conhecido como raio médio do perfil gaussiano, é

determinado pela posição do perfil em que a intensidade é $1/e^2$ do seu valor máximo.

Para a determinação da eficiência R da CFMD40 medimos com o osciloscópio o valor máximo do sinal do feixe conjugado detectado no detector 2 (veja Figura 5.1.). Usando a pá dentada girante ("chopper") podemos acompanhar a evolução temporal do sinal que tem sua forma característica com mostra a Figura 5.2. A Figura 5.2 mostra a mesma forma de evolução temporal para o $GdAlO_3$ que a observada por LIÃO e BLOOM para o Rubi [47]. A diferença é que o tempo de vida espontâneo τ_0 é 3 vezes maior no $GdAlO_3 : Cr^{+3}$ do que no Rubi. A vantagem de se observar o sinal no osciloscópio é que podemos distinguir o sinal do feixe conjugado da luz espalhada (pois esta é uma onda quadrada no tempo) o que é útil principalmente quando o sinal é pequeno. Para determinar o valor da eficiência usamos a montagem experimental da Figura 5.3. Medimos o sinal do feixe de prova usando a reflexão dos espelhos M_2 que é alinhado de maneira a que o feixe retorne contrapropagante, ou seja, percorra o mesmo caminho que o feixe E_c até chegar ao detector 1. O filtro neutro F de transmissão conhecida ($\sim 1\%$) é colocado para atenuar o sinal de tal forma que sua intensidade seja da ordem da do feixe E_c . No cálculo da eficiência consideramos a parcela de luz perdida na reflexão das superfícies do cristal e do espelho e_1 (note que neste configuração $I_2 = I_1 e^{-\alpha_1 L}$).

Resultados experimentais típicos estão mostrados na Figura 5.4 para o $GdAlO_3 : Cr^{+3}$. A Figura 5.4a mostra o gráfico Log-Log da eficiência contra intensidade de bombeio I_1 (lembre que $I_2 \propto I_1$). A tangente da reta é ~ 2 o que demonstra a dependência quadrática da eficiência com a intensidade dada pela equação (5.4). Com o intuito de comparar os resultados experimentais com os calculados teoricamente usamos os valores de n_2 medidos previamente [1] (veja Tabela 4.2) chamamos $R = \Gamma I_1^2$. A Tabela 5.1 mostra os parâmetros dos cristais, Γ_{cal} (o valor calculado para Γ) e Γ_{exp} (o valor experimental para Γ) obtido a partir da tangente do gráfico $R \times I_1^2$.

Figura 5.2. Evolução temporal da CFMD40 em $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (parte a) quando o feixe de prova passa pela pá girante (chopper). Esta figura é análoga à observada no Rubi [47] (parte b) com a diferença que no $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ $\tau_0 = 10$ mseg e no Rubi $\tau_0 = 3.8$ mseg. No caso que os feixes E_1 e E_2 são bloqueados temos a curva temporal da parte c (este caso corresponde ao esquema da Figura 5.1).

Figura 5.3. Montagem usada para calibração da eficiência da CFMD40.

Tabela 5.1. Características das amostras e eficiência $\Gamma = R/I_1^2$ obtidas. Nesta tabela α é o coeficiente de absorção da intensidade para a linha $\lambda = 5145 \text{ \AA}$ do laser de Ar, L o comprimento do cristal, F o fator que aparece na equação (5.4), G_{exp} e G_{cal} são os valores medidos e calculados para Γ .

	$\alpha_1(\text{cm}^{-1})$	L (cm)	F $\times 10^{-2}$	$G \times 10^{-5}$ $(\text{cm}^2/\text{w})^2$	Γ_{cal} 10^{-6} $(\text{W}/\text{cm}^2)^{-2}$	Γ_{exp} 10^{-6} $(\text{W}/\text{cm}^2)^{-2}$	$\frac{\Gamma_{\text{exp}}}{\Gamma_{\text{cal}}}$
Rubi	0.70	0.57	4.5	1,72	1,06	.48 $\pm$ 0.8	.45
GdAlO ₃ :Cr ⁺³ (amostra 1)	1.25	0.14	1.9	8,6	1,54	.87 $\pm$ 0.14	.56
GdAlO ₃ :Cr ⁺³ (amostra 2)	1.7	0.26	5.3	8,6	4,74	1.5 $\pm$ 0,7	.32

Figura 5.4. Resultados experimentais da eficiência R da CFMD40 do $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (amostra 1). Esta medida foi feita com os feixes de bombeio focalizados com raio médio $w = 0.76 \text{ mm}$. (a) gráfico Log-log $R \times I_1$; (b) gráfico linear de $R \times I_1^2$ do qual obtém-se $\Gamma_{\text{exp}} = R/I_1^2$ que é a tangente da reta. Esta figura foi retirada da Referência [2].

Na Tabela observa-se uma variação sistemática entre Γ_{cal} e Γ_{exp} . O valor médio calculado para todas as amostras foi $\Gamma_{cal} = (2.1 \pm .17) \Gamma_{exp}$. Embora medidas de eficiência de CFMD40 e de n_2 sejam difíceis de serem obtidas com precisão, uma melhor concordância entre Γ_{exp} e Γ_{cal} era esperada. O erro estimado na medida de n_2 foi de aproximadamente 15% [1], logo o erro propagado para o cálculo de $\Gamma_{cal} \propto n_2$ é 30%. Como o erro experimental na determinação de Γ_{exp} foi ~25% a incerteza do fator $\Gamma_{exp}/\Gamma_{cal}$ é ~55%. Apesar desta incerteza observamos uma variação sistemática $\Gamma_{exp}/\Gamma_{cal} = .48 \pm .09$, ou seja, $\Gamma_{exp} \sim .5 \Gamma_{cal}$ com incerteza ~21%. Esta diferença pode ser atribuída à dispersão de n_2 (a variação de n_2 com λ) pois os valores de n_2 foram medidos para $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ e a CFMD40 foi feita com $\lambda = 5145 \text{ \AA}$. Este ponto será discutido novamente no Capítulo IX deste trabalho onde analisaremos também os resultados experimentais do Capítulo VII.

Existe uma diferença de um fator de 4 entre os valores de Γ_{cal} da Tabela 5.1 e os valores de Γ_{cal} por nós publicados ("table 2" na ref. [2]). Este erro que cometemos é bastante comum na literatura de CFMD40, ele surge em vários artigos e inclusive no livro sobre Conjugação de Fase [63]. O problema aparece quando tomamos o termo de 3ª ordem da expansão da polarização, tomemos por exemplo o termo que se propaga na direção de E_c :

$$P_c = \chi^{(3)} \left(|E_1|^2 + |E_2|^2 \right) \epsilon_c + \chi^3 E_1 E_2 E_p^* + \chi^3 E_2 E_1 E_p^*$$

como os últimos termos da expressão acima são iguais muitos trabalhos só consideram um termo. Porém, cada um destes termos representa uma das duas redes formadas na CFMD40 (veja Figura 2.7). Na seção III.3 mostramos que quando consideramos o fator correto, ou seja, $2 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_p^*$, no limite em que o campo E_c é fraco obtemos o mesmo valor usando o modelo de YARIV/PEPPER que calculando a eficiência das duas redes e considerando o campo total como a soma do campo espalhado por cada rede.

5.2. Modelo Teórico para CFMD40 em meio com n_2 saturável

Apresento a seguir o cálculo da eficiência de CFMD40 considerando o efeito da saturação do índice de refração não-linear n_2 . Reescrevendo a equação (4.6) para a susceptibilidade complexa para o caso estacionário ($t \rightarrow \infty$) de (4.5) temos:

$$\chi = \chi_0 + \Delta\chi \quad (5.6)$$

com: $\chi_0 = \chi_1 + \chi_m$.

$$\Delta\chi = \chi^* \frac{s}{1+s}$$

com $s = I/I_s$ e $\chi^* = (\chi_3 - \chi_1)$

O cálculo é feito seguindo o mesmo procedimento de ABRAMS e LIND [31] (veja seção 3.5) com a diferença que a expressão (3.59) para suscetibilidade do sistema de dois níveis é do tipo $\chi \propto (1+s)^{-1}$ enquanto que em (5.5) $\chi \propto s/(1+s)$. Na equação (5.6) temos a parte real de χ^* é proporcional a diferença de polarizabilidade e a parte imaginária é proporcional a diferença de coeficiente de absorção, tal como n_2 nas equações (4.10).

Como estamos trabalhando com cristais com alto índice de refração ($n \sim 2$) é preciso considerar o efeito do campo local, que no CGS é dado por:

$$P(\chi) = \frac{\chi}{1 - \frac{4\pi}{3} \chi} \quad (5.7)$$

onde χ é dado por (5.6). Supondo que $\Delta\chi \ll \chi$, o que equivale a supor $\Delta n \ll n_0$ tal como foi feito na equação (4.8), expandindo (5.8) obtemos:

$$P(\chi_0 + \Delta\chi) = \frac{\chi_0 E}{1 - \frac{4\pi}{3} \chi_0} + \frac{\Delta\chi E}{\left(1 - \frac{4\pi}{3} \chi_0\right)^2} \quad (5.8)$$

onde o primeiro termo de (5.8) é a polarização linear P^L dá origem ao índice de refração n_0 dado por (4.8a). O segundo termo representa a polarização não linear P^{NL} . Das equações (5.7) e (5.9) obtemos:

$$P^L = \left(\frac{n_0^2 + 2}{3}\right) \chi_0 E \quad (5.9a)$$

$$P^{NL} = \frac{\left(n_0^2 + 2\right)^2}{9} \frac{\chi^* s}{1 + s} E \quad (5.9b)$$

onde com (4.9b) a equação (5.9b) pode ser escrita em termos de n_2 :

$$P^{NL} = \frac{n_0}{2\pi} n_2 \frac{s}{1 + s} E \quad (5.9c)$$

a equação (5.9c) representa uma não linearidade saturável semelhante a que aparece no sistema de dois níveis (equação 3.59). Por isso não podemos usar o modelo de Yariv-Pepper mas temos que usar o mesmo método utilizado por ABRAMS e LIND [31]. Expandimos a polarização P^{NL} de (3.60) e (5.9) obtemos:

$$P(E_0 + \Delta E) = \frac{n_2 n_0}{2\pi} \left[\frac{s}{1 + s} E + \frac{1}{I_s} \frac{|E_0|^2 \Delta E + E_0^2 \Delta E^*}{(1 + s)^2} \right] \quad (5.10)$$

com a expressão da polarização através da equação (3.23a) obtemos a equação para as amplitudes dos de prova:

$$\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial z} = A(z') \varepsilon_c + B(z') \varepsilon_p^* \quad (5.11a)$$

$$\frac{\partial \epsilon_p}{\partial z} = -A(z') \epsilon_p - B(z') \epsilon_c^* \quad (5.11b)$$

com:

$$A(z') = \frac{\alpha_1}{2} + i n_2 \frac{\omega}{c} \left[\frac{s}{1+s} + \frac{s}{(1+s)^2} \right]$$

$$B(z') = i n_2 \frac{\omega}{c} \frac{E_0^2}{I_s (1+s)^2}$$

$$s = \frac{|E_0|}{I_s}$$

Temos então um sistema de equações que é resolvido usando a aproximação WKB de modo análogo ao feito para as equações (3.65). Os detalhes do cálculo estão no Apêndice B. Apresentarei aqui apenas o resultado do cálculo para eficiência da CFMD40:

$$R = \left[\frac{|\beta| \tan(\gamma L)}{\gamma + \eta_r \tan(\gamma L)} \right]^2 \quad (5.12a)$$

com:

$$i\beta^* = i n_2 \frac{\omega}{c} \frac{2 \sqrt{I_1 I_2}}{\left[1 + \frac{2(I_1 + I_2)}{I_s} + \frac{(I_1 - I_2)}{I_s} \right]^{3/2}} \quad (5.12b)$$

$$\eta_r = \frac{\alpha_1}{2} + n_2 \frac{\omega}{c} \left\{ 1 - \frac{1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}}{\left[1 + \frac{2(I_1 + I_2)}{I_s} + \left(\frac{I_1 + I_2}{I_s} \right)^2 \right]^{3/2}} \right\} \quad (5.12c)$$

$$\gamma^2 = \beta^2 - \eta_r^2 \quad (5.12d)$$

Nota-se que as equações (5.11) são iguais a equações (3.49) e (3.65), o mesmo sistema de equações, apenas os parâmetros são diferentes. Os mesmos comentários feitos sobre o efeito de Modulação de Fase para os modelos discutidos no Capítulo III cabem também aqui. Nas equações (B.27) e (B.28) do Apêndice B aparecem os termos que dão origem a Modulação de Fase.

Podemos observar que no limite $I \ll I_s$ a (5.12) recai em (3.54a) que é a expressão para o modelo de YARIV/PEPPER com absorção linear (para comparar estas duas expressões é preciso lembrar que $\alpha_1 = 2\alpha_0$). Além disso quando $\beta \ll \eta_r$, o que ocorre quando $\chi' \propto n_2$ ou I são pequenos, temos $\gamma = i\eta_r$ e (5.12) fica:

$$R = \left| \frac{\beta}{\eta_r} \right|^2 \left[\frac{\tanh(\eta_r L)}{1 + \tanh(\eta_r L)} \right]^2 \quad (5.13)$$

Nas equações (5.12) desprezamos o efeito da absorção não linear n_2'' pois no Rubi n_2'' é dez vezes menor que n_2' (para o $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ o valor de n_2'' também deve ser pequeno). Neste caso, $\eta_r = \alpha_1/2$ e (5.13) torna-se igual a (5.4a). Podemos inferir o efeito de saturação da expressão (5.13), que é válida quando $s \sim 1$ no caso que $\beta \ll \alpha_1$ (n_2 é baixo). Neste caso considerando, por exemplo $I_1 = I_2 = I$, temos de (5.12) a (5.13):

$$R \propto |\beta|^2 \quad (5.14a)$$

com

$$\beta = 2n_2 \frac{\omega}{c} \frac{s}{(1 + 4s)^{3/2}} \quad (5.14b)$$

$$s = \frac{I}{I_s} \quad (5.14c)$$

onde o valor máximo de β dado por (5.14b) ocorre para $s = 1/2$, ou seja, $I_T = I_s$ onde a intensidade total $I_T = I_1 + I_2 = 2I$. Este fato pode ser generalizado para a expressão (5.11) quando temos $\beta \gg \eta_r = \alpha_1$ e $\gamma \sim \beta$:

$$R = \left[\frac{\tan(\beta L)}{1 + \alpha_1 \tan(\beta L)/2\beta} \right]^2 \quad (5.15)$$

a eficiência cresce com o valor de β até que este chegue próximo a condição de oscilação:

$$\tan(\beta L) = -2\beta/\alpha_1$$

que ocorre para βL um pouco maior que $\pi/2$ (quando $\beta/\alpha \gg 1$). Ou seja, como a eficiência aumenta com o aumento de β a condição de β máximo $s = 1/2$ deve em geral ser a condição de máxima eficiência.

Como mencionado no item 5.1 é conveniente trabalhar com $\alpha_1 L \sim 1$ para obtenção de maior eficiência na CFMD40 nestes sistemas. Neste caso o efeito da absorção dos campos de bombeio é importante. Como não estávamos interessados no problema que considera as quatro equações para todos os campos tal como feito por BROW [35] (veja Capítulo III) foi adotado em tratamento eurístico. Considera-se o valor da intensidade média dos campos ao longo do cristal:

$$\langle I \rangle = \frac{I}{L} \int_0^L e^{-\alpha_1 z'} dz' = \frac{I_0 (1 - \exp(-\alpha_1 L))}{\alpha_1 L} \quad (5.16)$$

onde I é a intensidade incidente e $\langle I \rangle$ o valor médio da intensidade. Desta maneira o efeito de absorção dos feixes de bombeio é considerado colocando-

se $\langle I \rangle$ ao invés da intensidade incidente I (que pode ser I_1 ou I_2). No fator $\sqrt{I_1 I_2}$ consideramos que $I_1(z') = I_1 e^{-\alpha_1 z'}$ e $I_2(z') = I_2 e^{-\alpha_1(z'-L)}$ logo $\sqrt{I_1(z') I_2(z')} = I_1 I_2 e^{-\alpha_1 L/2}$ onde I_1 e I_2 são as intensidades incidentes no cristal. Além disso na nossa montagem experimental (Figura 5.1) o feixe E_2 é obtido pela reflexão do feixe E_1 após sua passagem pelo cristal logo $I_2 = I_1 e^{-\alpha_1 L}$. Levando estes fatores em consideração (e lembrando que não consideramos o efeito de n_2'') o fator β de (5.12) para nossa experiência fica:

$$\beta = 2 n_2 \left(\frac{\omega}{c} \right) \frac{s \cdot e^{-\alpha_1 L}}{\left[1 + 2s \left(1 + e^{-\alpha_1 L} \right) + s^2 \left(1 - e^{-\alpha_1 L} \right)^2 \right]^{3/2}} \quad (5.17)$$

onde $s = I_1 / I_s$ e I_1 é a intensidade de luz incidente no cristal.

Finalmente, para comparação desta expressão teórica com os resultados experimentais, é preciso considerar as perdas de reflexão da luz na superfície do cristal.

5.3. Efeitos de Saturação na CFMD40 em Rubi e $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$

Utilizaremos o modelo apresentado na seção 5.2 para interpretar o efeito de saturação da CFMD40 em cristais dopados com Cr^{+3} . Este modelo pode ser usado também para corantes orgânicos onde, assim como em cristais dopados com Cr^{+3} e Nd^{+3} , o efeito de CFMD40 ocorre devido a formação de uma grade de população que gera um padrão de índice de refração complexo (onde há contribuição de n_2' e n_2''). Efeitos de saturação em CFMD40 foram explicados em corantes [32] e em Rubi [64] através do modelo de ABRAMS/LIND [31] para o sistema de dois níveis. O nosso modelo teórico é mais adequado para estes experimentos pois prevê o

efeito de n_2' e n_2'' na grade de população. O sistema de dois níveis só prevê o efeito da rede absorptiva (devido a n_2'') no centro da linha ($\delta = 0$) onde modulação de população é máxima. No entanto o comportamento destes dois modelos com a saturação é similar (compare a equação (5.8) com (3.66) por isso o modelo de dois níveis explica razoavelmente o comportamento de R com a saturação.

O efeito de saturação foi observado primeira na experiência de CFMD40 em Rubi [47] (Figura 5.5), em beta alumina: Nd³⁺ [51] (Figura 5.6) por nós em Rubi (Figura 5.7 e 5.8) e GdAlO₃:Cr³⁺ (Figura 5.9). Observa-se o desvio do comportamento quadrático $R \propto I^2$ para intensidades muito menores (~10 vezes menores) que a intensidade de saturação. Inicialmente achamos que este efeito de saturação estava associado a efeitos transversos (autofocalização e formação de anéis) tal com mencionado em trabalhos anteriores em Rubi [47] e vapor de Na [29]. Veremos porém nos Capítulos VII e VIII que na nossa experiência os efeitos transversos só devem mudar a forma do feixe conjugado (seu padrão de intensidade) e não sua potência total. Nesta experiência focalizamos o feixe conjugado no detetor para medir toda a potência do feixe e não apenas sua parte central. Calculamos as curvas $R \propto I_1^2$ usando a equação (5.12) (o modelo teórico com saturação) com mesmos parâmetros das Tabelas 4.2 e 5.1 na seção 5.1 (veja Figura 5.7 e Figura 5.8). As curvas teóricas das Figuras 5.7 e 5.8 mostram que o desvio da dependência quadrática ocorre mesmo para valores de $s = I_1/I_s$ muito pequenos. A Figura 5.5 mostra a curva de eficiência versus intensidade I_{eff} obtida experimentalmente por LIAO e BLOOM [47] em $\lambda = 514$ nm no Rubi. Neste trabalho usou-se $I_{eff} = \left(I_1 I_2 e^{-\alpha_1 L} \right)^{1/2} = 0,27 I_1$, onde I_1 e I_2 são as intensidades de bombeio incidentes e devido a montagem experimental igual ao da Figura 5.1) $I_1 e^{-\alpha_1 L}$. Usou-se neste experiência um cristal de Rubi com $L = 1.3$ cm, $\alpha_1 = 1.0$ cm⁻¹ consequentemente $n_2 = 1.7 \cdot 10^{-8}$ cm²/W de acordo com os dados da Tabela 4.2. Usando estes dados calculamos a curva teórica (Figura 5.5) pela expressão (5.9) (veja

curva pontilhada na Figura 5.5). Obtivemos um excelente acordo entre os valores de intensidade para o máximo valor da eficiência teórico ($I_{\text{eff}} = 400 \text{ W/cm}^2$) e experimental ($I_{\text{eff}} \sim 450 \text{ W/cm}^2$). Porém a curva teórica prevê eficiência máxima de 10,4% enquanto que experimentalmente obtém-se $\sim 3\%$. A curva Log-Log da Figura 5.3a é uma reta com coeficiente angular ~ 2 para $I_{\text{eff}} < 100 \text{ W/cm}^2$ (o que equivale a $I_1 = 370 \text{ W/cm}^2$) o que representa uma dependência quadrática $R = \Gamma_{\text{exp}} I_1^2$ com $\Gamma_{\text{exp}} = 0,26 \cdot 10^{-7} \text{ (cm}^2/\text{W})^2$. Para este cristal a equação (5.4) prevê $\Gamma_{\text{cal}} = 7,7 \cdot 10^{-7} \text{ (cm}^2/\text{W})^2$ que é ~ 30 vezes maior que Γ_{exp} , enquanto que na seção 5.1 obtivemos $\Gamma_{\text{cal}} \sim 1,7 \Gamma_{\text{exp}}$. Acreditamos que o problema na medida de LIAO e BLOOM foi que o cristal era muito grande ($L = 1,3 \text{ cm}$) o que dificultou a superposição dos três feixes I_1 , I_2 e I_p .

A Figura 5.9a mostra a curva experimental $R \times s = I_1/I_s$ obtida em $\lambda = 514 \text{ nm}$, numa amostra de $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ com $L = 0,15 \text{ cm}$ e $\alpha_1 = 2,5 \text{ cm}^{-1}$. A curva experimental ajustada numericamente da Figura 5.7a indica máxima eficiência $R \sim 5\%$ para $s \sim 0,6$ em bom acordo com o modelo teórico (da equação (5.9) que prevê $R = 20\%$ para $s = 0,66$).

Observamos nas Figuras 5.6, 5.8 e 5.9 que o comportamento de saturação da CFMD40 é muito bem explicado pelo modelo teórico. Porém, tal como obtido no item 5.1 deste capítulo (onde analisamos o regime de baixa intensidade $I \ll I_s$), as curvas calculadas apresentam sempre uma eficiência maior que as curvas experimentais.

Neste capítulo comparamos os valores experimentais da eficiência de CFMD40 em Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ com o modelo teórico que é calculado usando os valores de n_2 previamente medidos. Obtivemos um bom acordo (pela primeira vez na literatura para cristais dopados com Cr^{+3}), tanto no regime não saturado (para $I \ll I_s$ e $R \propto I_1^2$) quanto no regime saturado $I \sim I_s$. Nós mostramos que o efeito de saturação na eficiência da CFMD40 aparece devido à saturação do meio não linear, contradizendo os trabalhos anteriores onde isto foi atribuído a efeitos de autofocalização.

Figura 5.5. Experiência de CFMD40 feita por LIAO e BLOOM [47]. Os pontos experimentais são bem aproximados pela reta pontilhada no regime de baixa intensidade $I_{\text{eff}} \ll 100 \text{ W/cm}^2$. A curva teórica (linha cheia) foi calculada através do nosso modelo teórico (eq. 5.11) usando os valores de n_2' da Tabela 4.2.

Figura 5.6. Refletividade ou eficiência da CFMD40 em alumina $\beta'' : \text{Nd}^{+3}$ (segundo a Referência [51]). Note que o desvio da curva experimental com a dependência quadrática ocorre para $I \ll I_s \sim 16 \text{ W/cm}^2$.

Figura 5.7. Efeitos de Saturação observados na CFMD40 em rubi.

- a)** a curva pontilhada ajusta os pontos experimentais. A curva teórica (linha cheia) foi colocada através do modelo teórico (equação (5.11)) usando os valores de n_2 da Tabela 4.2.
- b)** gráfico dos resultados experimentais versus I_1^2 . A tangente da curva dá o valor $\Gamma_{\text{exp}} = 0.46 \cdot 10^{-6} (\text{W}/\text{cm}^2)^{-2}$. O valor calculado é $\Gamma_{\text{cal}} = 1.06 \cdot 10^{-6} (\text{W}/\text{cm}^2)^{-2}$.

Figura 5.8. Curva experimental (linha pontilhada) e calculada da eficiência de CFMD40 contra o parâmetro de saturação $S = (I_1 + I_2)/2$. Amostra de rubi com $L = 0.125$, $\alpha_1 = 1.0 \text{ cm}^{-1}$. O valor de n_2' usado no cálculo teórico foi obtido da Tabela 4.2.

Figura 5.9. Idem a Figura 5.8 para uma amostra de $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ com $L = 0.15 \text{ cm}^{-1}$ e $\alpha = 2.5 \text{ cm}^{-1}$.

VI. Espectro de $\chi(3)$ das linhas da Alexandrita

A vantagem de usar-se o efeito não-linear num sistema de três níveis em sólidos é de se obter um valor para a intensidade de saturação muito mais baixo que no sistema de dois níveis (tal como discutido nos Capítulos II, III e IV). Desta forma, o efeito não-linear tem sido investigado sempre bombeando o nível metaestável indiretamente através de uma banda larga. Foram estudados vários tipos de cristais dopados com Cr^{+3} , Nd^{+3} , Eu^{+3} e Ti^{+3} [1-3,44-65] através de várias técnicas (medida interferométrica de n_2 , redes induzidas por laser, CFMD40, CFMQD40 e ^{de duas ondas} mistura) sempre bombeando-se o estado metaestável indiretamente ~~de duas ondas~~. Apenas uma vez foi observado o efeito não-linear em ressonância com uma linha estreita (a linha R do rubi) onde usou-se um laser de rubi para a observação do efeito de Biestabilidade Ótica [46]. A biestabilidade ótica foi observada no range de temperaturas de $T = 96\text{K}$ a $T = 300\text{K}$ porém a origem do efeito não-linear não ficou bem compreendida. Segundo os autores não seria esperado o efeito de Biestabilidade Ótica a $T = 300\text{K}$, onde as linhas R são relativamente largas $\Delta\nu \sim 10\text{ cm}^{-1}$ em relação à separação de 29 cm^{-1} entre as duas linhas, pois a linha do laser ($\lambda = 6934$) estava no meio das duas linhas R_1 e R_2 (respectivamente centradas em $\lambda = 6943\text{ Å}$ e $\lambda = 6949\text{ Å}$) consequentemente as contribuições de cada linha teriam sinais contrários (devido a diferença de sinal da desintonia) e se anulariam. A observação do efeito não-linear a $T = 300\text{K}$ foi então atribuída à variação de índice de refração provocada pela população do estado excitado. O objetivo principal foi a observada do efeito de Biestabilidade Ótica (pela primeira vez em sólidos a $T = 300\text{K}$) porém como o laser emitia num comprimento de onda fixo o espectro do efeito não linear não pode ser estudado.

Figura 6.1. Esquema da Montagem Experimental utilizada para o estudo da espectroscopia não-linear $\chi(3)$ na alexandrita a $T = 96K$. Medimos a intensidade do campo espalhado E_1^- em variando o comprimento de onda do laser de corante em torno da linha R_1 ($\lambda = 6801 \text{ \AA}$).

Neste trabalho estudamos o espectro do efeito não-linear da alexandrita ($\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{+3}$), usando um laser sintonizável na região das linhas R. Escolhemos a alexandrita por ter uma seção de choque na linha R_1 ($\lambda = 6801 \text{ \AA}$) sete vezes maior que a da linha R_1 do rubi resultando numa intensidade de saturação menor ($I_s = \hbar\omega/\sigma\tau$) e maior não-linearidade. Nosso objetivo era observar, pela primeira vez neste tipo de sólido, o efeito não-linear numa linha onde ocorre a ação laser do material. Em semicondutores tem sido feito o estudo de espectroscopia não-linear em transições de "exciton" e "biexciton" [66]. MARUANI e col. [67] observaram cinco ordens no "forward-scattering" (espalhamento para frente) numa

ressonância de dois fótons em CuCl. Esta técnica é o que chamamos no Capítulo III de autodifração (veja seção 3.2.3 e Figura 2.6) onde dois campos E_0^+ e E_0^- produzem uma rede que espalha várias ordens de difração. Esta técnica apresenta a desvantagem de que a condição de casamento de fase ("phase matching") não é automaticamente satisfeita, por isso é preciso utilizar amostra fina e ângulo θ (entre os feixes E_0^+ e E_0^-) pequeno.

Na nossa experiência usamos a técnica de autodifração no arranjo experimental mostrado na Figura 6.1. Os dois feixes E_0^+ e E_0^- (o feixe E_0^+ é obtido através do separador de feixe S e o espelho E) incidem, focalizados por uma lente de distância focal $f = 1$ m, no cristal formando um ângulo θ_0 . Observamos o feixe espalhado E_1^- (que corresponde a direção K_1^- da Figura 2.6) que é a difração do feixe E_0^- na ordem $m = -1$ da rede. Das equações (3.30a e 3.34a) a amplitude do campo E_1^+ é dada por

$$|\epsilon_1^+|^2 \propto \left(\chi^{(3)} \epsilon_0^{+*} \epsilon_0^- \epsilon_0^- L \right)^2 \left[\frac{\sin(\Delta k_1^- L)}{\Delta k_1^- L} \right]^2 \quad (6.1)$$

com $\Delta K_1^- \sim \frac{K \theta^2}{8}$ onde $\theta = \frac{\theta_0}{n_0}$ é o ângulo entre os feixes dentro do cristal (θ_0 é o ângulo mostrado na Figura 6.1 no ar). O menor ângulo possível na nossa montagem experimental foi $\theta_0 \sim 0,01$ rad (neste caso a distância entre o espelho E e o separador S foi de 1 cm e a distância de S no cristal 1 m) que com $n_0 = 1,74$ [41] e $L = 0,24$ cm nos dá $\Delta K_1^- L = 0,09$ e $\left[\sin(\Delta K_1^- L) / (\Delta K_1^- L) \right]^2 \sim 1$. Trabalhamos num criostado com nitrogênio líquido pois a largura de linha a $T = 96$ K é ~ 4 vezes menor que na temperatura ambiente [68] (a 300 K $\Delta\nu = 8$ cm⁻¹) e consequentemente a seção de choque é maior e I_s é menor.

Figura 6.2. Laser de corante usado no experimento.

O laser de corante pulsado usado neste experimento é bombeado pelo 2º harmônico ($\lambda = 532 \text{ nm}$) do laser de Nd:YAG. A cavidade é esquematizada na Figura 6.2. O segundo harmônico do Nd:YAG incide perpendicular à página. A cavidade é fechada de um lado pela cunha e do outro pela rede de difração em Littrow. O expansor de feixe é um conjunto de prismas, todos com ângulo $\alpha = 38^\circ$. A luz entra em cada prisma em ângulo de Brewster e sai normal à face oposta. A ampliação de largura do feixe em cada prisma é $(\cos \alpha / \cos \theta_B)$ sendo que a ampliação do nosso conjunto de quatro prismas é de aproximadamente 4. Este expansor de feixe é utilizado para que o feixe ilumine um grande número de linhas da rede de difração, aumentando a resolução do laser. Os prismas tem "coating" anti-refletor nas faces em que a luz sai normal. O corante circula na cubeta forçado por uma bomba com acoplamento magnético.

A rede de difração de Littrow pode girar através de um suporte micrométrico controlado pelo motor de passos. A saída de luz neste laser se dá pela cunha. Utilizamos um estágio de amplificador para aumentar a potência do laser. Este amplificador nada mais é que uma cubeta, também com corante circulando e bombeada pelo segundo harmônico do Nd:YAG, mas sem nenhuma cavidade. Através da focalização do feixe de bombeio

consegue-se que este amplificador opere saturado, diminuindo as flutuações de intensidade do oscilador. As características desse laser operando com corante Oxazina 725 são: largura de pulso de 7 nseg, potência de pico de 2 MWtts, resolução de 0.1 cm^{-1} , polarização vertical. A medida do sinal é feita com uma fotomultiplicadora (ou um fotodiodo). O sinal da fotomultiplicadora é coletada pelo sistema de aquisição de dados através de um integrador de gate. O sistema de aquisição [68] é sincronizado ao laser através do seu "trigger" (gatilho) que dispara o processo de interrupção do microcomputador que controla o comprimento de onda do laser de corante através de um motor de passo.

A Figura 6.3 mostra o espectro da linha R_1 ($\lambda = 6801$ e $T = 96\text{K}$) para vários valores de potência do laser que foi focalizado no cristal com uma lente de 40 cm de distância focal. Fizemos a medida da transmitância da amostra em função do comprimento de onda e depois calculamos o espectro de absorção onde notamos claramente a saturação da absorção e o alargamento da linha.

A Figura 6.4 mostra o espectro do sinal espalhado $|E_1|^2$ em função de $\lambda \sim 680 \text{ nm}$ que é assimétrico, comportamento que não era esperado num sistema de dois níveis. Inicialmente pensamos que esta assimetria ocorre-se devido a efeitos de autofocalização (que no sistema de dois níveis ocorre para $\delta > 0$) e autodefocalização (para $\delta < 0$) que mudam o perfil de intensidade dos feixes de bombeio alterando a eficiência de espalhamento. Este argumento foi dado para explicar a forma da linha na experiência de CFMD40 em vapor de Na [69], entretanto no nosso experimento ele não deve ser válido pois a amostra é fina e o efeito não-linear é pequeno. Percebemos então que deveríamos incluir um termo no cálculo da polarização não-linear que levasse em conta a mudança de polarizabilidade do sistema devido a população do estado excitado tal como descrito pela equação (4.6) que pode ser reescrita como:

$$\chi = \frac{N_1 \chi_1 + N_2 \chi_2}{N_0} + \chi_m \quad (6.2)$$

Figura 6.3. Espectro de Absorção de R_1 para várias potências do laser. A parte **a)** mostra o espectro de absorção não saturado com um valor de pico $2\omega_0 = 16.7 \text{ cm}^{-1}$ (a medida foi feita colocando-se um filtro de baixa transmissão $T \sim 10^{-4}$ na frente do cristal). A parte **b)** mostra o espectro saturado (neste caso não usamos nenhum filtro) onde o valor de pico é 2.3 cm^{-1} .

Figura 6.4. Espectro experimental do campo espalhado E_1^+ na experiência de autodifração (também conhecida como "forward phase conjugation" ou conjugação de fase para frente) na alexandrita a $T = 96K$. A separação entre os dois picos ao espectro é de $0,82 \text{ cm}^{-1}$, a esta temperatura a largura de linha da absorção linear (isto é não saturada) é de 2 cm^{-1} [70].

onde neste caso como estamos trabalhando com um sistema de dois níveis χ_{NR} é a contribuição não ressonante para a suscetibilidade do sistema que ocorre devido a interação da luz com todos os outros níveis de energia do sistema que estão fora de ressonância. A suscetibilidade total do sistema fica sendo a soma da suscetibilidade do sistema de dois níveis (equação (3.57)). Somando (3.57) com (6.2) e usando a equação (3.58) obtemos a suscetibilidade total

$$\chi = - \frac{2\alpha_0}{k(1 + \delta^2)} \frac{i + \delta - A I/I_s}{1 + I/I_s} \quad (6.3a)$$

com

$$A = \frac{k}{4\alpha_0} (\chi_2 - \chi_1) \quad (6.3b)$$

$$I_s = |E_s|^2 (1 + \delta^2) \quad (6.3c)$$

considerando que a parte real de A é proporcional à diferença de polarizabilidade entre o estado excitado e o estado fundamental e sua parte imaginária é proporcional à diferença do coeficiente de absorção entre o estado excitado e o estado fundamental. A absorção do estado excitado 2E ocorre para a banda 4T_1 cuja energia é equivalente a absorção de 1 foton com $\lambda = 3400 \text{ \AA}$ (veja o espectro de absorção da alexandrita na Figura 4.3).

Podemos notar que no sistema de dois níveis puro (com $A = 0$) da equação (6.3) vemos que no centro da linha ($\delta = 0$) a suscetibilidade é imaginária. Com a inclusão do termo em A na equação (6.3) temos uma contribuição real para χ no centro da linha que é proporcional a diferença de polarizabilidade. Da equação (6.3) calculamos $n_2 \propto \chi^{(3)} = \frac{\partial \chi}{\partial |E_s|^2}$:

$$\chi^{(3)} = \frac{2\alpha_0}{k} \frac{i + \delta + A}{\left(1 + \delta^2 + \left|E/E_s\right|^2\right)} \quad (6.4)$$

Percebemos que a parte real de $\chi^{(3)}$ perde sua característica de simetria que ocorre quando $A = 0$, $\chi_R^{(3)}$ é ímpar e $\chi_I^{(3)}$ é par (onde $\chi_R^{(3)}$ e $\chi_I^{(3)}$ são as partes reais e imaginárias de $\chi^{(3)}$ respectivamente) consequentemente $|\chi^{(3)}|^2$ e o espectro de $|E_1|^2 \propto |\chi^{(3)}|^2$ são pares. Medimos para o rubi uma diferença de polarizabilidade $\sim 0,27 \text{ \AA}^3$ (veja no Capítulo IV que este valor é calculado a partir de n_2). Para estimar o valor de A supomos que o valor da diferença de polarizabilidade da alexandrita é igual a do rubi e usando $\sigma = 0.9 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ para linha R_1 da alexandrita [41] obtemos o valor $A = 2.1$ (note que A é uma constante adimensional). As duas contribuições de $\chi_R^{(3)} = \chi_{R_1}^{(3)} + \chi_{R_2}^{(3)}$ são $\chi^{(3)}_{R_1} \propto \delta / (1 + \delta^2 + |E/E_s|^2)$ e $\chi^{(3)}_{R_2} \propto A / (1 + \delta^2 + |E/E_s|^2)$, ou seja, $\chi^{(3)}_{R_2}$ é a contribuição dos outros níveis fora de ressonância que é proporcional a diferença de polarizabilidade entre os estados. O fato do valor esperado para A ser ~ 1 indica que o efeito da diferença de polarização na suscetibilidade $\chi^{(3)}$ total do sistema é da mesma ordem do efeito da suscetibilidade do sistema de dois níveis, porisso estas duas contribuições precisam ser consideradas. Entretanto é preciso considerar o alargamento inhomogêneo da forma de linha que muda a dependência da suscetibilidade com a saturação alterando $\chi^{(3)}$. Serão necessário também mais resultados experimentais, um estudo sistemático da dependência do sinal com a saturação e a temperatura, para compreensão do problema.

VII. Automodulação Transversal de Fase em cristais de Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$

Os efeitos e Automodulação de Fase Transversal e Temporal foram qualitativamente discutidos no Capítulo II (seção 2.6). Antes de dar início a formulação matemática do efeito de Automodulação Transversal de Fase vou discutir sinteticamente a propagação de feixe gaussiano e a difração de Kirchhoff. Em seguida, mostrarei como o efeito de Automodulação Transversal de Fase pode ser calculado usando a integral de difração de Kirchhoff. Analisarei na Automodulação Transversal de Fase os efeitos da saturação do índice de refração não-linear, os efeitos da parte real n_2' e parte imaginária n_2'' de n_2 , sua evolução temporal e comparemos os resultados experimentais com calculos onde usamos os parâmetros n_2 e I_s discutidos no Capítulo IV.

7.1. Propagação de Feixes Gaussianos

A solução mais simples da equação de Maxwell para um meio linear (a equação (3.20) com $P_{NL} = 0$) é uma onda plana. A onda plana, ou seja, $E = E_0 \cos(\omega t + kz)$, não existe na natureza pois carrega uma energia infinita. No entanto, como muitas vezes usamos feixes de luz diâmetro $D \gg \lambda$ o comprimento de onda da luz, a onda plana é uma boa aproximação para discussão de muitos fenômenos físicos. Porém este não é o caso do fenômeno que tratarei neste e no próximo capítulo. Existem soluções da equação de onda do tipo $E = \epsilon(r, \varphi, z) \cos(\omega t - kz)$ onde r e φ são as coordenadas polares do plano transversal a direção de propagação z . Neste caso a amplitude complexa do campo $\epsilon(r, \varphi, z)$ varia conforme a posição no plano transversal e a posição z . Neste trabalho usaremos apenas campos que se propagam com simetria cilíndrica (em que não existe dependência em φ). Supomos que o campo do laser tem um perfil gaussiano que é uma solução da equação (3.20) chamada modo TEM_{00} [15]:

$$E(r,z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left\{ -i \left[kz - \eta(z) + \frac{k r^2}{2 R(z)} \right] - \frac{r^2}{w(z)^2} \right\} \quad (7.1a)$$

com:

$$w_{(z)}^2 = w_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right) \quad (7.1b)$$

$$R = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2} \right) \quad (7.1c)$$

$$\eta(z) = \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_0} \right) \quad (7.1d)$$

$$z_0 = \left(\frac{\pi w_0^2 n_0}{\lambda} \right) \quad (7.1e)$$

n_0 = índice de refração linear.

A equação (7.1) representa um campo com uma distribuição de amplitude gaussiana $\epsilon(r) \propto e^{-r^2/w^2(z)}$ onde a distância r para que $\epsilon(r)$ caia por um fator $1/e$ de seu valor máximo $w(z)$ é conhecido como raio médio do feixe ou "spot size" (veja equação (4.5)). Da equação (7.1) temos para um feixe de luz que se propaga na direção positiva de z que o valor mínimo de w ocorre em $z = 0$ onde $w(z = 0) = w_0$ e raio de curvatura é $R(z = 0) = \infty$. Para $z < 0$ o feixe está convergindo e $R(z) < 0$ enquanto que para $z > 0$ o feixe diverge e $R(z) > 0$. O parâmetro R é o raio de curvatura da esfera que mais se aproxima superfície de fase constante do campo.

7.2. Integral de Difração de Kirchhoff

Consideremos a difração de uma onda plana monocromática por uma abertura finita S num anteparo opaco infinito. Supomos que anteparo seja plano, com sistema de coordenadas retangular (x_0, y_0) e a região de observação também plana com coordenadas (x_1, y_1) a uma distância Z do anteparo (veja Figura (7.1)). A amplitude complexa do campo num ponto (x_1, y_1) do anteparo é dada pela integral de difração de Kirchhoff [76]:

$$\varepsilon(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda} \iint_{\Sigma} \frac{e^{-ikr_{01}}}{r_{01}} \cos(\hat{n} \cdot \hat{r}_{01}) \varepsilon(x_0, y_0) dx_0 dy_0 \quad (7.2)$$

Figura 7.1. Difração

Faremos uma série de aproximações supondo que Z é muito maior que a máxima dimensão linear da abertura Σ , e que vamos observar o campo numa região próxima ao eixo z . Neste caso, podemos considerar $\cos(\hat{n} \cdot \hat{r}_{10}) \sim 1$ com precisão de 5% para ângulos menores que 18° . Nestas condições podemos aproximar $1/r_{10}$ por $1/z$. Note que na exponencial r_{10} , não pode ser aproximado por Z pois como k é muito grande ($k \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$

para a luz visível) esta aproximação geraria erros de fase maiores que 2π . Fazendo estas aproximações temos:

$$\varepsilon(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda Z} \iint_{\Sigma} e^{-ik r_{01}} \varepsilon(x_0, y_0) dx_0 dy_0 \quad (7.3)$$

Consideramos agora o fator r_{01} :

$$r_{01} = \sqrt{Z^2 + (x_1 - x_0)^2 + (y_1 - y_0)^2} = Z \sqrt{1 + \left(\frac{x_1 - x_0}{Z}\right)^2 + \left(\frac{y_1 - y_0}{Z}\right)^2} \quad (7.4)$$

lembrando que $\sqrt{1+b} = 1 + \frac{b}{2} - \frac{b^2}{8} + \dots$ temos:

$$r_{01} \approx Z \left[1 + \frac{x_0^2 + y_0^2}{2Z^2} - \frac{x_1 x_0 + y_1 y_0}{Z^2} + \frac{x_1^2 + y_1^2}{2Z^2} \right] \quad (7.5)$$

esta é a aproximação de Fresnel. Substituindo (7.5) em (7.3) temos:

$$\varepsilon(x_1, y_1) = \frac{i}{\lambda Z} e^{-ik \left[z + \frac{(x_1^2 + y_1^2)}{2z} \right]} \iint_{\Sigma} e^{ik \left(\frac{2x_1 x_0 + 2y_1 y_0 - x_0^2 - y_0^2}{2z} \right)} \varepsilon(x_0, y_0) dx_0 dy_0 \quad (7.6) \quad ?$$

A aproximação de Fraunhofer consiste em supor que z é grande o suficiente para tornar desprezível o fator $\frac{(x_0^2 + y_0^2)}{2z}$ na exponencial do integrando da equação (7.6).

Como estamos interessados em estudar a Modulação Transversal de Fase para um feixe gaussiano no modo TEM_{00} que tem simetria cilíndrica vamos resolver agora o problema da difração por um obstáculo circular de raio a . Neste caso é conveniente usarmos coordenadas polares para o plano

do anteparo (r, φ) e para o plano de observação (R_1, ϕ) . Fazendo as mudanças de coordenadas:

$$\begin{aligned} x_0 &= r \cos \varphi & x_1 &= R_1 \cos \phi \\ y_0 &= r \sin \varphi & y_1 &= R_1 \sin \phi \end{aligned} \quad (7.7)$$

escrevendo o campo $\varepsilon(x_1, y_1)$ de (7.6) em coordenadas cilíndricas:

$$\varepsilon(R_1, \phi) = \frac{i}{\lambda z} e^{-ik \left[z + \frac{(R_1^2)}{2z} \right]} \int_0^a \int_0^{2\pi} e^{ik \frac{(2r R_1 \cos(\varphi - \phi) - r^2)}{2z}} \varepsilon(x_0, y_0) r dr d\varphi \quad (7.8)$$

$\varepsilon(n, \rho)$

lembrando a definição da função de Bessel de ordem zero:

$$J_0(u) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{i u \cos v} dv \quad (7.9)$$

em (7.8) integrando na variável φ :

$$\varepsilon(R_1, \phi) = \frac{i}{\lambda z} e^{-ik \left[z + \frac{(R_1^2)}{2z} \right]} \int_0^a e^{-ik r^2 / 2z} J_0 \left(\frac{kr R_1}{z} \right) r dr \varepsilon(n, \phi) \quad (7.10)$$

$\varepsilon(x_0, y_0)$

A equação (6.11) representa a fórmula da difração de Fresnel para uma abertura circular de raio a . Este problema fica simplificado se usamos a aproximação de Fraunhofer que neste caso consiste em aproximar $\exp(-ik r^2 / 2z) \sim 1$. Neste caso usando as propriedades das funções de Bessel temos:

$$\varepsilon(R_1, \phi) \propto \frac{J_0 \left(k a R_1 / z \right)}{\left(k a R_1 / z \right)} \quad (7.11)$$

7.3. Automodulação Transversal de Fase

Podemos também usar a fórmula de Kirchhoff para estudar a propagação de um feixe de luz após sua passagem por um meio fino cujo índice de refração dependa da posição $n = n(x_0, y_0)$. Este meio pode ser uma lente esférica, esférica, cilíndrica, etc. ou também um meio não-linear onde $n = n_0 + n_2 I(x_0, y_0)$ e $I(x_0, y_0)$ é o perfil de intensidade da luz.

Para o caso do feixe gaussiano TEM_{00} temos simetria cilíndrica logo de (7.1) $I(r) \propto (\epsilon(r))^2 \propto e^{-2r^2/w^2}$, o perfil de intensidade é gaussiano com simetria cilíndrica (ou radial em r) e consequentemente no meio não linear $n = n(r)$. Vamos calcular a amplitude do campo $\epsilon(k_{\perp})$ de um feixe gaussiano após ter propagado através de uma amostra não linear fina, de espessura L . Este cálculo é feito supondo-se que a distância Z entre o plano de observação e o meio não-linear é muito maior que w (o raio do feixe na posição da amostra). Supomos também $R_1 \ll Z$ para que a aproximação de Fresnel seja válida.

O problema da difração de um feixe $\epsilon(r)$ de simetria cilíndrica na aproximação de Fresnel é resolvido a partir da expressão (7.6) fazendo-se a transformação para coordenadas cilíndricas de modo análogo ao feito para obtenção da equação (7.10):

$$\epsilon(R_1) = \frac{i}{\lambda z} e^{-ik \left[z + \frac{(R_1^2)}{2z} \right]} \int_0^{\infty} e^{-ik r^2 / 2z} \epsilon(r) J_0 \left(\frac{kr R_1}{z} \right) r dr \quad (7.12)$$

onde da equação (7.1) temos:

$$\epsilon(r) \propto E_0 \frac{w}{w_0} e^{-ik r^2 / 2R} e^{-r^2 / w^2} \quad (7.13)$$

onde w e R são o raio médio.

Para o cálculo do perfil de intensidade $I(R_1) \propto \epsilon(R_1) \epsilon^*(R_1)$

temos:

$$|\epsilon(R_1)|^2 = \frac{i}{(\lambda z)^2} |E_0|^2 \frac{w_0^2}{w^2} \left| \int e^{-i\phi_L} e^{-r^2/w^2} J_0\left(\frac{k R_1 r}{z}\right) r dr \right|^2 \quad (7.14)$$

com

$$\phi_L = \frac{k}{2} \left(\frac{1}{z} + \frac{1}{R} \right) r^2 \quad (7.15)$$

onde w e R são o raio médio e raio de curvatura do feixe gaussiano na posição do cristal (que é o meio não-linear). Em primeiro lugar supomos que o cristal de espessura L é fino em relação a z_0 , $L \ll z_0$. O comprimento de Rayleigh z_0 definido em (6.1) é a distância a partir de zero (onde w atinge seu valor mínimo w_0) na qual $w(z) = \sqrt{2} w_0$. Se $L \ll z_0$ podemos desprezar a variação de w e de R ao longo do cristal, ou seja, supomos que w e R são constantes. Além disso é preciso termos que $L \ll z_f$ que é o comprimento de autofocalização (definido no Capítulo II - equação (2.14)). Desta maneira podemos desprezar também as variações de w e R devido aos efeitos de autofocalização ou autodefocalização.

Nas equações (7.13) e (7.15) o efeito não-linear ainda não foi incluído. A equação (7.12) calcula apenas o valor da amplitude complexa do campo $\epsilon(R_1)$ a uma distância Z onde conhecemos a amplitude complexa do campo $\epsilon(r)$ (com seu w e R). Mas para conhecer-se $\epsilon(R_1)$ a partir de $\epsilon(r)$ não é preciso usar a equação (7.12) basta usar as equações (7.1). No entanto para um meio não-linear aparece um outro fator $\phi_{NL}(r)$ (fase não-linear) no campo (7.13) e neste caso o método da integral de difração de Kirchhoff é o único meio de resolver o problema. Neste caso a equação (7.14) fica:

$$|\epsilon(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-i(\phi_L + \phi_{NL})} e^{-r^2/w^2} J_0\left(\frac{k R_1 r}{z}\right) r dr \right|^2 \quad (7.16a)$$

com

$$\phi_{NL} = k \Delta n(r) L \quad (7.16b)$$

$$\phi_L = \frac{k}{2} \left(\frac{1}{z} + \frac{1}{R} \right) r^2 \quad (7.16c)$$

portanto o termo ϕ_{NL} representa a variação da fase do feixe devido a presença do perfil de índice de refração $\Delta n(r)$ que varia na direção transversal a propagação do feixe, por isso este fenômeno é chamado de Automodulação Transversal de Fase. A equação (7.16a) pode ser reescrita fazendo-se uma transformação de variáveis [37]:

$$|\epsilon(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-i(\phi_L + \phi_{NL})} e^{-r^2/w^2} e^{-y^2} y dy J_0(\theta_y) J_0\left(\frac{k R_1 r}{z}\right) r dr \right|^2 \quad (7.17a)$$

$$y = r/w \quad (7.17b)$$

$$c_b = \frac{k w^2}{2} \left(\frac{1}{z} + \frac{1}{R} \right) \quad (7.17c)$$

$$c_a = k L n_2 I_0 \quad (7.17d)$$

$$\theta = \frac{k w}{z} R_1 \quad (7.17e)$$

onde I_0 dado por (4.1) é o valor máximo do perfil gaussiano de intensidade.

O problema da Automodulação Transversal de Fase foi estudado experimentalmente em filmes de cristais líquidos [71] ($L \sim 100 \mu m$ e $n_2 \sim 10^{-4} cm^2/w$). Obteve-se um bom acordo entre os perfis de intensidade $I(R_1) \propto |\epsilon(R_1)|^2$ experimentais e os calculados a partir de (7.17). KHOO et al [72] estudaram sistematicamente as equações (7.17) e observaram que para $|c_a| \sim |c_b|$ existem dois comportamentos distintos: quando c_a e c_b têm o mesmo sinal e quando c_a e c_b têm sinais contrários.

Devido ao aparecimento do fator $\phi(y) = y \exp(-y^2)$ no integrando em (7.17a), a integração converge rapidamente para $y > 2.5$. O fator mais importante para o valor da integral é o fator de fase:

$$\phi(y) = c_a \exp(-2y^2) + c_b y^2 \quad (7.18)$$

onde $\beta(y)$ é o argumento da exponencial complexa em (7.17a). Consideremos, por exemplo, a intensidade no eixo $I(R_1 = 0)$, onde $\theta = 0$ e $J_0(\theta) = 1$. O valor da integração será grande se $\phi(y)$ se mantiver aproximadamente constante na região $y \sim 0.25 - 1.5$.

Consideremos primeiramente três casos com $c_a > 0$, o que corresponde a $n_2 > 0$ por (7.17d):

(caso a)	$c_a = 15$	$c_b = -4$	(7.19a)
----------	------------	------------	---------

(caso b)	$c_a = 15$	$c_b = 4$	(7.19b)
----------	------------	-----------	---------

(caso c)	$c_a = 15$	$c_b = 0$	(7.19c)
----------	------------	-----------	---------

A Figura 7.2 mostra os gráficos de $\phi(y)$, $\dot{\phi}(y) = \frac{d\phi}{dy}$ e $\cos(\phi(y))$ para os três casos considerados. Para o caso a (veja Figura 7.2a)

vemos que $\cos \beta$ é uma função oscilatória por isso o valor da integração será pequeno. No caso b (veja Figura 7.2b) vemos que $\cos \beta$ tem valores praticamente constantes na região $y \sim 0.7 - 1.4$. O caso c (veja Figura 7.2c) é classificado como uma situação intermediária. A Figura 7.3 mostra a distribuição de intensidade $I(R_1)$ para os três casos considerados. O profundo efeito do fator de fase $\phi(y)$ na intensidade no eixo ($I(R_1=0)$) é também refletido em todo o perfil $I(R_1)$. A Figura 7.3 mostra a evolução dos perfis de intensidade $I(R_1)$ para vários valores de I_0 desde $I_0 = 0$, que corresponde a $c_a = 0$, até o valor $c_a = 15$. Para o caso a (Figura 7.3a onde $c_b = -4$) a intensidade central vai diminuindo com o aumento de I_0 , a distribuição de intensidade parece ser puxada para a região $y > 1$ ficando com um aspecto de anel com um mínimo de intensidade no centro. No caso b (Figura 7.3b com $c_b = +4$) a distribuição de intensidade é caracterizada por uma região central intensa (cujo valor máximo oscila em função de I_0 mas sempre com $I(R_1=0)$ relativamente intenso). A medida que I_0 (ou c_a) aumenta aparecem máximos secundários (anéis) cuja intensidade é sempre inferior a da região central. O caso c (Figura 7.3c com $c_b = 0$) parece ser uma mistura dos dois casos anteriores. A intensidade da região central oscila a medida que I_0 aumenta ficando mais ou menos intensa que a região lateral.

O módulo quadrado da integral (7.17a) não depende do sinal do argumento da exponencial complexa, por isso se trocamos o sinal da fase total $\phi_1 = c_a \exp(-2y^2) + c_b y^2$ obtemos o mesmo resultado. Note que quando $c_a > 0$, $n_2 > 0$ o que caracteriza a um meio não-linear no qual ocorre a autofocalização enquanto que para $n_2 < 0$ ($c_a < 0$) ocorre a autodefocalização da luz. Este fato é uma característica da automodulação de fase, ou seja, podemos obter o mesmo perfil de intensidade $|E(R_1)|^2$ trocando o sinal de n_2 desde que o sinal de c_b seja também invertido. No limite da difração de Fraunhofer, que em (7.16c) equivale a $Z \gg R$, inverter o sinal de c_b equivale a trocar o sinal do raio de curvatura R .

Figura 7.2. Gráfico de $\Delta\phi$ e $\Delta\phi' = d(\Delta\phi)/dy$, e $\cos(\Delta\phi)$ em função de y (y variando de 0 a 3.0 para $c_a = 15$ e $c_b = -4$, definidos na equação (7.17)). (b) idem para o caso $c_a = 15$ e $c_b = 4$. (c) idem para o caso $c_a = 15$ e $c_b = 0$ (Esta figura foi retirada da Referência [72]).

Figura 7.3. Gráfico da distribuição radial de intensidade em função do aumento da intensidade incidente correspondente aos casos (a), (b) e (c) da Figura 7.2. Esta Figura foi retirada da referência [72]).

Na verdade esta variação da forma do perfil de intensidade conforme os parâmetros c_a e c_b é completamente análogo ao que ocorre em ótica clássica quando se considera o efeito das aberrações. Consideremos por exemplo, o caso das aberrações esféricas que têm simetria cilíndrica e portanto podem ser tratadas por integrais do tipo da equação (7.17a). No caso de uma lente convexo-plana de raio de curvatura R o perfil de fase de uma onda plana logo após a lente é dado por [15]:

$$\phi_l(r) = -k \left[ng + (n-1) \left(\frac{r^2}{2R} + \frac{r^4}{8R^3} + \dots \right) \right] \quad (7.20)$$

onde n é o índice de refração do vidro da lente, g é a espessura da lente e r a distância ao eixo da lente. Para o cálculo da intensidade o primeiro termo $-kng$ é constante, ou seja, não varia com r por isso não precisa ser considerado. Colocando o termo da fase da lente $\phi_l(r)$ dentro do integrando da equação (7.12) temos:

$$\epsilon(R_1) \propto \int_0^{r_0} e^{-i\phi_t(r)} J_0\left(\frac{k r_1 R}{z}\right) r dr \quad (7.21a)$$

com fase total

$$\phi_t = -k r^2 / 2z + \phi_l(r) \quad (7.21b)$$

$2r_0$ = diâmetro da lente

onde em (7.21) para o caso da onda plana temos $\epsilon(r) = 1$. A intensidade axial (em $R_1 = 0$) fica dado por:

$$I(R_1 = 0) \propto V = \frac{1}{I_0} \left| \int_0^{r_0} e^{i\phi_t} r dr \right|^2 \quad (7.22)$$

onde V é a intensidade normalizada ($I = 1$ quando $\phi_t = 0$). Em sistemas óticos é interessante obter o máximo valor de I (onde I varia entre 0 e 1) com este fim constroem-se complexos sistemas de lentes. Diminuindo-se as aberrações do sistema, diminui o valor da função $\phi_t(r, \varphi)$ e aumenta o valor V . Neste exemplo estamos considerando em (7.20) apenas a aberração esférica de 3ª ordem porisso $\phi = \phi(r)$. Note que para $Z = f = R/(n-1)$ (f é a distância focal da lente) o termo em r^2 de $\phi_t(r)$ desaparece. Para o caso em que $\phi \ll 1$ podemos aproximar $e^{i\phi_t} \sim 1 + i\phi_t - \phi_t^2/2$, neste caso V pode ser calculada como [76]:

$$V = 1 - \Delta^2(\phi_t) \quad (7.23a)$$

com

$$\Delta(\phi_t) = \langle \phi_t^2 \rangle - \langle \phi_t \rangle^2 \quad (7.23b)$$

$$\langle \phi_t \rangle = \int_0^{r_0} \phi_t r dr \quad (7.23c)$$

$$\langle \phi_t^2 \rangle = \int_0^{r_0} \phi_t^2 r dr \quad (7.23d)$$

Através da equação (7.24a) pode-se mostrar que o valor máximo para V não ocorre no foco em $Z = f$ mas próximo dele. Expandindo (7.21b) para $Z \sim f$ temos:

$$\phi_t = \frac{k r^2}{2 f^2} \Delta Z + k (n-1) \frac{r^4}{8 R^3} \quad (7.24a)$$

onde $\Delta Z = (Z - f)$.

Veremos a seguir que é conveniente reescrever a equação (7.24) da seguinte forma:

$$\phi_t(r) = A_4 \bar{y}^{-2} \left(\frac{-2}{\bar{y}} + \frac{\Delta z}{d} \right) \quad (7.24b)$$

com:

$$\bar{y} = r/r_0 \quad (7.24c)$$

$$d = \frac{r_0^2}{4R(n-1)} \quad (7.24d)$$

$$A_4 = k(n-1) \frac{r_0^4}{8R^3} \quad (7.24e)$$

Pode-se mostrar que [77] para $\Delta z = -d$, ou seja $Z = f - d$, o valor de V em (7.24) é máximo. Neste caso em (7.24a) temos:

$$\phi_t(\bar{y}) = A_4 \bar{y}^{-2} \left(\frac{-2}{\bar{y}} - 1 \right) \quad (7.25)$$

que é o perfil de fase total ϕ_t que minimiza o valor de $\Delta(\phi_t)$ e maximiza V em (7.23a). Na presença do termo da aberração esférica $\phi_1 = A_4 y^4$, V é máximo quando o coeficiente do termo quadrático $\Delta z/d = -1$. Ocorre então um aumento da intensidade axial da imagem quando ela é observada um pouco antes do foco em $Z = f - d$. Por outro lado a intensidade decresce se observamos a imagem atrás do foco, por exemplo para $Z = f + d$ onde:

$$\phi_t(\bar{y}) = A_4 \bar{y}^{-2} \left(\frac{-2}{\bar{y}} + 1 \right) \quad (7.26)$$

Na verdade o que ocorre no meio não-linear é análogo a esta situação com um perfil de fase total dado por (veja (7.17a)):

$$\phi_t(\bar{y}) = -c_a e^{-2y^2} - c_b y^2 \quad (7.27)$$

Quando $c_a > 0$ temos a gaussiana com concavidade positiva e com $c_b > 0$ a parábola tem concavidade negativa. Ou seja, as duas contribuições para $\phi_t(y)$ têm concavidades de sinais opostos como ocorre em (7.25) onde a intensidade axial é máxima. Por outro lado, quando c_a e c_b têm sinais contrários o sinal das duas concavidades é o mesmo consequentemente $\Delta(\phi_t)$ é maior a intensidade axial é menor, o que é análogo ao que acontece em (7.26). A situação $c_b = 0$ é por sua vez análoga ao caso $\Delta Z = 0$, que é o caso c da equação (7.19) que dissemos ser uma situação intermediária.

Pode-se mostrar [77] usando a equação (7.23a) que V é máximo para $c_a = 3 c_b$. É curioso que embora a equação (7.23a) só seja válida para $\phi_t \ll 1$ KHOO et al [72] escolheram como exemplo o caso $c_a = 15$ e $c_b = 4$ que equivale a $c_a = 3.5 c_b$.

7.4. Modulação transversal de fase em Rubi e $GdAlO_3:Cr^{+3}$

7.4.1. Teoria

Existe uma diferença fundamental entre nosso trabalho em Rubi e $GdAlO_3:Cr^{+3}$ e os trabalhos anteriores [71,72] em cristais líquidos. Como nos nossos cristais o efeito não-linear não é tão alto como nos cristais líquidos é preciso usar intensidade da ordem da intensidade de saturação I_s para observar o efeito de Automodulação Transversal de Fase. Consequentemente é preciso considerar o efeito de saturação no índice de refração não-linear n_2 tal como fizemos em 5.2 para o CFMD40. Desta forma de (4.9a) e lembrando que $I(y) = I_0 e^{-2y^2}$ devemos alterar (7.17d) para:

$$c_a = c_a(y) = \frac{k L n_2 I_0}{1 + s e^{-2y^2}} \quad (7.28a)$$

com parâmetro de saturação

$$s = I_0/I_s \quad (7.28b)$$

lembre que neste caso devido ao termo $I(y)$ no termo de saturação do denominador de (4.8b) o perfil de índice de refração e o perfil de fase não-linear $\phi_{NL}(y) = c_a(y) e^{-2y^2}$ não são mais gaussianos. Chamamos ϕ_0 o valor máximo de $\phi_{NL}(y)$:

$$\phi_0 = \phi_{NL}(y=0) = \frac{c_a}{1+s} \quad (7.29)$$

A Figura 7.4 mostra o perfil de índice de refração $n(r)$ para vários valores de s .

Figura 7.4. Perfil de índice de refração $n(y=r/w)$ em função do parâmetro de saturação $s = I_0/I_s$. O perfil de índice de refração calculado para o caso estacionário é dado pela equação (4.8b). Para $s = 0$ o perfil $n(r)$ tem a mesma forma gaussiana do perfil de intensidade $I(r) = I_0 e^{-2r^2/w^2}$ (onde w é o raio médio do feixe).

Nós observamos que esta mudança no perfil $n(r)$ devido a saturação muda significativamente o padrão de intensidade $I(R_1)$ transmitido. A Figura 7.5 mostra várias curvas $I(R_1)$ com $c_b = -0,83$, fixando-se ϕ_0 e variando-se s .

Figura 7.5. Padrões de intensidade teóricos com $c_b = -0.83$. Graficamos diversos padrões, obtidos através da integração numérica da equação (7.17), para vários valores de $\Delta\phi_0$ variando o parâmetro de saturação $s = I_0/I_s$. A Figura a mostra o caso $\Delta\phi_0 = 0$ onde não há efeito não-linear mas apenas a propagação do feixe gaussiano. A linha pontilhada representa a solução exata que é idêntica à obtida pela integral de difração dada pela equação (7.1). Nós normalizamos a um o valor de pico da intensidade do feixe gaussiano (que é o caso da parte a) onde não há efeito não-linear) porisso para as curvas (b) - (d) o valor de pico é menor que um.

Os valores $c_b = -0.83$, $c_b = +2.3$, o valor de Z , as escalas para R_1 (cm) e os valores de w usados nos cálculos das Figuras 7.5, 7.6 e 7.7 são iguais aos valores do nosso experimento; os valores de ϕ_0 e S escolhidos são similares aos do experimento. Consideramos inicialmente (Figura 7.5 e 7.6) o caso em que n_2 é real e depois (Figura 7.7) o caso n_2 complexo. O primeiro caso $\phi_0 = 0$ (Figura 7.5a) representa simplesmente a propagação do feixe gaussiano pois para $\phi_0 = 0$ a contribuição do meio não-linear é nula. Este caso serve apenas para verificarmos se o cálculo feito pela integração

numérica da integral de Kirchhoff é o mesmo que o resultado exato da propagação de feixes gaussianos (equação 7.1). Na Figura 7.5a observamos um excelente acordo entre o resultado exato (linha pontilhada) e o resultado calculado numericamente (linha cheia), na verdade a diferença entre as duas curvas é tão pequena que a figura não tem resolução suficiente para mostrá-la. Aumentando-se o valor de ϕ_0 observa-se um alargamento da distribuição de intensidade $I(R_1)$ e conseqüentemente a diminuição do valor máximo de $I(R_1)$. Em todas as figuras deste capítulo normalizamos a 1.0 o valor máximo de $I(R_1 = 0)$ para $\phi_0 = 0$. Para $s = 0$ aumentando ϕ_0 observamos curvas similares as da Figura 7.3b. Entretanto aumentando-se o valor do parâmetro de saturação s observamos que suas formas características (com um mínimo de intensidade no centro) desaparece. A Figura 7.6 é similar a Figura 7.5 mas para o caso $c_b = +2.3$. Para o caso $s = 0$ já aparece um máximo secundário de intensidade com $c_a = 2$ e sua intensidade aumenta com o aumento de ϕ_0 e depois outros máximos secundários (ou anéis) aparecem tal como na Figura 7.3a. Entretanto aumentando s a forma característica das curvas desaparece.

Esta mudança de comportamento das curvas $I(R_1)$ com o parâmetro s nas curvas das Figuras 7.5 e 7.6, pode ser entendida analisando-se a transmissão em um feixe gaussiano pelo perfil de índice de refração $n(r)$.

Figura 7.6. Padrões de intensidade teóricos para o caso $c_b = +2.3$. Mantivemos a mesma escala de intensidade da Figura 7.5 mas neste caso observamos um aumento da intensidade de pico devido ao estreitamento do padrão. Nós magnificamos parte das curvas (em linhas pontilhadas) (pelos fatores indicados) para mostrar a estrutura de anéis do padrão de intensidade.

A importância do efeito não-linear está em mudar a curvatura do perfil de fase $\phi_t(r) = \phi_{NL}(r) + \phi_L(r)$ (equação (7.16)), pois uma variação de fase constante (que não dependesse de r) não introduziria nenhuma alteração no padrão de intensidade $I(R_1)$. A Figura 7.4 mostra que aumentando-se s diminui-se a curvatura de $\Delta n(r)$ perto da origem $r \sim 0$ onde a maior parte da energia do feixe se concentra. Os dois comportamentos característicos das curvas nas Figuras 7.5 e 7.6 originam-se da interferência dos termos $\phi_L(r)$ e $\phi_{NL}(r)$. Aumentando o parâmetro de saturação s a influência do termo $\phi_{NL}(r)$ diminui devido a diminuição de sua curvatura perto da origem. O perfil da fase total $\phi_t(r)$ é mostrado para $\phi_0 = 4$ com $c_b = -0.83$ e $c_b = +2.3$. (partes a e b respectivamente). Vemos que no caso $s = 0$ a

derivada $\phi'(y)$ é menor em $c_b = +2.3$ do que para $c_b = -0.83$ na região $y \sim 0.25 - 1.5$ causando um maior valor para $I(R_1 = 0)$ (tal com na Figura 7.2). Além disso, comparando os casos $s = 0$ e $s = 9$ observamos em ambas as curvas, tanto com $c_b = -0.83$ como em $c_b = +2.3$ que $\phi'(y)$ é menor na região $y \sim 0.25 - 1.5$ para $s = 9$ do que em $s = 0$. Estes argumentos explicam qualitativamente a mudança de comportamento em ambas as curvas, com $c_b = -0.83$ e com $c_b = +2.3$, com o parâmetro de saturação.

Para completar nossa análise estudamos também o caso em que n_2 é complexo (até o momento nós havíamos considerado apenas valores reais para n_2) contendo os casos de dispersão não-linear n_2' e absorção não-linear n_2'' . Embora para os cristais estudados neste trabalho o efeito de n_2'' seja desprezível pois $n_2' > 10 n_2''$ (veja Capítulo IV) o caso geral é muito importante em outros sistemas como vapores atômicos, semicondutores e corantes orgânicos. Consideramos então $\phi_0 = |\phi_0| e^{i\beta}$ e variamos valor do ângulo β (este estudo foi feito somente para $s = 0$). A Figura 7.8 mostra o caso $|\Delta\phi_0| = 3$ com $(c_b = -0.83$ e $c_b = +2.3$ respectivamente, para vários valores de β . No caso $\beta = \pi/2$ n_2 é positivo, o que corresponde a um absorvedor saturável (α diminui com o aumento da intensidade), temos uma transmissão maior na região central do feixe. A situação oposta $\beta = -\pi/2$, corresponde a um amplificador saturável reverso, onde a transmissão do feixe é menor do centro do que nas asas ("wings") do feixe gaussiano. Quando n_2 é complexo $\phi_{NL}(r)$ (ou $c_a(y)$) torna-se complexo também mas somente sua parte real interfere com $\phi_L(r)$ porisso para $\beta = \pm \pi/2$ a curva $I(R_1)$ não depende do sinal de c_b . Nota-se que a característica das curvas (o aparecimento de um mínimo de intensidade no centro para $c_b < 0$ e um máximo intenso com picos laterais para $c_b > 0$) é mais pronunciada quando $\beta > 0$. Esta análise mostra que a forma do padrão de intensidade $I(R_1)$ é muito sensível ao valor de β , ou seja, não depende apenas de $|n_2|$ mas também da razão entre n_2' e n_2'' .

Figura 7.7. O perfil de fase $\phi(r)$ para $\Delta\phi_0 = 4$, $c_b = -0.83$ (parte a) e $c_b = +2.3$ (parte b). Em ambas as partes a e b a linha pontilhada indica o caso $c_a = 0$.

Figura 7.8. Consideramos $\Delta\phi_0 = |\Delta\phi_0| e^{i\phi}$ e calculamos os perfis de intensidade para vários valores de b fixando o parâmetro $|\Delta\phi_0| = 3$ e $s = 0$. Parte a) mostra o caso $c_b = -0.83$ e a parte b) o caso $c_b = +2.3$.

7.4.2. Resultados Experimentais

Usamos um laser de Ar com potência máxima $P = 1.5 \text{ W}$ em $\lambda = 5145 \text{ \AA}$, linha onde fizemos todas as medidas. O feixe do laser era focalizado no cristal por uma lente de distância focal $f = 30 \text{ cm}$. Obtivemos o menor raio médio do feixe $w(z = 0) = w_0 = 4.4 \times 10^{-3} \text{ cm}$. Os cristais foram colocados ou em $z = -1 \text{ cm}$ (onde $c_b = -0.83$ e $w = 5.7 \times 10^{-3} \text{ cm}$) ou em $z = +2.7 \text{ cm}$ (onde $c_b = +2.3$ e $w = 1.1 \times 10^{-2} \text{ cm}$). O perfil de intensidade do feixe foi medido para determinação de w usando as técnicas descritas no Capítulo IV. O padrão de intensidade $I(R_1)$ foi medido com um fotodiodo a uma distância $Z = 180 \text{ cm}$ do cristal. O fotodiodo foi preso a uma rosca que era girada por um motor de passo conectado a um microcomputador (veja Figura 7.9).

Figura 7.9. Arranjo experimental utilizado na experiência de Modulação Transversal de Fase.

Observamos as características principais discutidas na teoria (7.2) medindo os padrões de intensidade $I(R_1)$ para um cristal de Rubi (Figura 7.10) e um cristal de $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (Figura 7.11). Todos os resultados experimentais deste capítulo (em linhas cheias nas figuras) foram ajustados por curvas (em linhas pontilhadas nas figuras) calculadas usando os parâmetros da Tabela 7.1. O valor de n_2/α_1 na Tabela 7.1 são 1.15 e 1.3 vezes maiores que os

valores de n_2/α_1 da Tabela 4.2 para o Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ respectivamente.

Nas curvas teóricas nós consideramos o efeito da absorção calculando o valor médio da fase não-linear $\phi_{\text{NL}}(r)$ ao longo do cristal:

$$\phi_{\text{NL}}(r) = k \int_0^L \frac{n_2 I(r) e^{-\alpha_1 z}}{1 + e^{-\alpha_1 z I(r)/I_0}} dz = \frac{kn_2}{\alpha_1} I_s \ln \left(\frac{1 + I(r)/I_s}{1 + e^{-\alpha_1 L I(r)/I_0}} \right) \quad (7.30)$$

Para os valores de $\alpha_1 L$ da nossa experiência a equação (7.30) dá o mesmo resultado que substituindo $I(r)$ pelo seu valor médio ao longo do cristal $\langle I(r) \rangle$:

$$\phi_{\text{NL}} \sim \frac{k n_2 \langle I(r) \rangle}{1 + \langle I(r) \rangle / I_s} \quad (7.31a)$$

com

$$\langle I(r) \rangle = \frac{1}{L} \int_0^L I(r) e^{-\alpha_1 z} dz = I(r) \frac{(1 - e^{-\alpha_1 L})}{\alpha_1 L} \quad (7.31b)$$

As curvas experimentais foram medidas em unidades arbitrárias (não houve uma calibração prévia do fotodiodo) mas foram ajustadas as curvas teóricas no ponto $R_1 = 0$. Para o Rubi (Figura 7.10) a não linearidade não é grande o suficiente para causar um mínimo de intensidade no centro ou em máximo secundário no padrão de intensidade $I(R_1)$ porém, observamos um alargamento e um estreitamento dos padrões para $c_0 = -0.83$ e $c_0 = +2.3$ respectivamente.

Figura 7.10. Padrões de intensidade medidos para a amostra de rubi. As linhas cheias representam os resultados experimentais e as linhas pontilhadas os resultados calculados (os parâmetros usados nos cálculos estão na Tabela 7.1). As curvas experimentais foram medidas em unidades arbitrárias mas nós ajustamos o ponto $R_1 = 0$ as curvas calculadas. a) $z = -1.0$ cm, $P = 1.0$ W; b) $z = +2.7$ cm e $P = 0.375$ W; c) $z = +2.7$ cm e $P = 1.0$ W.

A variação do diâmetro $1/2$ da curva $I(R_1)$ foi $\sim 20\%$ para o alargamento e $\sim 30\%$ para o estreitamento. No $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ observamos um bom acordo para a posição e intensidade (em relação a posição $R_1 = 0$) dos máximos das Figuras 11 (parte a, b e c) com os valores calculados.

Estudamos também a evolução temporal dos padrões de intensidade $I(R_1)$ calculados a partir de (7.17) e (7.28). O cálculo é feito multiplicando (7.28a) pelo fator de resposta temporal da não-linearidade $(1 - e^{-t/\tau})$ da equação (4.8b). A Figura 7.12 mostra padrões $I(R_1)$ calculados para vários valores de t para o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ com $P = 1.0 \text{ W}$, $c_b = -0.83$ (Figura 7.12a) e $c_b = +2.3$ (Figura 7.12b). Em ambas as partes a e b da Figura 7.12 em $t = 0$ não há o efeito não linear devido ao finito tempo de resposta do meio, mas apenas a propagação do feixe gaussiano, cuja intensidade máxima é normalizada a 1.0. A Figura 7.12a ($c_b = -0.83$) mostra inicialmente apenas o alargamento do padrão de intensidade e depois a formação da curva com um mínimo de intensidade no centro. A Figura 7.12b ($c_b = +2.3$) mostra o estreitamento do padrão $I(R_1)$ e depois a formação dos máximos secundários.

Nossas medidas experimentais foram feitas com o laser passando por uma pá dentada girante ("chopper") para marcar tempo $t = 0$. O detetor foi deixado numa posição fixa R_1 no plano de observação e o sinal $I(R_1, t)$ foi coletado através do microcomputador.

As Figuras 7.13 e 7.14 mostram os resultados de medidas da evolução temporal $I(R_1, t)$ para o Rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$. Ambas as curvas experimentais e teóricas foram normalizadas a $I(R_1 = 0, t = 0) = 1.0$, pois em $t = 0$ não há o efeito não-linear. O cálculo teórico foi feito como para Figura 7.12 mas fixando o valor de R_1 e variando o tempo. A Figura 7.13 mostra a evolução temporal $I(R_1 = 0, t)$ para o cristal de Rubi. As condições experimentais da Figura 7.13 a, b e c são similares as da Figura 7.10 a, b e c respectivamente.

Figura 7.11. Padrões de intensidade medidos para o cristal de $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{3+}$.
a) $z = -1.0$ cm, $P = 0.25$ W; b) $z = +2.7$ cm e $P = 0.3$ W; c) $z = +2.7$ cm e $P = 0.7$ W.

Figura 7.12. Evolução temporal calculado para o padrão de intensidade do $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{+3}$ com potência $P = 1.0\text{W}$ nos casos: a) $c_b = -0.83$ e b) $c_b = +2.3$. A unidade temporal é m seg.

Figura 7.13. Evolução temporal do padrão de intensidade experimental (linha cheia) e calculado (linha pontilhada) para o cristal de rubi. As curvas experimentais (medidas em unidades arbitrárias) foram ajustadas as curvas teóricas no ponto $t = 0$. As condições experimentais foram: a) $z = -1.0$ cm, $P = 1.0$ W; b) $z = +2.7$ cm e $P = 0.35$ W; c) $z = +2.7$ cm e $P = 1.0$ W. Todas as medidas foram feitas no ponto $R_1 = 0$.

Figura 7.14. Evolução temporal dos padrões para o $\text{GdAlO}_3:\text{Cr}^{3+}$. As condições experimentais foram: a) $z = -1.0 \text{ cm}$, $P = 0.25 \text{ W}$ e $R_1 = 0$; b) $z = -1.0 \text{ cm}$ e $P = 1.0 \text{ W}$ e $R_1 = 0$; c) $z = +2.7 \text{ cm}$ e $P = 0.3 \text{ W}$ e $R_1 = 0.63$. Todas as medidas foram feitas no ponto $R_1 = 0$.

Podemos notar a concordância entre os valores estacionários ($t > 10$ mseg) de $I(R_1 = 0, t)$ da Figura 7.13 com os valores de $I(R_1 = 0)$ da Figura 7.10. A Figura 7.14 mostra nossos resultados para o $GdAlO_3 : Cr^{+3}$. As condições experimentais da Figura 7.14a são as mesmas da Figura 12a. Na Figura 7.14b a potência foi aumentada para 1.0 W e observamos o comportamento da Figura 7.12a. Na Figura 7.14c o detetor foi colocado na posição do primeiro mínimo de intensidade ($R_1 = 0.63$ cm). A discrepância entre o valor calculado e o valor experimental da Figura 7.14c também é observada no ponto $R_1 = 0.63$ cm da Figura 7.11c.

No regime de saturação ($s > 1$) temos da equação (4.5c) que a resposta temporal é mais rápida perto da origem onde a intensidade é maior. Fazendo uma expansão de (4.8b) para $t \ll \tau$ temos:

$$\left(1 - e^{-t/\tau}\right) \sim \frac{t}{\tau} = \frac{t}{\tau_0} \left(1 + \frac{I(r)}{I_s}\right) \quad (7.32)$$

porisso o termo de saturação no denominador de (7.28a) se cancela com o parêntesis da equação (7.32). Por esta razão para $t \ll \tau_0$ o perfil de fase não-linear $\phi_{NL}(r, t) = c_a(y) e^{-2y^2}$ não é saturado (ou seja, o perfil é aproximadamente gaussiano) consequentemente o padrão de intensidade transmitida não apresenta as características da saturação. Observamos que para $t \ll \tau_0$ (que é 10 mseg para o $GdAlO_3 : Cr^{+3}$) os padrões da Figura 12 (a e b) são similares aos das Figuras 7.5 e 7.6 respectivamente com $s \sim 0$. Para $t \gg \tau_0$ os padrões atingem seu valor estacionário onde o efeito de saturação é notório.

Uma vantagem da medida transiente é que o valor da intensidade $I(R_1, t)$ pode ser diretamente comparado com $I(R_1, t = 0)$ quando não existe o efeito não-linear e o padrão de intensidade é gaussiano com um valor de w conhecido (que pode ser calculado por 7.1b). Devido a dependência do tempo de resposta τ com a intensidade o bom acordo a

evolução temporal das curvas experimentais e calculadas demonstra que os valores de I_s estão corretos.

Podemos concluir que o efeito de saturação da não-linearidade, que foi pela primeira vez considerado neste trabalho, é muito importante para determinar tanto a forma do padrão de intensidade $I(R_1, t)$ quando sua evolução temporal. Os valores da Tabela VII.1 para n_2 estão próximos dos valores de n_2 da Tabela IV.2. Neste trabalho demonstramos que o estudo do efeito de Automodulação Transversal de Fase pode auxiliar na caracterização do meio não-linear (determinação de n_2 , saturação do efeito não-linear, tempo de resposta, etc). A aplicação do método restrita por vários fatores: o meio precisa ser fino para que $L \ll z_f, z_0$ e apesar disso n_2 precisa ser grande o suficiente para produzir $\phi_0 > \pi$. Para $\phi_0 < 1.0$ a variação do padrão $I(R_1, t)$ não é muito grande o que dificulta a análise dos padrões para caracterização do meio não-linear. Uma análise final será feita no Capítulo IX quando compararemos todos os resultados obtidos neste trabalho e os resultados de trabalhos anteriores.

Tabela VII.1. Características das amostras e valor de n_2 usados nas curvas teóricas no Capítulo VII

	$\alpha \text{ (cm}^{-1}\text{)}$ em $\lambda = 5145 \text{ \AA}$	$L \text{ (cm)}$	$n_2' (10^8 \text{ cm}^2/\text{W})$	$n_2'' (10^8 \text{ cm}^2/\text{W})$
Rubi	1.25	0.215	2.45	0.18
GdAlO ₃ :Cr ⁺³	3.4	0.15	17	-

VIII. Efeitos Transversos em CFMD40

8.1. Motivação

Nos Capítulos III e V discutimos a CFMD40 sem considerar os efeitos transversos que ocorrem devido ao fato de que os campos E_1 , E_2 e E_p envolvidos no processo não são ondas planas mas sua amplitude têm uma dependência radial $E(r)$ (só vamos considerar neste trabalho o caso em que E_1 , E_2 e E_p são feixes gaussianos). Discutiremos o processo de Modulação Transversal de Fase em CFMD40 (ou MTF - CFMD40) fazendo uma extensão do método utilizado no Capítulo VII sobre Automodulação Transversal de Fase, com a diferença que no Capítulo VII havia apenas um feixe enquanto que agora o efeito é discutido para um campo que é gerado num processo não-linear de Mistura de Ondas. A interpretação física do efeito de MTF - CFMD40 é análoga ao que comentamos para o efeito de Modulação de Fase do Capítulo VII, com a diferença de que neste caso supomos que os campos E_p e E_c são fracos (feixes de prova) mas a modulação de fase aparece devido a modulação de índice de refração induzida pelos campos fortes E_1 e E_2 . O efeito desta modulação de índice de refração é introduzir aberrações nos feixes de prova que são análogas as aberrações em sistemas óticos lineares (sistemas com lentes, espelhos, etc). Porisso, a minimização do efeito de MTF - CFMD40 é de fundamental importância para as aplicações da CFMD40 em ótica adaptativa, sistemas de imagens, processamento de imagens, cavidades óticas, etc.

Iniciaremos o estudo de efeitos transversos em CFMD40 no limite de baixa eficiência $Q \ll 1$ de tal modo que podemos aproximar $\tan(|Q|L) \sim |Q|L$ em ^{3.45a} (222a) obtendo:

$$\epsilon_c(0) = -i Q^*(r) L \epsilon_p^*(0) \quad (8.1a)$$

com:

$$Q^*(r) = \frac{4\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \epsilon_1(r) \epsilon_2(r) \quad (8.1b)$$

A diferença entre (8.1) e (3.46a) é que estamos agora considerando a dependência gaussiana radial da amplitude dos campos:

$$\epsilon_j(r) = e^{-r^2/w_j^2} \quad j = 1, 2 \text{ e } p \quad (8.2)$$

consequentemente em $Q(r)$ aparece uma dependência gaussiana o que significa que o coeficiente de reflexão do Espelho de Conjugação de Fase (que é proporcional a $Q(r)$) não é uniforme. No limite de validade de (8.1a) o feixe conjugado tem também a forma gaussiana (8.2) mas com w_c (o raio médio do feixe ou "spot size") dado por:

$$\frac{1}{w_c^2} = \frac{1}{w_1^2} + \frac{1}{w_2^2} + \frac{1}{w_p^2} \quad (8.3)$$

ou seja, w_c é menor que w_p . No entanto se $w_1, w_2 \gg w_p$ em (8.3) obtemos $w_c \sim w_p$ pois $Q(r)$ fica aproximadamente uniforme na região de interação com o feixe de prova. A Figura 8.1 mostra a interferência de dois campos gaussianos de mesma amplitude. Para um meio não-linear do tipo Kerr ($n = n_0 + n_2 I$) a modulação de índice de refração é proporcional a modulação de intensidade logo, a Figura 8.1 mostra claramente que a eficiência de difração, que por (2.9) é proporcional ao quadrado da modulação do índice de refração, é maior em torno da origem $r \sim 0$. Estes fatos foram pela primeira vez comentados por TREBINO e SIGMAL [74] que calcularam a eficiência da CFMD40 para feixes gaussianos TEM_{00} em função do ângulo θ entre o feixe de prova e os feixes de bombeio. Neste trabalho a amplitude do campo conjugado ϵ_c é expressa como uma combinação de modos Hermite-gaussianos. Diversos autores têm estudado a estrutura dos modos de cavidades ressonantes com espelhos de Conjugação

de Fase (veja [75]), porém a discussão de efeitos transversos pelo processo de MTF - CFMD40 é uma contribuição original deste trabalho.

Figura 8.1. Representação da distribuição de intensidade do padrão de interferência formado pela intersecção de dois feixes gaussianos que se propagam nas direções $\vec{k}_A$ e $\vec{k}_B$; a) caso em que os dois feixes têm a mesma intensidade; b) caso $I_A = I_B/4$ (Figura da Referência [74]).

8.2. Efeito de Modulação Transversal de Fase na CFMD40 pelo modelo de YARIV e PEPPER

Iniciaremos o estudo da MTF - CFMD40 no modelo de YARIV e PEPPER (descrito em 3.3) por ser o modelo mais simples para CFMD40. As idéias básicas do efeito de MTF - CFMD40 podem ser colocadas de uma

maneira bastante simples para o modelo de YARIV e PEPPER o que facilitará a discussão futura para outros casos.

Reescrevendo as equações (3.41) temos:

$$\frac{d \epsilon_c}{dz} = i F \epsilon_c - i Q^* \epsilon_p^* \quad (8.4a)$$

$$\frac{d \epsilon_p}{dz} = -i F \epsilon_p - i Q \epsilon_c^* \quad (8.4b)$$

com

$$F = F(r) = \frac{2\pi k}{n_0} \chi^{(3)} \left(|\epsilon_1(r)|^2 + |\epsilon_2(r)|^2 \right) \quad (8.4c)$$

$$Q^* = Q(r) = \frac{4\pi k}{n_0} \chi^{(3)} \epsilon_1(r) \epsilon_2(r) \quad (8.4d)$$

A diferença entre o tratamento feito neste Capítulo com a do Capítulo III é que agora a dependência em r de $F(r)$ e $Q(r)$ é fundamental para o efeito de MTF - CFMD40. Reescrevemos também as equações (3.42) com as transformações de variáveis:

$$\epsilon'_c(z) = \epsilon_c(z) e^{iF(r)(L-z)} \quad (8.5a)$$

$$\epsilon_p(z) = \epsilon'_p(z) e^{iF(r)z} \quad (8.5b)$$

Os valores de $E_c(o)$ e $E_p(o)$ de (3.45) ficam:

$$\epsilon_c(0) = -i \frac{Q^*}{|Q|} \tan(|Q| L) e^{iF(r)L} \epsilon_p(0) \quad (8.6a)$$

$$\epsilon_p(0) = \sec(|Q| L) e^{-iF(r)L} \epsilon_p(0) \quad (8.6b)$$

Conforme já foi comentado no Capítulo III o efeito de Modulação Transversal de Fase não muda a potência dos campos de prova gerados no processo de CFMD40 $E_p(L)$ e $E_c(0)$ pois introduz o fator de fase complexo $\gamma(r)L$. Porém o padrão de intensidade destes campos $I(R_1)$ a uma distância Z do meio não linear é alterado. Para o cálculo deste padrão de intensidade procedemos como no Capítulo VII utilizando a integral de difração de Kirchhoff (equação (7.13)):

$$\epsilon_j(R_1) \propto \int_0^\infty e^{-j k_j r^2 / 2z} \epsilon_j(r) J_0\left(\frac{k r R_1}{z}\right) r dr \quad (8.7)$$

onde $j = c, p$, $k_c = -k$ e $k_p = k$.

A equação (8.5a) foi modificada em relação a (3.41a) com a introdução do termo $e^{-i\gamma(r)L}$ que aparece devido as condições de contorno do problema. Por exemplo, o feixe de prova (que se propaga no sentido positivo do eixo z incide no meio não-linear em $z = 0$ sem o termo de modulação de fase porisso $\epsilon'_p(z = 0) = \epsilon_p(z=0)$. Porém após sua propagação através do meio não-linear, cujo índice de refração é modulado devido a presença dos feixes de bombeio, adquire um perfil de fase $\epsilon_p(L) = \epsilon'_p(L) e^{-iF(r)L}$. A interpretação deste fator é simples pois por (8.4c) $F(r)L = kL[n(r) - n_0]$, ou seja, é a modulação de índice de refração induzida pelos feixes de bombeio. O mesmo ocorre para a amplitude do campo conjugado $\epsilon_c(z)$, que é gerado a partir de $z = L$ (onde $\epsilon_c(L) = 0$) e se propaga na direção negativa do eixo z . Da mesma maneira que $E_p(z)$, devemos ter então $\epsilon_c(0) = \epsilon'_c(0) e^{iF(r)L}$ onde a diferença no sinal da

fase $F(r)L$ entre $E_c(0)$ e $E_p(L)$ existe porque os campos se propagam em sentidos opostos.

Para o cálculo de $\epsilon_c(r)$ e ϵ_p em (8.6) supomos que:

$$\epsilon_j(r) = \epsilon_{j0} e^{-r^2/w_j^2} e^{-ikr^2/2R_j} \quad (8.8)$$

com $j = 1, 2$ e p

são as amplitudes dos campos E_1, E_2 e E_p incidentes com seus respectivos raios médios w_1, w_2 e w_3 e raios de curvatura R_1, R_2 e R_p .

Substituindo (8.8) em (8.6) obtemos:

$$\epsilon_c(0) = -i \tan(|Q|L) e^{iF(r)L} e^{iRr^2/2R_p} \epsilon_{p0} e^{-r^2/w_p^2} e^{-ikr^2/R_c} \quad (8.9a)$$

$$\epsilon_p(L) = \sec(|Q|L) e^{-iF(r)L} e^{-iRr^2/2R_p} \epsilon_{p0} e^{-r^2/w_p^2} e^{-ikr^2/R_p} \quad (8.9b)$$

com:

$$|Q| = \frac{4\pi\chi^{(3)}}{n_0^2} k \epsilon_{10} \epsilon_{20} e^{-r^2(1/w_1^2 + 1/w_2^2)} \quad (8.9c)$$

$$F(r) = \frac{2\pi k}{n_0^2} \chi^{(3)} \left(\epsilon_{10}^2 e^{-2r^2/w_1^2} + \epsilon_{20}^2 e^{-2r^2/w_2^2} \right) \quad (8.9d)$$

$$\frac{1}{R_c} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} - \frac{1}{R_p}$$

Note que nesta convenção de sinal de (8.8) e (8.9) quando os feixes de bombeio incidem no meio com a mesma curvatura (convergente ou divergente) R_1 e R_2 tem sinais contrários. Quando o campo E_1 (E_2) é convergente $R_1 < 0$ ($R_2 > 0$) e para campos divergentes troca-se o sinal. Desta maneira, quando os dois campos de bombeio têm a mesma curvatura ($R_1 = -R_2$) então $R_c = -R_p$. Na equação (8.9a) vemos que no limite de baixa intensidade $|Q| \ll 1$ e $F(r)L \ll 1$ (8.9a) recai na expressão (8.1a) se considerarmos $e^{iF(r)L} \sim 1$. Neste caso o campo E_c é o conjugado de E_p se $w_1, w_2 \ll w_p$ e $R_1 = -R_2$ então obtemos $w_c = w_p$ e $R_c = -R_p$.

Podemos reescrever (8.7) usando o procedimento análogo ao que fizemos para (7.17):

$$|\epsilon_c(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-y^2} y dy \tan(Q(y)L) e^{-i \left[-c_a e^{-2ay^2} + c_b y^2 \right]} J_0(\theta y) \right|^2 \quad (8.10a)$$

com:

$$F(y)L = c_a e^{-2ay^2} = \frac{2\pi kL}{n_o^2} \chi^{(3)} \left(\epsilon_{10}^2 + \epsilon_{20}^2 \right) e^{-2ay^2} \quad (8.10b)$$

$$k(y) = \frac{4\pi R}{n_o^2} \epsilon_{10} \epsilon_{20} e^{-2ay^2} \quad (8.10c)$$

$$c_b = \frac{k r^2}{2} \left(\frac{1}{R_c} - \frac{1}{z} \right) \quad (8.10d)$$

$$y = \frac{r}{w_p} \quad (8.10e)$$

$$\theta = \frac{k w_p}{z} R_1 \quad (8.10f)$$

$$w_1 = w_2 = w_b \quad e \quad a = \left(\frac{w_b}{w_p} \right)^2 \quad (8.10g)$$

supomos $w_1 = w_2$ apenas para simplificar (8.10) mas o caso $w_1 \neq w_2$ também pode ser calculado. Analogamente a (8.10) obtemos para o campo de prova:

$$|\epsilon_p(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-y^2} y dy \sec(Q(y)L) e^{-i \left[c_a e^{-2ay^2} + c_b y^2 \right]} J_0(\theta y) \right|^2 \quad (8.11a)$$

com

$$c_b = \frac{k r^2}{2} \left(\frac{1}{R_c} + \frac{1}{z} \right) \quad (8.11b)$$

onde para (8.11a) valem as definições (8.10b), (8.10c), (8.10e), (8.10f) e (8.10g). A diferença no fator c_b em (8.10d) e (8.11b) é que o campo conjugado é observado a uma distância Z do meio não-linear mas sentido negativo do eixo Z enquanto que o campo de prova é observado a mesma distância no sentido positivo de Z . Note que no caso $R_c = -R_p$ os sinais de c_b em (8.10d) e (8.11b) são opostos. Da mesma forma o sinal de c_a em (8.10a) e (8.11a) são opostos, logo tal como mencionado no Capítulo VII a forma do perfil de intensidade não muda.

As expressões (8.10a) e (8.11a) para o cálculo do padrão de intensidade dos campos de prova são bastantes similares a (7.17a) que discutimos em detalhes no Capítulo VII. No caso $a \gg 1$, que significa $w_1 = w_2 \ll w_p$, o efeito da modulação de fase é desprezível pois os na região de interação entre os campos de prova e os campos de bombeio o perfil de

fase $F(y)$ (ou de índice de refração $n(y) \propto F(y)$) é praticamente constante. No caso geral a interpretação das equações (8.10a) e (8.11b) é a mesma que para (7.17a) com a diferença que no perfil de fase não-linear aparece o fator de escala $a = (w_b/w_p)^2$ e o campo gaussiano e^{-y^2} é multiplicado por uma função $f(y) = \tan(Q(y)L)$ ou $g(y) = \sec(Q(y)L)$ para o campo conjugado e o campo de prova respectivamente.

No modelo de YARIV-PEPPER temos uma limitação para o valor de c_a que é a divergência do modelo quando $|Q(y)|L \rightarrow \pi/2$. Por exemplo, no caso em que os dois campos de bombeio têm a mesma intensidade $\epsilon_{10} = \epsilon_{20}$ temos $F(y) = 2Q(y)$. Consequentemente o valor de c_a deve ser inferior a π . Além disso, quando c_a está próximo de π então $Q(y=0)$ está próximo de $\pi/2$ o que acarreta uma intensidade altíssima para os campos de prova em $y \sim 0$ mas baixa intensidade em $y \sim 1$. Ou seja, a amplitude dos campos $E_p(y)$ e $E_c(y)$ se aproximam de uma função delta em $y = 0$, devido a divergência do modelo em $Q = \pi/2$.

A Figura 8.2 mostra o que o efeito de MTF - CFMD40 para o modelo de YARIV-PEPPER. Figura 8.2a mostra o perfil de intensidade do feixe de prova com $w_p = w_p$ no plano de observação e a Figura 8.2b mostra o perfil de intensidade do feixe conjugado no caso $w_1 = w_2 = w_p$, $R_1 = R_2 = R_p = \infty$ e $Q(y=0) = 0.1$ que equivale a uma eficiência bastante baixa $\sim 1\%$. Neste caso temos de acordo com (8.3) $w_c = w_p/\sqrt{3}$ e como $Q(r=0) \ll \pi$ o efeito transversal não altera a forma gaussiana do feixe conjugado. A Figura 8.2c mostra o feixe conjugado no caso que $w_1 = w_2 = 10 w_p = 10W$, $R_1 = R_2 = R_\infty$ e $Q(r=0) = 0.1$, onde vemos que de acordo com (8.3) quando $w_p \ll w_1 = w_2$ o feixe conjugado tem a mesma forma do feixe de prova. A Figura 8.2d mostra o caso análogo ao da Figura 8.2b com $Q(r=0) = 1.57 - \pi/2$ que corresponde a uma eficiência de 1.5×10^6 , a refletividade fica próxima de uma função delta em $y=0$ e o campo E_c fica com um perfil bastante largo no campo distante a $Z \gg L, \lambda$. Isto ocorre porque a difração (que é uma Transformada de Fourier) de uma função delta é uma constante.

Figura 8.2. Efeito de MTF-CFMD40

a) perfil de intensidade do feixe de prova; b) perfil de intensidade do feixe conjugado no caso $w_p = w$; c) perfil de intensidade do feixe de prova no caso $w_p = 0.1w$; d) perfil de intensidade do feixe de prova próximo a condição de oscilação com $K/Q = 1.57$ (a condição de oscilação é $K/Q = \pi$). Todas as figuras têm a mesma escala no eixo horizontal, no eixo vertical a escala não é a mesma.

8.3. MFT - CFMD40 em Meios com Absorção Linear

Repetiremos o que foi feito na seção 8.2 para o modelo de YARIV/PEPPER sem absorção (seção 8.3) usando o modelo de YARIV/PEPPER com absorção linear que foi discutido na seção 3.4. Procedendo de maneira análoga ao feito para obtenção de (8.10) a partir de (3.53) obtemos:

$$|\epsilon_c(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-y^2} y dy f(y) e^{-i \left[-c_a e^{-2ay^2} + c_b y^2 \right]} J_0(\theta y) \right|^2 \quad (8.12a)$$

com:

$$F(y)L = c_a e^{-2ay^2} - \frac{2\pi k L}{n_0^2} \chi^{(3)} \left(\langle \epsilon_{10}^2 \rangle + \langle \epsilon_{20}^2 \rangle \right) e^{-2ay^2} \quad (8.12b)$$

$$\bar{Q}(y) = \frac{4\pi k}{n_0^2} \epsilon_{10} \epsilon_{20} e^{-2ay^2} \quad (8.12c)$$

$$f(y) = i \bar{Q} e^{-\alpha_0 L} \frac{\tan(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \quad (8.12d)$$

$$\gamma^2 = |\bar{Q}|^2 e^{-2\alpha_0 L} - \alpha_0^2 \quad (8.12e)$$

$$\langle \epsilon_i^2 \rangle = \frac{\epsilon_i (1 - e^{-2\alpha_0 L})}{2 \alpha_0 L} \quad i = 10, 20 \quad (8.12f)$$

onde para c_b , γ , θ e a continuam válidas as definições (8.10d) a (8.10g) respectivamente, logo supusemos também $w_1 = w_2 = w_b$. A equação (8.12b)

é análogo a (8.10b) com a diferença de que é preciso para este modelo considerar o valor médio da intensidade dos campos (veja 7.32b).

Analogamente obtemos para o campo de prova:

$$|\epsilon_p(R_1)|^2 \propto \left| \int_0^\infty e^{-y^2} y dy g(y) J_0(\theta y) e^{-i \left[c_a e^{-2a y^2} + c_b y^2 \right]} \right|^2 \quad (8.13a)$$

com:

$$g(y) = \bar{Q} e^{-\alpha_0 L} \frac{\sec(\gamma L)}{\alpha_0 \tan(\gamma L) + \gamma} \quad (8.13b)$$

e o fator c_b é dado por (8.11b).

Este modelo é mais realístico pois incluindo o efeito da absorção linear o valor de c_a pode aumentar sem que haja divergência da eficiência em $Q=\pi/2$. A Figura 8.3 mostra o gráfico de c_a na condição de ressonância: $\gamma = -\alpha_0 \tan(\gamma L)$ no caso em que $\epsilon_{10} = \epsilon_{20}$. Vemos que com o aumento de α_0 cresce também o máximo valor de c_a permitido, este valor é $\pi/2$ no caso $\alpha_0 = 0$. A Figura 8.4 mostra um exemplo onde temos o aparecimento de um padrão de anéis que desaparece no caso em que o $a = \left(\frac{w_b}{w_p} \right)^2 \gg 1$. Como era esperado, devido ao aumento de c_a com α_0 , vemos que tal como no Capítulo VII aparecem aberrações na forma de anéis cujo efeito aumenta com c_a .

O método utilizado neste capítulo para o cálculo do efeito de MTF - CFMD40 para o modelo de YARIV/PEPPER pode ser utilizado nos modelos de ABRAMS e LIND [31] e no modelo que discutimos no Capítulo V para os cristais com Cr^{+3} (meios tipo Kerr com saturação). É preciso observar que fizemos o cálculo de MTF - CFMD40 apenas no caso que o feixe de prova e os feixes de bombeio são colineares, ou seja, se propagam na

mesma direção $z = z'$. Entretanto, isto não ocorre nas experiências onde em geral se trabalha com um ângulo pequeno $\theta \sim 1^\circ$ entre os feixes. Neste caso temos um perfil de índice de refração na direção z' (direção dos feixes de bombeio E_1 e E_2) e os feixes fracos (E_c e E_p) que se propagam na direção z que faz um ângulo θ com z' . Por isso o problema deixa de ter simetria cilíndrica e a integral de difração precisa ser calculada em duas dimensões (será conveniente usar-se um programa de Transformada Rápida de Fourier para este cálculo). Este efeito de perda de simetria cilíndrica no perfil de fase $\phi(r, \phi)$ deve aumentar com o aumento do ângulo θ entre os feixes de bombeio e de prova.

Parametro Ca da condição de oscilação da CFMD40
em função do Coef. de Absorção

Figura 8.3. Gráfico dos valores de Ca e γ da condição de ressonância em função do aumento de α_0 .

Figura 8.4. Em linha cheia temos o padrão de intensidade $I_c(R)$ no caso, $a=1$, $c_b=0$, $c_a=7.5$, $L=0.15\text{cm}$, $\omega_0=0.85\text{ cm}^{-1}$ (o que corresponde a uma eficiência máxima da CFMD40 ~ 10). Em linhas pontilhadas temos a curva cheia amplificada por um fator 5.8. Todos os feixes incidentes (E_1 , E_2 e E_p) têm raio de curvatura infinito, logo $c_b=0$. Em linha tracejada temos os mesmos parâmetros do caso anterior porém com $a=10$, ou seja, $\omega_b \sim 3.2\omega_p$. Esta mesma curva tracejada representa também o limite de baixa intensidade $c_a \ll \pi$, onde o efeito de MTF-CFMD40 desaparece..

IX. Discussão dos Resultados e Conclusão

Estudamos o efeito não-linear associado a $\chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) \propto n_2$ em cristais com Cr^{+3} através de três técnicas diferentes: a experiência de autodifração (discutida no Capítulo VI para a alexandrita), CFMD40 e Modulação Transversal de Fase (em rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$). As medidas feitas com laser de Ar em rubi e $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ (Cap. V e VII) [2,73] apresentam uma boa concordância com as medidas de n_2 feitas anteriormente através de um método interferométrico. Para a determinação precisa do valor de n_2 o método interferométrico é mais adequado pois o sinal medido é proporcional à variação de fase no interferômetro, que é diretamente proporcional a variação de índice de refração $\Delta n = n_2 I$. No caso da CFMD40 o sinal medido é proporcional a intensidade do campo conjugado $I_c \propto (n_2)^2 I_1 I_2 I_p$ e o valor de n_2 é calculado pela expressão da eficiência da CFMD40 $R = (I_c/I_p) \propto |n_2|^2 I_1 I_2$, ou seja, não é uma medida direta. Nas experiências de rede induzida por laser, autodifração e CFMD40 mede-se o valor de $|n_2|$ porisso não obtém-se a informação sobre contribuição relativa da parte real e imaginária de n_2 . Em cristais dopados com Cr^{+3} (e para corantes orgânicos que também são muito usados como meio ativo em lasers) existia uma controvérsia sobre a natureza real (dispersiva) ou imaginária (absortiva) da não linearidade. Através do espectro de absorção do estado excitado a parte absortiva era conhecida porisso muitos autores [23,32,49,50,64] usaram o modelo do sistema de dois níveis, no caso $\delta = 0$ onde não-linearidade é dispersiva, para interpretar seus resultados. O caráter dispersivo de n_2 em cristais com Cr^{+3} foi demonstrado experimentalmente pela primeira vez através da medida interferométrica de n_2 [1] (para o rubi $n_2' \sim 10 n_2''$) sendo confirmado com medidas de mistura de duas ondas não degeneradas [61,64] e neste trabalho com medidas de Modulação Transversal de Fase [73]. Em corantes (na verdade vidro dopado com fluoresceína) foi observado $n_2' \sim 4 n_2''$ numa medida de mistura de duas ondas não degeneradas [60].

O valor de n_2 pode ser estimado através da experiência de Modulação Transversal de Fase porém não é um método direto pois é necessário comparar o padrão de intensidade calculado através da integral de difração com o resultado experimental. A montagem e a realização da experiência são bastantes simples pois não existem problemas de alinhamento e instabilidade como no método interferométrico e na CFMD40. A grande desvantagem desta experiência com o objetivo de se medir n_2 é que é necessário uma grande variação de índice de refração que dê uma variação de fase $\Delta\phi > 1$. No caso $\Delta\phi \ll 1$ a variação da forma do padrão de intensidade não é mensurável e o valor de n_2 não pode ser determinado. Para determinação de pequenos valores de n_2 o melhor método é o diferencial interferométrico pois permite medir $\Delta\phi < 10^{-2}$ rad (o que equivale a $\Delta n \sim 10^{-7}$ para um cristal com $L = 1$ cm). No caso da CFMD40 $R = (2 \Delta n k L)^2 = (2 \Delta\phi)^2$, logo supondo $R \sim 10^{-3}$ equivale a $\Delta\phi \sim 10^{-2}$. A montagem do método interferométrico é mais conveniente por ser compacta (~ 10 cm) o que torna o alinhamento mais simples e menos sensível a vibrações. A experiência de Modulação Transversal de Fase pode ser conveniente em alguns casos, por exemplo se $|n_2|$ é conhecido mostramos no Capítulo VII que a forma dos anéis depende fortemente do fato de n_2 ser dispersivo ou absoritivo.

Obtivemos um bom acordo para os valores de n_2 medidos pelo método interferométrico [1] os resultados de CFMD40 [2], Modulação Transversal de Fase (Capítulo VII) e para o rubi na mistura não degenerada de duas ondas [61,64]. No Capítulo VII usamos valores de $n_2 \sim 20\%$ maiores que os obtidos pelo método interferométrico (veja as tabelas 7.1 e 4.2), na referência [61] é mencionado apenas que os resultados concordam com os da medida interferométrica e na Referência [64] obteve-se $n_2 \sim 50\%$ maior que os obtidos no método interferométrico. Na nossa experiência de CFMD40 existe uma discrepância $\sim 50\%$, ou seja, a eficiência da CFMD40 obtida equivale a valores de $n_2 \sim 50\%$ menores que os obtidos pelo método

interferométrico. Na Referência [2] fizemos o cálculo errado, pois usamos $R = (n_2 kL)^2$, o que equivale a considerar apenas o efeito de uma rede das duas redes mostradas na Figura 2.7. No Capítulo V consideramos o efeito das duas redes que resulta em $R = (2 n_2 kL)^2$. Desta maneira o valor de n_2 obtido da Referência [2] era 50% maior que o da Referência [1] enquanto que no Capítulo V obtivemos n_2 50% menor devido a discrepância do fator 4 no cálculo de R . Entretanto não é conhecido nos cristais em Cr^{+3} as duas redes contribuem da mesma forma para a CFMD40. É possível que devido a migração de energia entre os Cr^{+3} a rede com menor período Λ_2 (para θ pequeno $\Lambda_2 \sim \lambda/2$) dê uma contribuição menor. É importante considerar ainda que na Referência [1] o valor de n_2 foi medido para $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ (laser de HeNe) enquanto nos outros trabalhos usou-se $\lambda = 5145 \text{ \AA}$. Por isso a variação de n_2 pode ser devido a sua variação com o comprimento de onda.

Outro ponto importante que foi levantado na Referência [2] é sobre a origem dos efeitos de saturação na CFMD40. Inicialmente achamos que estes efeitos estavam associados a efeitos transversos, tal como mencionado em outros trabalhos [47,51]. Nossas medidas de Modulação Transversal de Fase mostraram (pelo menos para cristais finos) embora apareça uma grande variação do padrão de intensidade no campo distante dentro do cristal o perfil do campo não se altera significativamente. Consequentemente a intensidade média I dentro do cristal não muda e a eficiência da CFMD40 $R \propto I^2$ não varia. No Capítulo V, calculamos o efeito de saturação CFMD40, considerando apenas a saturação da não-linearidade do meio não-linear $n_2 \propto (1 + I/I_s)^{-1}$, obtendo bom acordo com os resultados experimentais. Também na Modulação Transversal de Fase (Capítulo VII) mostramos, pela primeira vez na literatura, que o efeito de saturação do efeito não-linear é muito importante para a forma do padrão de intensidade. Tanto no Capítulo V como no Capítulo VII obtivemos um bom acordo para entre o valor de I_s para o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ estimado no Capítulo IV e os resultados experimentais.

No Capítulo VIII calculamos, pela primeira vez na literatura, o efeito de Modulação Transversal de Fase na CFMD40. Mostramos que este efeito pode gerar grandes aberrações no campo conjugado mas que podem ser evitadas quando se trabalha com o feixe de prova muito mais focalizado que os feixes de bombeio ($w_p \ll w_1, w_2$).

No Capítulo VI medimos pela primeira vez o espectro de $\chi^{(3)}$ degenerado (ou seja, $n_2 \propto \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega)$) na linha R, que é a transição laser, de um cristal com Cr^{+3} . Este tipo de medida, ou seja, $\chi^{(3)}$ numa linha estreita, só foi observado anteriormente em sólidos em "excitons" de semicondutores [67]. Nos parece claro que é preciso considerar a contribuição não ressonante (a mudança de polarizabilidade entre os estados excitado e fundamental do Cr^{+3}) conjuntamente com a contribuição ressonante do sistema de dois níveis neste problema. É necessário um estudo experimental e teórico (considerando a forma de linha inhomogênea do meio) mais aprofundado deste problema.

Finalmente consideramos que além da contribuição que fizemos para a compreensão do efeito não-linear em cristais dopados com Cr^{+3} os métodos empregados e os resultados que obtivemos tem interesse geral em CFMD40. A questão que abordamos sobre as partes real e imaginária de $\chi^{(3)}$, os efeitos de saturação e os efeitos transversos são de interesse para diversos meios não-lineares tais como semicondutores, vapores atômicos e corantes orgânicos [9,11]. Demonstramos que o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ é um material muito interessante para ótica não-linear, seu valor de n_2 é duas vezes maior que o rubi e o mais alto de todos os cristais com Cr^{+3} para a linha 5145 Å do Ar. Os cristais feroelétricos por exemplo, têm n_2 basante alto ($n_2 \sim 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{w}$) porém como são muito lentos (seu tempo de resposta varia de segundos até horas) não podem ser usados em muitas aplicações. Possivelmente o $\text{GdAlO}_3 : \text{Cr}^{+3}$ é o material com maior fator $n_2 I_s/\alpha_0$ com tempo de resposta $\sim \text{m seg}$ que pode ser utilizado com laser de Ar.

Apêndice A

As equações de Maxwell no sistema MKS são:

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho \quad (\text{A.1})$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0$$

$$\nabla \times \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

$$\nabla \times \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

A relação entre o vetor deslocamento $\vec{D}$ e a polarização é:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (\text{A.2})$$

onde $\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}$. De maneira análoga a equação (3.19) obtemos:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (\text{A.3})$$

como $\vec{P}_L = \epsilon_0 \chi \vec{E}$ e $\mu_0 \epsilon_0 = 1/c^2$ obtemos:

$$\nabla^2 E - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (\text{A.4})$$

com $n_0^2 = 1 + \chi$. A equação (3.23b) para a amplitude do campo ϵ_j é obtida a partir da equação (A.4) da mesma forma que (3.23a) foi obtida de (3.20).

A relação entre n_2 e $\chi^{(3)}$ também é determinada de modo análogo ao feito no CGS (3.47):

$$n = n_0 + n_2 \epsilon^2 = \sqrt{1 + \chi^{(1)} E + \chi^{(3)} E^3} \quad (\text{A.5a})$$

$$\therefore n_2 = \frac{1}{2} \frac{\chi^{(3)}}{n_0} \quad (\text{A.5b})$$

No MKS a equação de Claussius Mosoti (equação 4.7) fica:

$$\frac{n_2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{\chi}{3} \quad (\text{A.6})$$

consequentemente a equação (4.9b), que é o valor de n_2 escrito no MKS considerando o campo local, fica:

$$n_2 = \frac{1}{18} \frac{\left(n_2^2 + 2\right)^2}{n_0} \cdot \frac{(\chi_3 - \chi_1)}{I_s} \quad (\text{A.7})$$

Apêndice B

B.1. Cálculo da CFMD40 para o sistema de dois níveis

Para o cálculo da CFMD40 no sistema de dois níveis reescrevemos inicialmente a expressão (3.61) para a polarização:

$$P = \epsilon_0 \chi_0 E_0 + \epsilon_0 \chi_0 \Delta E - \frac{\epsilon_0 \chi_0}{I_s} \frac{(E_0 \Delta E^* + E_0^* \Delta E) E_0}{1 + |E_0|^2 / I_s} \quad (\text{B.1})$$

lembrando que $E_0 = E_1 + E_2$ e $\Delta E = E_c + E_p$ temos:

$$P = \epsilon_0 \chi_0 (E_1 + E_2) - \frac{\epsilon_0 \chi_0 (E_1^2 + E_2^2 + 2E_1 E_2) (E_p^* + E_c^*)}{I_s + |E_0|^2} - \frac{\epsilon_0 \chi_0 (E_p + E_c) (|E_1|^2 + |E_2|^2 + E_1 E_2^* + E_1^* E_2)}{I_s + |E_0|^2} \quad (\text{B.2})$$

lembrando que

$$\begin{aligned} E_p &= \epsilon_p(z) e^{i(\omega t - kz)} & E_c &= \epsilon_c(z) e^{i(\omega t + kz)} \\ E_1 &= \epsilon_1 e^{i(\omega t - kz')} & E_2 &= \epsilon_2 e^{i(\omega t + kz')} \end{aligned}$$

onde ϵ_1 e ϵ_2 são as amplitudes dos feixes de bombeio que supusemos constantes. Percebemos que todos os termos da polarização oscilam temporalmente na frequência ω . Por inspeção da expressão (B.2) tomamos as componentes que oscilam espacialmente como os campos fracos E_p e E_c :

$$P_p = \epsilon_0 \chi_0 E_p - \epsilon_0 \chi_0 \frac{\left(|E_1|^2 + |E_2|^2 + E_1 E_2^* + E_2 E_1^* \right) E_p}{I_s + |E_0|^2} - \epsilon_0 \chi_0 \frac{\left(E_1^2 + E_2^2 + 2 E_1 E_2 \right) E_p^*}{I_s + |E_0|^2} \quad (B.3)$$

$$P_c = \epsilon_0 \chi_0 E_c - \epsilon_0 \chi_0 \frac{\left(|E_1|^2 + |E_2|^2 + E_1 E_2^* + E_2 E_1^* \right) E_c}{I_s + |E_0|^2} - \epsilon_0 \chi_0 \frac{\left(E_1^2 + E_2^2 + 2 E_1 E_2 \right) E_p^*}{I_s + |E_0|^2} \quad (B.4)$$

reescrevendo

$$P_p = \frac{\epsilon_0 \chi_0}{1 + |E_0|^2 / I_s} \left[E_p - \left(E_1^2 + E_2^2 + 2 E_1 E_2 \right) \frac{E_c^*}{I_s} \right] \quad (B.5)$$

$$P_c = \frac{\epsilon_0 \chi_0}{1 + |E_0|^2 / I_s} \left[E_c - \left(E_1^2 + E_2^2 + 2 E_1 E_2 \right) \frac{E_p^*}{I_s} \right] \quad (B.6)$$

Fazendo a aproximação do pacote que varia lentamente (que resulta na equação (3.23b)) para os campos E_c e E_p (para este caso fazemos $n_0 = 1$ na equação (3.23b)). Usando (B.5), (B.6) e (B.7) podemos obter um sistema de equações para as amplitudes ϵ_p e ϵ_c :

$$\frac{\partial \epsilon_c}{\partial z} = A(z') \epsilon_c + B(z') \epsilon_p^* \quad (\text{B.8})$$

$$\frac{\partial \epsilon_p}{\partial z} = -A(z') \epsilon_p + B(z') \epsilon_c^* \quad (\text{B.9})$$

com

$$A(z') = A(\xi) = i c \alpha_0 \frac{1 - i\delta}{1 + \delta^2} \frac{1}{\left[1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_1^2)}{I_s} + \frac{2 \cos \xi \cdot \epsilon_1 \epsilon_2}{I_s} \right]^2} \quad (\text{B.10})$$

$$B(z') = B(\xi) = -i c \alpha_0 \frac{1 - i\delta}{1 + \delta^2} \frac{\epsilon_1^2 e^{-i\xi} + \epsilon_1^2 e^{i\xi} + 2 \epsilon_1 \epsilon_2}{I_s \left[1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_1^2)}{I_s} + \frac{2 \cos \xi \cdot \epsilon_1 \epsilon_2}{I_s} \right]^2} \quad (\text{B.11})$$

sendo $\xi = 2 k z'$, e $c = \frac{ik}{2n_0^2}$ (estamos adotando $n_0 = 1$).

O sistema de equações (B.8) e (B.9) acima é resolvido pelo método W. K. B. ou seja, tomando a média dos coeficientes $A(\xi)$ e $B(\xi)$:

$$\langle A(\xi) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} A(\xi) d\xi = i c \alpha_0 \frac{(1 - i\delta)}{1 + \delta^2} \frac{J_1}{\left[1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_1^2)}{I_s} \right]^2} \quad (\text{B.12})$$

$$\langle B(\xi) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} B(\xi) d\xi = -i c \alpha_0 \frac{(1 - i\delta)}{1 + \delta^2} \frac{\epsilon_1^2 J_3 + \epsilon_2^2 J_2 + 2 \epsilon_1 \epsilon_1 J_1}{\left[1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_1^2)}{I_s} \right]^2} \quad (\text{B.13})$$

onde J_1 , J_2 e J_3 são fatores calculados por integrais que foram resolvidas pelo método dos resíduos:

$$J_1 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{d\xi}{(1 + p \cos \xi)^2} = \frac{1}{(1 - p^2)^{3/2}} \quad (\text{B.15})$$

$$J_2 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^{i\xi} d\xi}{(1 + p \cos \xi)^2} = \frac{-p}{(1 - p^2)^{3/2}} \quad (\text{B.16})$$

$$J_3 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^{-i\xi} d\xi}{(1 + p \cos \xi)^2} = \frac{-p}{(1 - p^2)^{3/2}} \quad (\text{B.17})$$

com

$$p = \frac{\frac{2 \epsilon_1 \epsilon_l}{I_s}}{1 + \frac{(\epsilon_1^2 + \epsilon_l^2)}{I_s}}$$

Usando as expressões (B.12) a (B.17) e substituindo $A(z')$ e $B(z')$ por $\langle A(z') \rangle$ e $\langle B(z') \rangle$ respectivamente no sistema de equações (B.8) e (B.9) obtemos finalmente:

$$\frac{d \epsilon_p^*(z)}{d z} = -\eta^* \epsilon_p(z) + i \beta^* \epsilon_c(z) \quad (\text{B.18})$$

$$\frac{d \epsilon_p^*(z)}{d z} = -\eta^* \epsilon_p(z) + i \beta \epsilon_c(z) \quad (\text{B.19})$$

com:

$$\eta = \alpha_0 \frac{1 - i\delta}{1 + \delta^2} \frac{1 + \frac{\left(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2\right)}{I_s}}{\left\{ 1 + \frac{2\left(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2\right)}{I_s} + \frac{\left[\left(\epsilon_1^2 - \epsilon_2^2\right)\right]^2}{I_s^2} \right\}^{3/2}}$$

$$i\beta^* = -\alpha_0 \frac{1 - i\delta}{1 + \delta^2} \frac{1 + \frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{I_s}}{\left\{ 1 + \frac{2\left(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2\right)}{I_s} + \frac{\left[\left(\epsilon_1^2 - \epsilon_2^2\right)\right]^2}{I_s^2} \right\}^{3/2}}$$

B.2. Cálculo da CFMD40 para o caso de n₂ saturável

Devemos resolver o sistema de equações (5.11) usando o método W. K. B. tal como feito para as equações (B.8) e (B.9). O sistema de equações (5.11) é identificado com as equações (B.8) e (B.9) mas com os parâmetros A (z') e B (z') (veja equação (5.11)) dados por:

$$A(z') = \frac{\alpha_1}{2} + i n_2 \frac{\omega}{c} \left[\frac{s}{1+s} + \frac{s}{(1+s)^2} \right] \quad (B.20)$$

$$B(z') = i n_2 \frac{\omega}{c} \cancel{\frac{1}{s}} \frac{E_0^2}{(1+s)^2} \quad (B.21)$$

para obter $\langle A(z') \rangle$ e $\langle B(z') \rangle$ temos que calcular:

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{1}{I_s} \frac{|E_0|^2}{(1+s)^2} \right\rangle &= \frac{1}{2\pi} \frac{1}{I_s} \int_0^{2\pi} \frac{I_1 + I_2 + 2(\cos \xi) \sqrt{I_1 I_2}}{\left[1 + \frac{I_1 + I_2}{I_s} \right]^2 (1 + p \cos \xi)^2} d\xi \\
&= \frac{1}{I_s \left(1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s} \right)} \left[(I_1 + I_2) G_1 + \sqrt{I_1 I_2} (G_2 + G_3) \right] \quad (B.22)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{1}{I_s} \frac{E_0^2}{(1+s)^2} \right\rangle &= \frac{1}{2\pi I_s} \int_0^{2\pi} \frac{I_1 e^{-i\xi} + I_2 e^{i\xi} + 2 \sqrt{I_1 I_2}}{\left[1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s} \right]^2 (1 + p \cos \xi)^2} d\xi \\
&= \frac{1}{I_s} \left[I_1 G_3 + I_2 G_2 + 2 \sqrt{I_1 I_2} G_1 \right] \quad (B.23)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{1}{I_s} \frac{E_0^2}{(1+s)} \right\rangle &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{I_1 + I_2 + 2 \sqrt{I_1 I_2} \cos \xi}{(1 + I_1 + I_2) (1 + p \cos \xi)} d\xi \\
&= \frac{1}{I_s} \frac{J_1(I_1 + I_2) + \sqrt{I_1 I_2} (J_2 + J_3)}{1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}} \quad (B.24)
\end{aligned}$$

com J_1 , J_2 e J_3 dados por (B.15), (B.16) e (B.17) e:

$$p = \frac{\frac{2 \sqrt{I_1 I_2}}{I_s}}{1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}}$$

$$G_1 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{d\xi}{(1 + p \cos \xi)} = \frac{1}{(1 - p^2)^{3/2}}$$

$$G_2 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^{i\xi} d\xi}{(1 + p \cos \xi)} = \frac{1}{p} \frac{(1 - p^2)^{1/2} - 1}{(1 - p^2)^{1/2}}$$

$$G_3 = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{e^{-i\xi} d\xi}{(1 + p \cos \xi)^2} = G_2$$

$$\begin{aligned} \langle A(z') \rangle = & \frac{\alpha_1}{2} + \left[\frac{(I_1 + I_2) G_1 + \sqrt{I_1 I_2} (G_2 + G_3)}{1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}} \right] \frac{i n_2 \omega}{I_s c} \\ & + \left[\frac{(I_1 + I_2) J_1 + \sqrt{I_1 I_2} (J_2 + J_3)}{\left(1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}\right)^2} \right] \frac{i n_2 \omega}{I_s c} \end{aligned} \quad (B.25)$$

$$\langle B(z') \rangle = \frac{i n_2 \omega}{I_s c} \frac{I_1 G_3 + I_2 G_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} G_1}{\left(1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}\right)^2} \quad (B.26)$$

substituindo os valores de J_1, J_2, J_3, G_1, G_2 e G_3 temos:

$$\langle A(z') \rangle = \frac{\alpha_1}{2} + \frac{i n_2 \omega}{c} \left\{ 1 - \frac{1 + \frac{(I_1 + I_2)}{I_s}}{\left(1 + \frac{2(I_1 + I_2)}{I_s} + \left(\frac{(I_1 - I_2)}{I_s} \right)^2 \right)^{3/2}} \right\} \quad (\text{B.27})$$

$$\langle B(z') \rangle = \frac{i n_2 \omega}{I_s c} \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{\left(1 + \frac{2(I_1 + I_2)}{I_s} + \left(\frac{(I_1 - I_2)}{I_s} \right)^2 \right)^{3/2}} \quad (\text{B.28})$$

Obtemos então o mesmo sistema de equações (B.18) e (B.19) com $\eta = \langle A(z') \rangle$ e $\beta = \langle B(z') \rangle$ dados em (B.28) e (B.29). De modo análogo ao caso do sistema de dois níveis para o cálculo da eficiência da CFMD40 considera-se apenas a parte real de $\eta = \eta_r + i \eta_i$ enquanto que sua parte imaginária aparece somente no efeito de Modulação de Fase.

Apêndice C

Neste apêndice vou demonstrar como aparece o fator $4/3$ (veja equação (5.4b)) que aparece quando se considera o perfil de intensidade gaussiano dos três campos (E_1 , E_2 e E_p) incidentes no processo de CFMD40:

$$I_j(r) = I_{j0} e^{-2r^2/w^2} \quad j = 1,2,p \quad (C.1)$$

$$\text{com } I_{j0} = \frac{2 P_j}{\pi w^2}$$

onde w é o raio médio dos feixes (supomos que todos os feixes têm o mesmo w o que corresponde a nossa montagem experimental) e P_j é a potência do jésimo feixe.

No limite de baixa intensidade de bombeio a eficiência da CFMD40 é proporcional ao produto das intensidades I_1 , I_2 :

$$R = \frac{I_c}{I_p} = c I_1 \cdot I_2 \quad (C.2)$$

logo:

$$I_c(r) = c I_1(r) \cdot I_2(r) \cdot I_p(r) \quad (C.3)$$

Nas experiências de CFMD40 detetamos a potência total do feixe conjugado P_c :

$$P_c = \int I_c(r) 2\pi r dr \quad (C.4)$$

usando (C.1) em (C.4) obtemos:

$$P_c = c \left(\frac{2}{\pi w^2} \right)^2 P_1 P_2 P_p \int_0^{\infty} e^{-2r^2/w_c^2} 2\pi r dr \quad (C.5)$$

$$\text{com } w_c^2 = \frac{w^2}{3}.$$

Integrando (C.5) obtemos:

$$R = \frac{P_c}{P_p} = \frac{c}{3} \left(\frac{2}{\pi w^2} \right)^2 P_1 P_2 = \frac{c}{3} I_{10} I_{20} \quad (C.6)$$

pois a eficiência da CFMD40 é experimentalmente medida pela relação entre as potências totais dos feixes. Sendo a intensidade média dada por $\langle I_j \rangle = I_{j0}/2$ podemos reescrever (C.6) como:

$$R = \frac{4}{3} c \langle I_1 \rangle \langle I_2 \rangle \quad (C.7)$$

Comparando (C.7) com (C.2) percebemos que o fator $4/3$ precisa ser considerado quando se usa feixes com perfil gaussiano de intensidade pois a expressão (C.2) é válida somente quando o perfil de intensidade é uniforme.

Referências

- [1] CATUNDA, T.; ANDREETA, J. P. and CASTRO, J. C. Differential interferometric technique for the measurement of the nonlinear index of refraction of Ruby and $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{+3}$. Appl. Opt. **25**(1986) 2391.
- [2] CATUNDA, T. AND CASTRO, J. C. Phase conjugation in $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{+3}$ and Ruby. Opt. Comm. **63** (1987) 185.
- [3] BOERSCH, H. and EICHLER, H. Beugung an einem mit stehenden lichtwellen gepumpten Rubin. Z. Angew Phys. **22** (1967) 378.
- [4] GIULIANO, C. R. Applications of optical conjugation. Phys. Today, April, 1981.
- [5] SHKUNOV, V. V. and ZEL'DOVICH, B. YA. Optical phase conjugation. Scientific America, Dezember, 1985.
- [6] PEPPER, D. M. Application of optical phase conjugation. Scientific America, Januar, 1986.
- [7] ABER-MOSTAFA, Y. S. and PSALTIS. Optical neural computers. Scientific America, March, 1987.
- [8] DAVIDOVICH, L. Hologramas dinâmicos e espelhos conjugados. Ciência Hoje **4**, nº 22, pg. 16, 1986.
- [9] FISCHER, R. A. Optical phase conjugation. (Academic Press, 1983).
- [10] ZEL'DOVICH, B. Ya; PILIPETSKY, N. F. and SHKUNOV, V. V. Principles of phase conjugation. Springs series in Optical Sciences, vol. 42 (Spring Verlag, 1985).
- [11] EICHLER, H. J.; GUNTER, P. and POHL, D. W. Laser-induced dynamic gratings. Springs series in Optical Sciences, Vol. 50 (Spring Verlag, 1986).

- [12] OPTICAL ENGINEERING. Special Issue in Optical Phase Conjugation.
March/April **21** (2) 1982.
- [13] IEE J. Quantum Electronics. Special Issue on Dynamic Gratings and
Four-Wave Mixing. August **QE22** (8), 1986.
- [14] YARIV, A. IEEE J. Quantum Elect. **QE-15** (1979) 524.
- [15] YARIV, A. Introduction to Optical Electronics. Ed. Holt, Rinehart and
Wiston, 1971.
- [16] AKHMANOV, R. A.; KHOKHOLOV, R. V. and SUKHAMKOV, A. P. In: Laser
Handbook, Vol. 2, Cap. E3. F. T. ARECCHI and E. O. SCHULZ-DUBOIS,
eds., North-Holland Publishing Company, 1972.
- [17] SHEN, Y. R. The principles of nonlinear optics. Ed. John wiley & Sons,
1984.
- [18] BORN, M. and WOLF, E. Principles of optics. Ed. Pergamon Press, Cap,
3, 1st edition, 1959.
- [19] DABBY, F. W.; GUSTAFSON, T. K.; WHINNERY, Y. R. and KOHANZADEH, Y.
Thermally self-induced phase modulation of laser beams. Appl.
Phys. Lett. **16** (1970) 362.
- [20] DUBIN, S. D. ; ARAKELIAN S. M. and SHEN, Y. R. Laser-induced diffractions
rings from nematic liquid-crystal film. Opt. Lett. **9** (1981) 411.
- [21] TARASSOV, L. Bases Physiques de l'Electronique Quantique. Ed. MIR,
Moscou, 1976.
- [22] FRANKEN, P. A.; HILL, A. E.; PETERS, C. W. and WEINREICH, G. Generation
of optical harmonics. Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
- [23] FRAGNITO, H. L.; PEREIRA, S. F.; KIEL, A. High-order optical nonlinearities
in saturable absorbers. Opt. Lett. **11** (1986); FRAGNITO, H. L.;

- PEREIRA, S. F. ; KIEL, A. Self-diffraction in population gratings. JOSA B 4 (1987), 1309.
- [24] HELLWARTH, R. W. Generation of time-reversed wave fronts by nonlinear refraction. J. Opt. Soc. Am. **67** (1977) 1.
- [25] YARIV, A. ; PEPPER, D. M. Amplified reflection, phase conjugation and oscillation in degenerate four-wave mixing. Opt. Lett. **1** (1977) 16.
- [26] YARIV, A. Four wave nonlinear optical mixing as real time holography. Opt. Comm. **25** (1978) 23.
- [27] STEPANOV, B. I. ; IVAKIN, E. V. and RUBANOV, A. S. Recording two-dimensional and three-dimensional dynamic holograms in transparent substances. Sov. Phys.-Dokl 16 (1971) 46.
- [28] ZELDOVICH, B. Y. ; POPOVICHEV, V. I. ; RAGULSKII, V. V. and FAISULOV, F. S. Connection between the wave fronts of the reflected and exciting light in stimulated Mandel'shtam Brillouin scattering". Sov. Phys. JETP **15** (1972) 109.
- [29] BLOOM, D. M. and BJORKLUND, G. C. Conjugate wave-front generation and image reconstruction by four-wave mixing. Appl. Phys. Lett. **31**, 592.
- [30] id. ibid. ref. [9], pg. 14.
- [31] ABRAMS, R. L. and LIND, R. C. Degenerate four-wave mixing in absorbing media. Opt. Lett. **2** (1977) 94; and Opt. Lett. **3** (1978) 205.
- [32] SILBERBERG, Y. and BAR-JOSEPH, I. Low-power phase conjugation in thin films of saturable absorbers. Opt. Commun. **39** (1981) 265; SILBERBERG, Y. and BAR-JOSEPH, I. Transient effects in degenerate

- four wave mixing in saturable absorbers. IEEE J. Quantum Electron **QE-17** (1981) 1967.
- [33] YARIV, A. Quantum Electronics, cap. 8, pg. 149, ed. John Wiley & Sons, Inc. (1985).
- [34] JAVAN, A. and KELLEY, P. L. Possibility of self-focusing due to intensity dependent anomalous dispersion. IEEE J. Quantum Electron **2** (1966) 470.
- [35] BROWN, W. P. Absorption and depletion effects on degenerate four-wave mixing in homogeniously broadened absorbers. J. Opt. Soc. Am. **73** (1983) 629.
- [36] CRONEMEYER, D. C. Optical absorption characteristics of pink Ruby. J. Opt. Soc. Am. **56** (1966) 1703.
- [37] id. ibid. ref. [11], pg. 50.
- [38] ANDREETA, J. P. Uma abordagem experimental da condição de estabilidade de crescimento de soluções sólidas pelo método de fluxo. Rev. Bras. Fís. Aplic. Instrum. **1** (1985) 97 - ANDREETA, J. P. ; HERNANDES, A. C. and GALLO, N. J. H. Segregation effects in $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{+3}$ growth by HTS and CZ. Mat. Res. Bull. **24** (1989) - ANDREETA, J. P. ; HERNANDES, A. C. and GALLO, N. J. H. Growth and homogeneity of Cr^{+3} doped GdAlO_3 single crystals. Submitted to Mat. Res. Bull. (julho de 1989).
- [39] MURPHY, J. and OHLMANN, R. C. Spectrum of Cr^{+3} in $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{+3}$. In: Optical Properties of Ions in Crystals, Interscience Publishers, John Wiley & Sons, 1967.
- [40] BASSO, H. C. Propriedades óticas dos íons isolados e dos pares de Cr^{+3} em $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{+3}$. Dissertação de mestrado apresentada ao Instituto de Física e Química de São Carlos, USP, 1980. AEGERTER, M. A. ;

- BASSO, H. C. and SCHEEL, H. J. Optical properties of $\text{GdAlO}_3\text{:Cr}^{3+}$.
In: Proc. International Conference on Lasers, Vol. 80 (1980) 383.
- [41] WALLING, J. C. ; PETERSON, G. O. ; JENSSEN, H. P. ; MORRIS, R. C. and O'DELL, E. W. Tunable Alexandrite Lasers. IEEE J. Quant. Electron. QE-16 (1980) 1302.
- [42] NELSON, D. F. and STURGE, M. D. Relation between absorption and emission in the region of the R lines of Ruby. Phys. Rev. B **137** (1965) A1117.
- [43] GERRITSEN, H. J. Nonlinear effects in image formation. Appl. Phys. Lett. **10** (1967) 239.
- [44] HILL, K. O. Simple transient holograms in Ruby. Appl. Opt. **10** (1971) 1965.
- [45] EICHLER, H. ; SALJE, G. and STAHL, H. Thermal diffusion measurements using spatially periodic temperature distribution induced by laser light. J. Appl. Phys. **44** (1973) 5383.
- [46] VENKATESA, T. N. C. and MCCALL, L. S. Optical bistability and differential gain between and 296°K in a Fabry-Perot containing Ruby. Appl Phys. Lett. **30** (1977) 282.
- [47] LIAO, P. F. and BLOOM, D. M. Continuous-wave backward wave generation by degenerate four-wave mixing in Ruby. Opt. Lett. **3** (1978) 4.
- [48] HAMILTON, D. S. ; HERMAN, D. ; FEIBERG, J. and HELLWARTH, R. W. Spatial-diffusion measurements in impurity-doped solids by degenerate four-wave mixing. Opt. Lett. **4** (1979) 124.
- [49] LAWSON, C. M. ; POWELL, R. C. and ZWICKER, W. K. Measurements of excitation diffusion lengths in $\text{Nd}_x\text{La}_{1-x}\text{P}_5\text{O}_{14}$ by four-wave mixing

- techniques. Phys. Rev. Lett. **15** (1981) 1020. LAWSON, C. M. ; POWELL, R. C. and ZWICKER, W. K. Transient grating investigation of excitation diffusion and fluorescence quenching in $\text{Nd}_x\text{La}_{1-x}\text{P}_5\text{O}_{14}$ crystals. Phys. Rev. B **26** (1982) 4386. TYMINSKI, J. K. ; POWELL, R. C. and ZWICKER, W. K. Investigation of four-wave mixing in $\text{Nd}_x\text{La}_{1-x}\text{P}_5\text{O}_{14}$. Phys. Rev. B **29** (1984) 6074.
- [50] GHAZZWI, A. M. ; TYMINSKI, J. K. ; POWELL, R. C. and WALLING, J. C. Four-wave mixing in Alexandrite crystals. Phys. Rev. B **12** (1984) 7182. SUCHOCKI, A. ; GILLIAND, G. D. and POWELL, R. C. Four-wave mixing measurements of energy migration and radiationless relaxation process in Alexandrite crystals. Phys. Rev. B **35** (1987) 5830. GILLIAND, G. D. ; SUCHOCKI, A. ; VERSTEEG, K. W. and POWELL, R. C. Laser-induced grating spectroscopy of Alexandrite crystals. Phys. Rev. B **38** (1988) 6227.
- [51] BOYD, R. W. ; GRUNEISEN, M. T. ; NARUM, P. ; SIMKIN, D. J. ; DUNN, B. and YANG, D. L. Saturated absorption and degenerate four-wave mixing in Nd^{+3} β Alumina. Opt. Lett. **11** (1986) 162.
- [52] STEEL, D. G. and RAND, S. Ultranarrow nonlinear optical resonances in solids. Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2285.
- [53] POWELL, R. C. ; SUCHOCKI, A. ; GILLIAND, G. D. and QUARLES, G. J. Four-wave mixing spectroscopy of Cr-doped laser crystals. J. Luminesc. **38** (1987) 250.
- [54] DURVILLE, F. M. ; POWELL, R. C. ; BOULON, G. and CHAMPAGNON, B. Four-wave mixing spectroscopy of a Cr^{+3} - doped transparent glass ceramic. Phys. Rev. B **37** (1988) 1435.
- [55] QUARLES, G. J. ; SUCHOCKI, A. ; POWELL, R. and LAI, S. Optical spectroscopy and four-wave mixing in emerald. Phys. Rev. B **38** (1988) 9996.

- [56] WEAVER, S. C. and PAYNE, S. A. Degenerate four-wave mixing of Cr^{+3} doped materials. Present at XVII International Conference on Quantum Electronics - TH113. WEAVER, S. C. and PAYNE, S. A. Submitted to J. Chem. Phys. in March 1989.
- [57] CATUNDA, T. Conjugação de fase por mistura degenerada de quatro ondas em Rubi e $\text{GdAlO}_3\text{Cr}^{+3}$. Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Física e Química de São Carlos, USP, 1984.
- [58] WALL, K. F. ; AGGARWAL, R. L. ; SCIACCA, M. D. ; ZEIGR, H. J. ; FAHEY, R. E. and STRAUSS, A. J. Optically induced nonresonant changes in the refractive index of $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$. Opt. Lett. **14** (1989) 180.
- [59] POWELL, R. C. ; PAYNE, S. A. ; CHASE, L. L. and WILKE, G. D. Index of refraction change in optically-pumped solid state laser materials. Submitted to Opt. Lett., April 1989.
- [60] KRANER, M. A. ; TOMPKIN, W. R. and BOYD, R. W. Nonlinear optical interactions in fluorescein-doped boric acid glass. Phys. Rev. A **34** (1986) 2026.
- [61] MCMICHAEL, Y. ; YEH, P. and BECKWITH, P. Nondegenerate two-wave mixing in Ruby. Opt. Lett. **13** (1988) 500.
- [62] BOOTHROYD, S. A. ; CHROSTOWSKI, J. and D'SULLIVAN, M. S. Two-wave mixing phase and absorption gratings in saturable absorbers. J. Opt. Soc. Am. B **6** (1989) 766.
- [63] id. ibid. ref. [9], cap. 2.
- [64] BOOTHROYD, S. A. and MORGAN, C. G. Temporal development of phase conjugation in Ruby by degenerate four-wave mixing. J. Phys. D. Appl. Phys. **16** (1983) L165.

- [65] DURVILLE, F. M. ; BEHRENS, E. G. and POWELL, R. C. Laser-induced refractive index gratings in Eu-doped glasses. Phys. Rev. B **34** (1986) 4213.
- [66] id. ibid. Ref. [9], cap. 10.
- [67] MARUANI, A. ; OUDAR, J. L. ; BATIFOL, E.; and CHEMLA, D. S. Active nonlinear spectroscopy of biexcitons in CuCl by resonant coherent scattering. Phys. Rev. Lett. **41** (1981) 1372.
- [68] TONISSI, S. A. JR., CASTRO, J. C. and NUNES, L. A. O. Submetido a Rev. Fis. Aplic. e Instrum.
- [69] BLOOM, D. M. ; LIAO, P. F. and ECONOMOU, P. N. Observation of amplified reflection by degenerate four-wave mixing in atomic sodium vapor. Opt. Lett. **2** (1978) 58.
- [70] POWELL, R. C. ; XI, L. ; GANG, XU; QUARLES, J. G. and WALLING, J. C. Spectroscopic properties of alexandrite crystals. Phys. Rev. B **32** (1985) 2788.
- [71] SANTAMATO, E. and SHEN, R. Field-curvature effect on the diffraction ring pattern of a laser beam dressed by spatial self-phase modulation in a nematic film. Opt. Lett. **9** (1984) 564.
- [72] KHOO, I. C. ; HOU, J. Y. ; LIU, T. H. ; YAN, P. Y. ; MICHAEL, R. R. and FINN, G. M. Transverse self-phase modulation and bistability in the transmission of a laser beam through a nonlinear thin film. J. Opt. Soc. Am. B **4** (1987) 886.
- [73] CATUNDA, T., and CURY, L. A. Laser-induced diffraction rings from GdAlO₃:Cr³⁺ crystal. In: XVI International Conference on Quantum Electronics, IQEC'88, MP22, Tokio (1988). CATUNDA, T. and CURY, L. A. Transverse self-phase modulation in Ruby and GdAlO₃:Cr³⁺ crystals. Submitted to J. Opt. Soc. Am. B (April 1989).

- [74] TERBINO, R. and SIEGMAN, A. E. Phase-conjugation reflection at arbitrary angles using TEM_{00} pump beams. Opt. Commun. **32** (1981) 1.
- [75] id. ibid. ref. [9], cap. 13.
- [76] BORN, M. ; WOLF, E. Principles of optics. Oxford, Pergamon Press, 1970.
- [77] HAFERKORN, H. Bewertung optischer systeme. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1986.