UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS

ANDERSON ROBERTO DE OLIVEIRA

Geração de segundo harmônico sintonizável por modulação de
pulsos de laser ultracurtos

São Carlos
2012

ANDERSON ROBERTO DE OLIVEIRA

Geração de segundo harmônico sintonizável por modulação de
pulsos de laser ultracurtos

Dissertação apresentada ao Programa
de Pós-Graduação em Física do
Instituto de Física de São Carlos da
Universidade de São Paulo, para
obtenção do título de Mestre em
Ciências.

Área de concentração: Física Aplicada
Orientador: Prof. Dr. Sergio Carlos
Zilio

Versão Corrigida

(versão original disponível na Unidade que aloja o Programa)

São Carlos
2012

**AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTES
TRABALHOS, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO
PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.**

Ficha catalográfica elaborada pelo serviço de Biblioteca e Informação do IFSC/USP

de Oliveira, Anderson Roberto

Geração de segundo harmônico sintonizável por modulação de pulsos de laser ultracurtos / Anderson Roberto de Oliveira; orientador Sérgio Carlos Zilio – versão corrigida -- São Carlos, 2012.

108 p.

Dissertação (Mestrado – Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada) -- Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 2012.

1. Óptica não linear. 2. Geração de segundo harmônico. 3. Formatação de pulsos ultracurtos. I. Zilio, Sérgio Carlos, orient.
II. Título

A Iahweh antes de tudo e de todos,
simplesmente por ser Deus, e aos meus pais
e irmão que acreditaram e apoiaram
incondicionalmente.

AGRADECIMENTOS

A Deus, pela graça e misericórdia.

Ao meu irmão Douglas, pelo exemplo, pela amizade, pela proteção de irmão mais velho e, bom, ele sabe.

Aos meus pais, Claudemir e Rita, pela criação, educação, amizade, apoio, pelos sacrifícios e pelo amor recíproco incondicional.

Ao Prof. Dr. Sergio Carlos Zilio pela paciência durante a orientação na iniciação científica e no mestrado, pela amizade, pelos valores transmitidos e pelo exemplo de seriedade e profissionalismo com relação à carreira acadêmica.

Ao Prof. Dr. Lino Misoguti pela amizade, pelo constante apoio e auxílio durante o desenvolvimento do trabalho e pelo exemplo de disciplina.

Ao Prof. Dr. Cleber Renato Mendonça pelo companheirismo, pelo apoio, pela amizade e pelos momentos de descontração nos corredores do grupo.

Aos professores de graduação e das disciplinas da pós graduação que contribuíram para minha formação acadêmica e de caráter.

Aos técnicos dos laboratórios de ensino.

Aos funcionários do serviço de graduação, de pós graduação e da biblioteca pelo atendimento sempre cordial, dedicado e eficiente.

Aos vários professores que estiveram presentes durante o ensino fundamental e médio, pois certamente são responsáveis por grande parte dos alicerces do meu conhecimento e dos valores. Em especial à Prof^a Sonia pelo empurrãozinho em direção à Física.

Aos amigos que ingressaram comigo na graduação, Gostosa, Cora, PM, Emerson, Pepê, Tássio, Mingau, Bottini, Deilão, Xuxa, Pirata, Leo, Bob, Jesus, Taffarel, Hudson, Luiz, André, Fininho, Elton, Bruno, Maguila, Helena, Renata, Natália, Pataca, Tião, Amanda, Victório, Uilson, Daniel, Goiano, Zé Maurício, Wesley, Thiago, Albino, Rafner, Tiago, 3D, Mário, Aron, entre outros que cedo saíram.

Aos amigos que não eram da mesma turma de ingresso mas que se tornaram verdadeiros amigos, Coxinha, Ronaldinho, Careta, Frodo, Tahzib, Frutilly, Link, B2, Gladi, Panceta, Nardão, B3, Café, Pudim, Flex, Poste, Rafa, Luiz Gabriel,

Espiãozinho, Césio, Adilshow (Sandy), Bessa, César (Jiu Jitsu), Verva, Kiwi, Calango, Camilo, entre outros.

Aos companheiros de sala e de grupo, Otuka, Vinicius, Renato, Jordan, Nat, Caio, Juliana, PH, SUS, Jonathas, Regina, Marcelo, Ruben, Oriana, Nó, Marcão, André Romero, Tchê, Daniel, Bruno, Chico, Lost.

Aos alunos da turma de ingressantes do ano de 2010 dos cursos de Física, Física Computacional e Biomol, em especial a Cris, XD e Érica (que assistiram à primeira de todas as monitorias), mas também a Karamba, Tomara, Bird, Vicente, Rosinha, Balada, Jade, K2, Rubinho, Marina, Mayara, Caju, Balalaika, Bahia, Luma, André, Alfredo, entre tantos outros, que tiveram paciência com as piadas ruins durante as monitorias de física 1 e 2.

Aos alunos da turma de ingressantes do ano de 2011 dos cursos de Física, Física Computacional e Biomol, que também compartilharam de momentos de descontração e de seriedade nas monitorias de física 2.

Aos que dividiram a mesma residência comigo no período de graduação e de mestrado, Gabriel (Tio Gueibs), Hermione, Gaguinho, Jr, Preto, Alaine, Átila, Figura, Pedreiro, Tropesco, Pink, Duas Caras.

Aos grandes amigos de infância e adolescência, Du, Pops, Flavinho, Valdemar, D2, Patrícia, João Carlos, Black, André, Jonatan, Talitha (namorada do Papagaio), Zé, Wladimir, Jorge, Salgadão, Gustavo, Andrezão, Bidê, JS, Francês, Luana, Cabelo, Tomate, Muca, Wilson, Felipe, Lucas, entre outros.

Ao Pastor Gustavo, ao Pastor Eduardo e aos membros da Igreja Presbiteriana Nova Canaã de São José do Rio Preto, pelos momentos de comunhão e de reflexão.

Aos tios, Zé, Antônia, Ivete, Nenê, Maria, Lice, Toninho, Paulo, Carlo, Cleusa, Clau, Nice (descanse em paz), Lécio (descanse em paz).

Aos primos, Bill, Helô, Tati, Fer, Carol, Luizinho, Carlos, Kacilda, Isabelly, Bruna, Vaelsinho, Kelly, Ronaldo, Daniela, Claudinha, Jociane, Jocilene, Daniel, Cleisson, entre outros.

À minha vó Aparecida.

À todas as pessoas que não estão listadas aqui mas que estiveram presentes em minha vida que, de alguma forma, contribuíram para a realização deste trabalho e para a minha formação moral e intelectual.

A Capes pelo apoio financeiro.

“O cientista não estuda a natureza porque ela é útil; ele a estuda porque se deleita nela, e ele se deleita nela porque ela é bela. Se a natureza não fosse bela, não valeria a pena ser conhecida, e se não valesse a pena ser conhecida, a vida não valeira a pena ser vivida.”

Poincaré

RESUMO

DE OLIVEIRA, A.R. *Geração de segundo harmônico sintonizável por modulação de pulsos de laser ultracurtos*. 2012. 108 p. Dissertação (Mestrado em Ciências) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2012.

Neste trabalho é feito um estudo da formatação de pulsos ultracurtos de laser de Ti:Safira para a geração de segundo harmônico em cristal de KDP. Para a formatação dos pulsos, é utilizado um aparato que inclui um modulador espacial de luz de cristal líquido (LC SLM), que altera unicamente a fase espectral dos pulsos. Este aparelho tem a vantagem de não introduzir perdas durante a propagação da luz, além de sua ação ser controlada via computador, através de um software em LabVIEW. Utilizando uma função senoidal, é feito um estudo das limitações do controle da geração do segundo harmônico provindas da pixelação do LC SLM, isto é, do fato de que os elementos moduladores possuem tamanhos finitos e produzem uma modulação discreta ao longo das componentes espectrais do pulso. É apresentada a geração de luz sintonizável em torno de 400 nm por duplicação de frequências de pulsos cuja fase espectral é modulada por uma soma de funções senoidais de frequências diferentes. A largura de banda do ultravioleta produzido é da ordem de 1 nm, em contraste com a largura de linha de cerca de 12 nm do segundo harmônico gerado na ausência de modulação do pulso fundamental. A sintonização é feita basicamente através de uma varredura na fase das funções moduladoras do pulso fundamental. Esse tipo de sintonização nessa região do espectro possui algumas aplicações, tais como a microscopia seletiva por dois fótons ou mesmo a espectroscopia de um fóton. Para comprovar a utilidade da geração de segundo harmônico sintonizável, é apresentada uma medida espectroscópica da transmissão em uma amostra de cloreto de európio, sendo que os resultados obtidos concordaram com as medidas da mesma amostra realizadas em um espectrofotômetro, com o mínimo de transmissão em cerca de 394 nm.

Palavras chave: Óptica não linear. Geração de segundo harmônico. Formatação de pulsos ultracurtos.

ABSTRACT

DE OLIVEIRA, A.R. Tunable second harmonic generation by modulated ultrashort laser pulses. 2012. 108 p. Dissertação (Mestrado em Ciências) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2012.

This work presents a study on the shaping of ultrashort pulses of a Ti:Sapphire laser for second harmonic generation in KDP crystals. To achieve the pulse shaping, a setup based on a phase-only crystal-based spatial light modulator (LC SLM) is used. This device has the advantage of low loss, and can be computer controlled, by means of a LabVIEW software. The use of a sinusoidal function, allows to study the limitations of the second harmonic generation due to the pixelation of the LC SLM, i. e., due to the fact that the modulating elements have finite sizes and produce a stepwise modulation along the spectral components of the pulse. The generation of tunable light around 400 nm by frequency doubling of laser pulses is presented for the case where the spectral phase is modulated by a sum of sinusoidal functions with different frequencies. The linewidth of the ultraviolet band produced is narrower than 1 nm, in contrast to the 12 nm linewidth of the non-modulated incident spectrum. The tuning is done primarily through a sweep in the phase of the modulating functions of the fundamental pulse. The possibility of tuning in this region of the spectrum has a few applications, such as in selective two-photon microscopy or even in one photon spectroscopy. To demonstrate the usefulness of tunable second harmonic generation, a spectroscopic measurement of the transmission in a sample of europium chloride is presented, and the results agreed with the measures of those performed in a spectrophotometer, with the minimal transmission occurring around 394 nm.

Keywords: Nonlinear optics. Second harmonic generation. Pulse shaping.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1. 1 - Figura esquemática do comportamento das partes real e imaginária do índice de refração complexo $\tilde{n}$.	34
Figura 1. 2 - (a) Onda de frequência ω propaga em um meio não linear gerando campos na frequência 2ω devido à não linearidade de segunda ordem do meio. (b) Descrição da geração de segundo harmônico por um diagrama de níveis de energia.	42
Figura 1. 3 - Desenho de um caso sem casamento de fase para os vetores de onda do SH e do fundamental	433
Figura 1. 4 - Casamento de fase para a GSH em diferentes ângulos para diferentes comprimentos de onda.	44
Figura 1. 5 - Geração de novas frequências no espectro do pulso em meio com n_2 positivo	46
Figura 1. 6 - Efeito de autofocalização para meio tipo Kerr com n_2 positivo quando um feixe com distribuição espacial de intensidades incide no mesmo.	48
Figura 2. 1 - Desenho esquemático de uma cavidade laser.	50
Figura 2. 2 - (a) Modos longitudinais de uma cavidade passiva; (b) curva de ganho não saturado (linha cheia) e curva de perda (linha tracejada), (c) curva de ganho saturado e (d) espectro de saída do laser.	51
Figura 2. 3 - Pulsos originados para quando há 10 e 40 modos longitudinais da cavidade laser de modos travados dentro da curva de ganho do meio ativo.	54
Figura 2. 4 - Efeito Kerr em cristal de Ti:safira.	55
Figura 2. 5 - Varredura de frequências (a) positiva e (b) negativa.	56
Figura 2. 6 - Cavidade laser dobrada.	57

Figura 2. 7 - Níveis de energia e espectro de absorção e emissão para o cristal de Ti:Safira.	58
Figura 2. 8 - Espectro típico do pulso ultracurto gerado pelo laser de Ti:Safira de nosso laboratório.	59
Figura 2. 9 - Sistema de compressão intracavidade com quatro prismas.	60
Figura 3. 1 - Filtro linear formatando pulso. (a) No domínio do tempo. (b) No domínio da frequência..	62
Figura 3. 2 - Desenho esquemático do formatador de pulsos ultracurtos.	64
Figura 3. 3 - Desenho esquemático de um array de cristal líquido.	69
Figura 3. 4 – (a) Desenho esquemático da montagem experimental usada em nosso trabalho e (b) fotografia do formatador de pulsos representado pelo desenho esquemático (a).	71
Figura 3. 5 - Espectro típico após o conjunto formatador do pulso.....	72
Figura 3. 6 - função $\sin(x)$ (a) construída continuamente, (b) construída com 40 pixels, (c) construída com 20 pixels e (d) construída com 10 pixels.	73
Figura 4. 1 - Simulação de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.5), com $2\phi=2,404$, $\Delta t \sim 140$ fs e $\psi=0$. Em linha preta, o envelope gaussiano. Em linha amarela, o produto da função de Bessel de ordem zero pela gaussiana..	7878
Figura 4. 2 - (a) Ilustração da montagem para geração de segundo harmônico em cristal de KDP com pulsos ultracurtos formatados. (b) Fotografia da montagem..	79
Figura 4. 3 - (a) Pulso fundamental e fase espectral aplicada e (b) segundo harmônico gerado sem modulação de fase (linha preta) e com modulação de fase (linha vermelha).....	79
Figura 4. 4 - (a) Gráfico de intensidades experimental do segundo harmônico em função do número de períodos do cosseno aplicado pelo SLM e (b) SH para	

modulação com 60 períodos no SLM (linha vermelha) comparado ao SH gerado sem modulação do pulso fundamental (linha preta).	80
Figura 4. 5 - Simulação de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.10), com $2\phi=2,404$, $\Delta t\sim 140$ fs e $\psi=0$. Em linha preta, o envelope gaussiano. Em linha vermelha, o produto da função de Bessel de ordem zero pela gaussiana.....	83
Figura 4. 6 - Medida de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.10), com $2\phi=2,404$, $\Delta t\sim 140$ fs e $\psi=0$. (a) Pulso fundamental (vermelho) e fase espectral teoricamente escolhida (linha azul). (b) SH não modulado (linha preta) e modulado com função seno (linha vermelha).	84
Figura 4. 7 - (a)Gráfico de intensidades do SH em função do número de períodos do seno aplicado pelo SLM e (b) SH gerado para modulação com 60 períodos no SLM (linha vermelha) comparado ao SH gerado sem modulação do pulso fundamental (linha preta).	85
Figura 4. 8 - Contraste dos picos gerados no segundo harmônico modulado.	86
Figura 4. 9 - (a) Gráfico de três funções de Bessel, com $n_j=2$ (azul pontilhada), $n_j=4$ (vermelha tracejada) e $n_j=8$ (preta contínua). $\psi=0,31$ rad e $\Delta t=18$ fs. (b) Simulação do SH não modulado (linha preta) e o modulado com $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha vermelha).	88
Figura 4. 10 - (a) Gráfico de três funções de Bessel para $n_j=3$ (preta contínua), $n_j=3,75$ (vermelha tracejada) e $n_j=4,5$ (azul pontilhada). $\psi=0$ rad e $\Delta t=18$ fs. (b) Simulação do SH não modulado (linha preta) e o modulado com $n_j=3,3,75,4,5,5,25$ e 6..	88
Figura 4. 11 - Espectro do segundo harmônico não modulado (linha preta) e modulado por um produto constituído de funções de Bessel com $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha vermelha) para diferentes fases ψ . (a) $\psi = -0,50$ rad; (b) $\psi = -0,25$ rad; (c) $\psi = -0,13$ rad; (d) $\psi = 0,13$ rad; (e) $\psi = 0,38$ rad; (f) $\psi = -0,63$ rad. ...	89
Figura 4. 12 - Comparação entre a fase espectral adicionada ao pulso fundamental utilizando $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha preta) e $n_j=3,3,75,4,5,5,25$ e 6 (linha vermelha). Δt é ajustado para 18 fs.....	90

Figura 4. 13 - Sintonização experimental da GSH. SH não modulado (linha preta) e modulado utilizando-se $n_j=3,3,75,4,5,5,25$ e 6 (linha vermelha). (a) $\psi = -0,69$ rad; (b) $\psi = -0,57$ rad; (c) $\psi = -0,44$ rad; (d) $\psi = -0,31$ rad; (e) $\psi = -0,19$ rad; (f) $\psi = -0,06$ rad; (g) $\psi = 0,06$ rad; (h) $\psi = 0,19$ rad; (i) $\psi = 0,31$ rad; (j) $\psi = 0,44$ rad; (k) $\psi = 0,57$ rad; (l) $\psi = 0,69$ rad.. 92

Figura 4. 14 - Medidas de transmissão do cloreto de európio realizadas (a) através do nosso método e (b) utilizando espectrofotômetro do nosso grupo. 93

SUMÁRIO

Introdução	21
Capítulo 1 Introdução à óptica não linear	25
1.1 Interação da luz com a matéria em um meio óptico linear: tratamento clássico.....	25
1.2 Meio óptico linear: propagação da luz	27
1.3 O modelo do oscilador harmônico para as interações da luz com a matéria....	31
1.4 Susceptibilidade não linear	34
1.5 Processos ópticos não lineares : o modelo do oscilador não harmônico.....	39
1.6 Breve discussão sobre processos não lineares	41
1.6.1 Geração de segundo harmônico	42
1.6.2 Automodulação de fase	44
1.6.3 Autofocalização	47
Capítulo 2 Pulsos ultracurtos.....	49
2.1 Introdução.....	49
2.2 Geração de pulsos ultracurtos.....	49
2.2.1 Cavity laser: modos longitudinais	50
2.2.2 Travamento de modos por efeito lente Kerr	52
2.3 Dispersão em pulsos ultracurtos	55
2.4 O laser de Ti:Safira	56
2.5 Compensação da dispersão intracavidade.	59
Capítulo 3 Formatação de pulsos ultracurtos	61
3.1 Introdução.....	61
3.2 Teoria básica do filtro linear para modulação de pulsos.....	61
3.3 Aparato para formatação de pulsos	63
3.4 Técnicas de alinhamento para o formatador de pulsos	66
3.5 Formatação de pulsos utilizando LC SLM	68
Capítulo 4 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos	75
4.1 Introdução.....	75
4.2 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno	75
4.2.1 Descrição analítica da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno	76

4.2.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno.....	78
4.3 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno	81
4.3.1 Descrição analítica da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno.....	82
4.3.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno.....	84
4.4 Geração de segundo harmônico sintonizável.....	86
4.4.1 Descrição teórica da geração de segundo harmônico sintonizável	86
4.4.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico sintonizável	89
4.5 Medida de transmissão de uma amostra de EuCl_3	92
Conclusões e perspectivas	95
Referências.....	97
Apêndice A - Demonstração da relação entre o espectro do pulso fundamental e do segundo harmônico.	101
A.1 Propagação de pulsos em meios lineares	101
A.2 Geração de segundo harmônico tipo I com pulsos ultracurtos e baixa eficiência de conversão	105

Introdução

A área da física que estuda a interação da matéria com os campos eletromagnéticos de altas intensidades é conhecida como óptica não linear. Nesse sentido, altas intensidades são entendidas como amplitudes dos campos elétricos comparáveis aos campos atômicos (1-2). Isso provoca o aparecimento de uma polarização não linear do meio. O evento histórico determinante para o avanço na pesquisa experimental da óptica não linear foi o desenvolvimento do laser em 1960, por T. H. Maiman (3). Esta fonte de radiação é capaz de produzir luz de alta intensidade pelo efeito da emissão estimulada. Por meio da interação da luz laser com determinados materiais, constatou-se alterações em algumas propriedades ópticas como, por exemplo, o índice de refração e o coeficiente de absorção. O primeiro dos efeitos observados, devido à aplicação do laser para o estudo da interação da matéria com luz de altas intensidades, foi a geração de segundo harmônico (GSH), feita por Franken *et.al* (4) em 1961. No experimento foi usada luz vermelha (694,2 nm) de um laser de rubi direcionada a um cristal de quartzo (SiO_2) com seus eixos cristalográficos devidamente orientados. Com isto observou-se a existência de uma outra frequência transmitida, além da incidente, com comprimento de onda de 347,1 nm. Em seguida, vários outros efeitos não usuais foram observados e estudados, tais como geração de harmônicos (5), geração de soma de frequências (6), a mistura de quatro ondas (7), espalhamento Raman estimulado (8), autofocalização (9), transparência auto-induzida (10-11), retificação óptica (12) e amplificação paramétrica (13). Mais recentemente, lasers sofisticados foram produzidos no regime de operação pulsado (14-15). Com a utilização de cristais de Ti:Safira (16-17), foi possível a construção de lasers que geram pulsos com duração da ordem de dezenas de femtossegundos. Tais pulsos possuem larga banda espectral e alta intensidade de pico e, por isso, têm grande potencial para aplicações em óptica não linear. Aliados às técnicas de formatação de pulsos (18-24), os efeitos da interação da luz com a matéria podem ser controlados. Por meio de uma formatação específica dos campos elétricos pode-se produzir interferências construtivas ou destrutivas entre as componentes espectrais do pulso durante a interação. Este

controle coerente da interação da luz com a matéria cria possibilidades para muitas aplicações, incluindo a microscopia seletiva por dois fótons (24) e o controle da absorção em sistemas ressonantes (25-26). A criação de uma forma específica de pulso pode ser alcançada por meio da manipulação da fase e/ou da amplitude das componentes espectrais de um pulso laser de femtossegundos utilizando-se um formatador de pulsos de dispersão nula. O formatador de pulsos mais usado atualmente utiliza um modulador espacial de luz de cristal líquido (21,27). Entretanto existem outras técnicas para a formatação programável de pulsos, tais como: modulação acusto-óptica (AOM) (18-20), espelho deformável agindo no plano de Fourier (28), modulação utilizando padrões holográficos (29-30).

O efeito da modulação espectral na GSH tem sido estudado por vários grupos (31-34). Em particular, Hacker *et al.* (31) investigaram a GSH por pulsos com fase espectral modulada em cristais de BBO com o objetivo de produzir pulsos formatados na região espectral do ultravioleta (UV). Tais pulsos servem para excitação eletrônica direta de sistemas quânticos atômicos ou moleculares. Sua motivação consistia no fato das excitações de um fóton em sistemas quânticos possuírem regra de seleção diferente daquela da absorção de dois fótons (25), a saber, transferência de momento angular distinta. Em seu trabalho, pulsos fundamentais cuja fase espectral foi modulada com uma função senoidal foram usados e, neste caso, a modulação da amplitude do campo elétrico do segundo harmônico (SH) pode ser aproximada por uma função de Bessel de ordem zero sempre que o período de modulação for menor que a largura de linha do pulso. O mesmo tipo de modulação foi empregado para demonstrar a excitação seletiva por dois fótons de amostras fluorescentes para microscopia (24). Mais recentemente, um método baseado em uma modulação binária da fase espectral demonstrou estreitar espectralmente a excitação multifotônica, conforme requerido em microscopia por dois fótons (32). O esquema proposto melhorou o contraste por um fator de 6 vezes quando comparado com uma fase senoidal sozinha, e o uso de um algoritmo evolutivo aprimorou a solução por um outro fator de 2,5.

Neste trabalho é apresentado um método que torna possível a geração de luz sintonizável, de linha estreita e em torno de 400 nm, por meio da duplicação de frequência de pulsos ultracurtos cuja fase espectral é modulada por uma

soma de funções senoidais com frequências diferentes. A ideia por trás desse esquema é que uma modulação aditiva na fase resulta em um produto de exponenciais, sendo que cada uma dá origem a uma função de Bessel de ordem zero no segundo harmônico. Com períodos e fases especificamente escolhidos, o produto dessas funções aproxima-se de zero exceto em uma banda estreita. Esta banda pode ser continuamente sintonizada dentro de todo o espectro do SH, o que é uma característica importante para a microscopia seletiva por dois fótons e na espectroscopia de um fóton na região do UV. Uma vantagem do método apresentado aqui é que ele se baseia em uma função analítica e não requer a utilização de nenhum algoritmo evolutivo de aprendizagem para produzir bons resultados.

Esta dissertação está organizada da seguinte maneira. O Capítulo 1 aborda uma introdução à óptica não linear, sendo descritos os conceitos básicos sobre a polarização não linear de um meio devido à presença de campos de alta intensidade, além da apresentação da susceptibilidade não linear. Também é feita uma breve discussão sobre a autofocalização e a automodulação de fase, fenômenos estes que ocorrem no processo de geração de pulsos ultracurtos, e sobre a geração de segundo harmônico num nível mais básico. No Capítulo 2 é apresentada a cavidade laser utilizada, características tais como as frequências de ressonância de uma cavidade laser, algumas propriedades do meio ativo de Ti:Safira, uma discussão sobre os princípios que embasam a geração de pulsos ultracurtos por travamento de modos por meio do efeito lente Kerr (*Kerr Lens Mode-Locking*), que ocorre no meio ativo dentro da cavidade, além do fenômeno da dispersão e sua compensação durante a propagação do pulso pela cavidade (incluindo a propagação pelo meio ativo).

No Capítulo 3 é feita uma descrição dos conceitos por trás da formação de pulsos ultracurtos utilizando um formatador de dispersão nula, do aparato experimental da formação utilizando uma máscara de fase que consiste de um modulador espacial de luz de cristal líquido, as características deste aparelho, o método de alinhamento da montagem e as limitações da formação provenientes do fato de que o modulador é constituído de pixels. No Capítulo 4, resultados experimentais da GSH com pulsos ultracurtos formatados são apresentados e discutidos. Em seguida, a duplicação de frequência sintonizável tem sua teoria e medidas laboratoriais descritas. Por fim, a validade e a utilidade

da técnica de sintonização da GSH são testadas por meio de uma medida de transmissão de uma solução de cloreto de európio (EuCl_3). No Apêndice A, é desenvolvida a teoria da propagação de pulsos em meios lineares, apresentada a aproximação do envelope variando lentamente no espaço para obter uma equação de propagação de pulsos ultracurtos em meios não lineares e a consequente GSH com pulsos cuja fase espectral é modulada por funções específicas.

Capítulo 1 Introdução à óptica não linear

A óptica não linear estuda as alterações nas propriedades ópticas dos materiais devido à presença da luz. Normalmente, essas alterações só são possíveis quando a intensidade da luz é alta ou a frequência da mesma é próxima a alguma frequência de ressonância do material. Tipicamente, apenas luz laser é capaz de provocar tais mudanças nas propriedades ópticas. As alterações são chamadas propriedades não lineares devido ao fato de dependerem de uma maneira não linear com o campo presente. Por exemplo, a geração de segundo harmônico (GSH) depende quadraticamente do campo elétrico da luz.

1.1 Interação da luz com a matéria em um meio óptico linear: tratamento clássico

No modelo clássico para a interação da luz com a matéria, os meios dielétricos são considerados como possuindo seus elétrons ligados fortemente aos núcleos. Dá-se o nome dessa aproximação de aproximação de dipolo, uma vez que a distribuição induzida das cargas será aproximadamente a de um dipolo induzido. A ação do campo elétrico será a de deslocar as cargas de suas posições de equilíbrio de uma quantidade dada por um vetor $\vec{r}$, e, nesse caso, haverá um momento de dipolo induzido, $\vec{\mu}_{ind}$, que é dado por (35-36):

$$\vec{\mu}_{ind} = -e \cdot \vec{r} \quad (1.1)$$

onde e é o módulo da carga elétrica do elétron.

Na existência de N átomos por unidade de volume, a polarização macroscópica do meio será dada pela soma dos dipolos induzidos por molécula (35-36):

$$\vec{P} = -Ne \cdot \vec{r} \quad (1.2)$$

Para baixas intensidades do campo elétrico, isto é, para intensidades do campo muito menores que a intensidade do campo interatômico, a polarização pode ser expressa como uma função linear, em termos da susceptibilidade elétrica linear, $\chi^{(1)}$, como (35-36):

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(1)} : \vec{E} \quad (1.3)$$

sendo que a susceptibilidade é associada à permissividade elétrica, $\vec{\varepsilon}$, por (35-36):

$$\vec{\varepsilon} = \varepsilon_0 (1 + \vec{\chi}^{(1)}) \quad (1.4)$$

onde ε_0 é a permissividade do vácuo.

Em um meio dielétrico, $1 + \vec{\varepsilon}/\varepsilon_0$ dá o fator pelo qual a amplitude do campo elétrico diminui. Uma vez que a susceptibilidade linear $\vec{\chi}^{(1)}$ é um tensor de segunda ordem, ele relaciona cada componente do vetor polarização com as três componentes do campo elétrico.

A luz é uma onda eletromagnética cujas propriedades são descritas por um campo que oscila. As componentes do campo elétrico têm sua natureza oscilatória determinada, no domínio temporal, por um campo elétrico, $\vec{E}(\vec{r}, t)$, que propaga e varia no espaço e no tempo. Portanto, a polarização do meio também pode ser descrita por um vetor que tem dependência temporal e espacial, $\vec{P}(\vec{r}, t)$, uma vez que representa a resposta do material, dada pela eq. (1.3). Uma abordagem alternativa para a natureza do campo elétrico oscilante da luz descreve o mesmo no domínio da frequência, em que a frequência ω e o vetor de onda $\vec{k}$ descrevem o campo elétrico $\vec{E}(\omega, \vec{k})$. Em princípio, as representações são equivalentes, sendo que a situação estudada determina qual a maneira conveniente a ser utilizada.

A descrição da resposta óptica linear em frequências de um meio se dá por meio da permissividade elétrica $\vec{\varepsilon}(\omega)$, que se relaciona com a

susceptibilidade óptica linear $\vec{\chi}^{(1)}(\omega)$ por uma relação semelhante à eq. (1.4). Essas grandezas são utilizadas para descrever os fenômenos de absorção e refração. No caso de um meio isotrópico, o índice de refração complexo do meio, $\tilde{n}$, que representa as características da resposta óptica linear do meio, pode ser escrito por (35-36):

$$\tilde{n}^2 = \tilde{\epsilon}(\omega)/\epsilon_0 = 1 + \tilde{\chi}^{(1)}(\omega) \quad (1.5)$$

sendo que, aqui, substituímos os tensores $\vec{\epsilon}(\omega)$ e $\vec{\chi}^{(1)}(\omega)$ por funções escalares complexas, uma vez que estamos considerando um meio isotrópico e linear.

Na eq. (1.5), a permissividade e a susceptibilidade elétrica são grandezas complexas. Isso se deve às ressonâncias associadas aos movimentos eletrônicos e nucleares nos átomos ou moléculas. O índice de refração complexo, nas proximidades de uma ressonância que corresponde a uma absorção eletrônica, pode ser escrito como (35-36):

$$\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega) \quad (1.6)$$

onde a parte real, $n(\omega)$, é o chamado índice de refração do meio e descreve o fenômeno de refração do meio; a parte imaginária, $\kappa(\omega)$, é o coeficiente de extinção e está relacionado com a absorção da luz no meio. No regime da óptica linear, essas grandezas não dependem das intensidades dos campos incidentes.

1.2 Meio óptico linear: propagação da luz

Vimos na seção precedente como um meio material responde à aplicação de um campo elétrico oscilante na aproximação de dipolo. Todavia, para compreensão completa da interação da luz com a matéria, precisamos descrever as características da propagação da luz em tal meio. Como ponto de partida

devemos utilizar as equações de Maxwell. Por meio dessas equações podemos analisar qualquer fenômeno óptico:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1.7)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.8)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho_f \quad (1.9)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.10)$$

onde ρ_f é a densidade de cargas livres, $\vec{J}$ é a densidade de corrente devida aos portadores livres, $\vec{E}$ e $\vec{H}$ são os campos elétrico e magnético, respectivamente, $\vec{B}$ é o vetor indução magnética e $\vec{D}$ o vetor deslocamento elétrico. A propagação dos campos elétrico e magnético no meio tem como resposta os campos $\vec{B}$ e $\vec{D}$, que são dados por meio das relações constitutivas por:

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (1.11)$$

$$\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) \quad (1.12)$$

onde μ_0 é a permeabilidade magnética do vácuo, $\vec{M}$ é o vetor magnetização do meio. Para o caso de um meio dielétrico (sem cargas livres) e não magnético, podemos substituir $\rho_f = 0$, $\vec{M} = 0$ e $\vec{J} = 0$.

Tomando o rotacional na eq. (1.7) e utilizando as eqs. (1.8), (1.9), (1.10), encontramos a equação de ondas que descreve a propagação da luz em um meio dielétrico não magnético:

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.13)$$

A grandeza $c^2 = 1/\mu_0\epsilon_0$ dá a velocidade da luz no vácuo. Se o meio é dielétrico isotrópico, podemos utilizar as eqs. (1.3), (1.4) e reescrever a eq. (1.13) da seguinte forma:

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{\epsilon/\epsilon_0}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.14)$$

Vemos que as variações espaciais e temporais do campo elétrico da luz pela resposta do material são relacionadas por essa equação. Essa resposta é determinada pela grandeza ϵ . Os conceitos sobre a utilidade da equação de onda no entendimento das propriedades da propagação da luz através de um meio óptico podem ser ilustrados usando um exemplo simples. Consideremos que a luz é uma onda plana cuja propagação se dá na direção do eixo z . Nesse exemplo, podemos escrever a eq. (1.14) de forma simplificada:

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} - \frac{\epsilon/\epsilon_0}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.15)$$

Uma onda plana de amplitude E_0 propagante na direção z é solução dessa equação. Portanto, podemos escrever o campo $\vec{E}(z, t)$ conforme segue:

$$\vec{E}(z, t) = \frac{1}{2} (\vec{E}_0 e^{-i(kz - \omega t)} + c.c.) \quad (1.16)$$

onde *c.c.* significa complexo conjugado. Essa equação pode ser escrita, de maneira equivalente, como:

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_0 \cos(kz - \omega t) \quad (1.17)$$

sendo que

$$k^2 = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \frac{\omega^2}{c^2} \quad (1.18)$$

com E_0 definindo a amplitude do campo. Chama-se constante de propagação a constante k e, em relação a um ponto de referência (por exemplo, $z = 0$), ela determina a fase da onda devido à propagação. Essa constante pode ser reescrita em termos do comprimento de onda λ_0 no vácuo:

$$k = \frac{2\pi}{\lambda_0} n \quad (1.19)$$

Em uma onda que propaga em um meio, a velocidade de fase v pode ser escrita como ω/k . Utilizando a eq. (1.5) na eq. (1.18), escrevemos a constante k como

$$k = n \frac{\omega}{c} \quad (1.20)$$

e isso possibilita obter a velocidade de fase de uma onda pela seguinte relação:

$$v = \frac{c}{n} \quad (1.21)$$

Com exceção de casos peculiares, vemos que a velocidade de propagação da onda em um meio é menor do que no vácuo. Vemos também que a constante k e a velocidade de propagação v são dependentes da frequência (uma vez que o índice de refração n é dependente da frequência, como já afirmamos e discutiremos na seção seguinte), mas independentes da amplitude e da intensidade da luz. É importante ressaltar que isso é válido na aproximação em que a resposta do meio é linear com o campo elétrico.

1.3 O modelo do oscilador harmônico para as interações da luz com a matéria

Para estudar a interação da luz com a matéria, o modelo comumente utilizado trata o átomo como um sistema quântico, com níveis discretos de energia, enquanto o campo elétrico da luz ainda é tratado como uma variável clássica. Esse modelo é conhecido como modelo semi clássico. Para efeitos de simplicidade, utilizaremos o modelo clássico de Lorentz (35-36), ou do oscilador harmônico, pois esta é uma maneira bastante didática para se estudar características ópticas de um meio. Nesse modelo, o elétron possui uma massa m e está ligado harmonicamente ao núcleo de massa M por uma mola de constante elástica K , com frequência natural de oscilação ω_0 . Consideraremos o núcleo “parado”. O elétron é submetido ao campo elétrico da luz sofrendo, portanto, uma força. Para efeito de simplicidade, consideramos as interações isotrópicas, de forma que não usamos a notação vetorial. A força F_E que o campo elétrico E da luz exerce sobre o elétron de carga $-e$ é dada por:

$$F_E = -eE \quad (1.22)$$

A força restauradora F_R exercida pela mola sobre o elétron pode ser escrita como:

$$F_R = -m\omega_0^2 x \quad (1.23)$$

sendo que x é o deslocamento do elétron de sua posição de equilíbrio. Suponhamos ainda que haja uma força viscosa F_{AMORT} que amortea o movimento, sendo dada por:

$$F_{AMORT} = -2m\Gamma dx/dt \quad (1.24)$$

com Γ sendo a constante de amortecimento, que representa o efeito de dissipação de energia devido à presença de uma carga acelerada. Podemos

escrever a equação de movimento do elétron por meio da segunda lei de Newton:

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -2m\Gamma \frac{dx}{dt} - m\omega_0^2 x - eE \quad (1.25)$$

Considerando o campo elétrico como uma onda plana, $E = E_0 e^{i\omega t}$, a solução estacionária para o deslocamento x do elétron em relação à posição de equilíbrio é harmônica na mesma frequência do campo elétrico:

$$x = - \frac{eE_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)} e^{i\omega t} \quad (1.26)$$

Vemos que a amplitude do deslocamento cresce conforme a frequência ω do campo torna-se mais próxima da frequência natural do oscilador. Uma vez que a polarização do meio é dada pela eq. (1.2), reconhecendo r na equação citada como o deslocamento x , a expressão para a polarização fica:

$$P = + \frac{N e^2 / m}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)} E_0 e^{i\omega t} \quad (1.27)$$

Esta expressão mostra que a dependência da polarização com o campo elétrico aplicado é uma dependência linear. É a partir dessa equação que determinaremos as grandezas ópticas lineares dos meios.

Devido à propagação e interação da luz no meio, os elétrons, na aproximação de oscilador harmônico, são deslocados do núcleo gerando dipolos oscilantes. Essa polarização atua como fonte de radiação, como vemos pela eq. (1.13). As ondas geradas têm frequência igual à da onda incidente, embora sejam defasadas por um fator determinado pela constante de amortecimento, pela frequência da onda incidente e pela frequência natural de oscilação.

Comparando a eq. (1.3) com a eq. (1.27), podemos encontrar uma expressão para a susceptibilidade linear $\chi^{(1)}$:

$$\chi^{(1)} = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)} \quad (1.28)$$

Substituindo na eq. (1.5), nos fornece uma expressão para o índice de refração do material dada por:

$$\tilde{n}^2 = \frac{\tilde{\varepsilon}(\omega)}{\varepsilon_0} = 1 + \tilde{\chi}^{(1)} = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)} \quad (1.29)$$

Se N possui valor reduzido, o termo da direita na eq. (1.29) possui módulo muito menor que a unidade. Nesta mesma relação, podemos separar as partes real e imaginária de $\tilde{n}$:

$$\text{Re}[\tilde{n}] = 1 - \frac{Ne^2}{2m\varepsilon_0} \frac{\omega^2 - \omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\Gamma\omega)^2} \quad (1.30)$$

$$\text{Im}[\tilde{n}] = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \frac{\Gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\Gamma\omega)^2} \quad (1.31)$$

A fig. 1.1 esquematiza o comportamento dessas grandezas em função da frequência ω da onda incidente na região próxima à frequência de ressonância ω_0 . Vemos que a parte imaginária, que caracteriza a absorção no meio, possui um máximo pronunciado na frequência natural de oscilação, decrescendo conforme ω se afasta dessa frequência. Vemos ainda que a parte real, ligada ao índice de refração do meio, é superior à unidade para frequências menores que ω_0 e cresce conforme ω fica próximo da ressonância. Essa é a chamada dispersão normal. Os materiais transparentes geralmente apresentam frequência de ressonância no ultravioleta, de forma que, no espectro visível, as cores cujas frequências são maiores (azul, violeta, etc.) experimentam um índice de refração maior em relação às cores de frequência mais baixa (vermelho). Isso explica o fato de a luz vermelha ter velocidade maior que a azul em meios transparentes, uma vez que essa velocidade é inversamente proporcional ao índice de refração,

conforme a eq. (1.21). Na região da ressonância, o índice de refração diminui conforme a frequência aumenta. Essa é a chamada dispersão anômala.

Figura 1. 1 - Figura esquemática do comportamento das partes real e imaginária do índice de refração complexo $\tilde{n}$.

Vemos que esse modelo proporciona resultados simples que facilitam o estudo e entendimento de propriedades ópticas lineares importantes. A compreensão dessas propriedades é de grande importância no estudo e observação das propriedades ópticas não lineares.

1.4 Susceptibilidade não linear

Para campos elétricos cuja intensidade é baixa, a polarização do meio, $P^{(1)}(t)$ pode ser escrita como uma função linear do campo, dado pela eq. (1.3). Aqui e no que se segue, consideramos as grandezas como escalares para efeito de simplicidade. No regime da óptica não-linear (campos de alta intensidade, como os de um laser), a resposta do material dielétrico não é mais apropriadamente descrita por uma polarização linear com o campo. Essa

resposta, determinada pela polarização P , torna-se não linear com o campo E . Para intensidades altas, mas ainda pequenas comparadas com o campo atômico, a polarização pode ser escrita como uma série de potências do campo elétrico (1,37-38):

$$P(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} EE + \chi^{(3)} EEE + \dots) = P^{(1)} + P^{NL} \quad (1.32)$$

onde $\chi^{(2)}$ e $\chi^{(3)}$ são conhecidos como susceptibilidades não lineares de segunda e terceira ordens, respectivamente e são tensores de terceiro e quarto posto, respectivamente. $P^{(1)}(\vec{r}, t)$ é o termo de polarização devido à contribuição linear do campo elétrico e $P^{NL}(\vec{r}, t)$ é a polarização chamada de não-linear devido às contribuições de ordens superiores do campo elétrico, dada por:

$$P^{NL}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 (\chi^{(2)} EE + \chi^{(3)} EEE + \dots) = P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \quad (1.33)$$

onde $P^{(2)}$ e $P^{(3)}$ são as polarizações não lineares de segunda e terceira ordem, respectivamente, dados por:

$$P^{(2)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} EE \quad (1.34)$$

$$P^{(3)} = \varepsilon_0 \chi^{(3)} EEE \quad (1.35)$$

As susceptibilidades não lineares, $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, ..., $\chi^{(n)}$, são as grandezas que indicam o quão não linear é a resposta do meio ao campo externo. O termo com $\chi^{(2)}$ é responsável por efeitos tais como a mistura de três ondas (soma e subtração de frequências, geração de segundo harmônico e retificação óptica), enquanto que o termo com $\chi^{(3)}$ é responsável por efeitos como geração de terceiro harmônico (GTH), índice de refração dependente da intensidade, auto-modulação de fase, auto-focalização, entre outros. Em meios com simetria de inversão (gases, líquidos, sólidos amorfos, entre outros), $\chi^{(2)}$ é identicamente nulo (1). Os termos cuja ordem com o campo são superiores a três não são

observados com frequência na maioria dos materiais e, por isso, não levaremos em conta nas discussões.

As expressões das eqs. (1.3) e (1.32) supõem que o meio responda de maneira instantânea à aplicação do campo, ou seja, a polarização em um tempo t depende somente da amplitude do campo elétrico aplicado naquele instante. Ademais, as relações de Kramers-Kronig implicam que, uma vez que a resposta com o campo é instantânea, o meio não pode apresentar perda ou dispersão (37). Em consequência disso, as susceptibilidades não lineares discutidas aqui não dependerão das frequências dos campos aplicados, o que não ocorre em geral. É possível reescrever a eq. (1.32) de forma a definir uma susceptibilidade efetiva, χ_{eff} , da seguinte forma:

$$P = \varepsilon_0 \chi_{eff} E \quad (1.36)$$

que é uma equação análoga à eq. (1.3). Vemos da eq. (1.32) que χ_{eff} não é independente do campo elétrico E . Isso influencia as interações que ocorrerão entre a luz e o meio. Isso é visto substituindo $\chi^{(1)}$ por χ_{eff} nas eqs. (1.5), (1.20) e (1.21): o índice de refração $\tilde{n}$, a constante de propagação k e a velocidade de propagação v ficam dependentes do valor do campo elétrico.

Vamos exemplificar a maneira como ocorre o comportamento não linear da polarização substituindo uma onda plana da forma da eq. (1.17) na expansão da polarização em série de potências, eq. (1.32):

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t - kz) + \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \cos^2(\omega t - kz) + \varepsilon_0 \chi^{(3)} \cos^3(\omega t - kz) + \dots \quad (1.37)$$

É possível reescrever essa equação utilizando relações trigonométricas para substituir os termos $\cos^2(\theta)$ e $\cos^3(\theta)$:

$$\begin{aligned} P = & \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t - kz) + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 [1 + \cos(2\omega t - 2kz)] + \\ & + \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \left[\frac{3}{4} \cos(\omega t - kz) + \frac{1}{4} \cos(3\omega t - 3kz) \right] + \dots \end{aligned} \quad (1.38)$$

Uma vez que a eq. (1.13) mostra que a polarização atua como fonte de novas ondas, a eq. (1.38) mostra que a polarização não linear gerará também ondas que não possuem a mesma frequência da onda incidente. O termo com $\chi^{(1)}$ tem como resposta do meio uma onda na frequência ω devido à polarização linear. O termo com $\chi^{(2)}$, que caracteriza a polarização não linear de segunda ordem, possui um fator constante conhecido como retificação óptica e um fator que oscila com 2ω que corresponde ao fenômeno da geração de segundo harmônico. O termo que multiplica $\chi^{(3)}$ possui dois fatores oscilantes, com frequências ω e 3ω . O último é responsável pelo fenômeno da geração de terceiro harmônico. Já o termo que oscila na mesma frequência da onda incidente devido a essa polarização de terceira ordem gera uma contribuição não linear ao índice de refração do material experimentada pela onda na frequência ω (1). Isso pode ser observado por meio dos termos de polarização que oscilam com frequência ω na eq. (1.38).

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right] E_0 \cos(\omega t - kz) \quad (1.39)$$

Ao escrevermos a polarização linear na frequência ω da forma dada pela eq. (1.36), podemos identificar a susceptibilidade efetiva como sendo dada pelo termo entre colchetes na eq. (1.39).

$$\chi_{eff} = \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \quad (1.40)$$

O índice de refração passa a obedecer a uma relação análoga à eq. (1.5):

$$n = \sqrt{1 + \chi_{eff}} \quad (1.41)$$

Sabendo que $n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$ representa o índice de refração usual do meio, observado para intensidades pequenas do campo, e que a amplitude do

campo elétrico E_0 está relacionada com a intensidade I do campo por meio de $I = \frac{1}{2} n_0 \varepsilon_0 c E_0^2$, encontramos:

$$n = n_0 \sqrt{1 + \frac{3}{2} \frac{\chi^{(3)}}{n_0^3 \varepsilon_0 c} I} \quad (1.42)$$

Uma vez que $\chi^{(3)}$ geralmente é muito menor que $\chi^{(1)}$, contido em n_0^3 , podemos utilizar a seguinte aproximação:

$$\sqrt{1+x} \approx 1 + \frac{1}{2} x \quad (1.43)$$

Aplicando essa aproximação na eq. (1.42), é possível observar que o índice de refração passa, então, a depender da intensidade da onda incidente. Isso pode ser representado da seguinte forma:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.44)$$

onde n_2 é o índice de refração não linear dado por (1):

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{n_0^2 \varepsilon_0 c} \quad (1.45)$$

Este é o conhecido efeito Kerr óptico. Como consequência da dependência do índice de refração com a intensidade ocorre um fenômeno conhecido como automodulação de fase. Isto porque o índice de refração entra na fase da onda por meio do fator de propagação k , como vemos pelas eqs. (1.19) e (1.20). Esse fenômeno pode originar um alargamento espectral do pulso em um meio com não linearidade de terceira ordem. Além disso, o efeito Kerr óptico gera também um efeito conhecido como auto focalização no qual um feixe cuja intensidade não seja homogênea ao longo de seu perfil transversal irá experimentar um índice de refração diferente em regiões diferentes do material,

induzindo uma lente positiva (no caso em que n_2 seja maior que zero) (1). Esses dois fenômenos serão discutidos mais adiante ainda nesse capítulo.

Uma vez que a polarização agora contém termos não lineares com o campo, a eq. (1.13) pode ser reescrita de forma a conter os termos não lineares da polarização da seguinte forma:

$$\nabla^2 E - \frac{\epsilon/\epsilon_0}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial t^2} \quad (1.46)$$

onde P^{NL} é a polarização não linear definida na eq. (1.33), sendo que a polarização linear já está incluída no termo contendo ϵ . É importante ressaltar que os termos não lineares de segunda e terceira ordem dependem das características de simetria exibidas pelo meio. Como já afirmamos anteriormente, termos de segunda ordem só ocorrem em meios não centrossimétricos, enquanto que as contribuições de terceira ordem podem ocorrer em meios sem haver qualquer simetria em especial.

1.5 Processos ópticos não lineares: o modelo do oscilador não harmônico

Novamente consideramos aqui o modelo no qual o átomo é ligado ao núcleo de forma que o deslocamento de sua posição de equilíbrio causa uma força restauradora que pode ser escrita como uma série de potências no deslocamento x . Analogamente ao caso de um meio óptico linear, buscaremos aqui determinar propriedades ópticas não lineares por meio deste modelo. Para isso adicionaremos termos não lineares de força restauradora na eq. (1.25). Um termo da forma max^2 caracteriza os efeitos de segunda ordem, enquanto que um termo da forma mbx^3 dá conta dos efeitos de terceira ordem.

Em nossa discussão consideraremos somente o termo de segunda ordem. Com isso, somente efeitos de segunda ordem aparecerão. Utilizando a segunda lei de Newton novamente, podemos escrever a equação de movimento da seguinte forma:

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = -2\Gamma \frac{dx}{dt} - \omega_0^2 x - ax^2 - \frac{e}{m} E \quad (1.47)$$

Analiticamente torna-se impossível a determinação do deslocamento x devido à adição do termo quadrático, mas é possível, e útil para fins de análise, encontrar uma solução aproximada para equação. Para obter tal aproximação podemos supor que a contribuição não linear é pequena comparada à linear, de forma que aproximaremos a solução por uma série de potências em x . Utilizando somente os dois primeiros termos, teremos:

$$x = x^{(1)} + x^{(2)} \quad (1.48)$$

sendo que o termo $x^{(1)}$ é igual à solução obtida para a eq. (1.25) para o caso linear. A resposta para o termo $x^{(2)}$ é encontrada ao se aproximar ax^2 por $a(x^{(1)})^2$ na eq. (1.47). Isso faz com que a equação se torne linear e não homogênea, de forma que podemos encontrar uma solução que contém um termo que oscila na frequência 2ω e outro de frequência nula, da forma:

$$x^{(2)} = x^{(2)}(2\omega) + x^{(2)}(0) \quad (1.49)$$

sendo que $x^{(2)}(2\omega)$ e $x^{(2)}(0)$ são dados por:

$$x^{(2)}(2\omega) = -a \left(\frac{e}{m} \right)^2 E_0^2 \frac{e^{i2\omega t}}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)^2 (\omega_0^2 - (2\omega)^2 + i2\Gamma 2\omega)} + c.c. \quad (1.50)$$

$$x^{(2)}(0) = -2a \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{E_0}{\omega_0^2 (\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)} + c.c. \quad (1.51)$$

Vemos que o primeiro termo da direita na eq. (1.49) contém uma oscilação na frequência 2ω , que caracteriza a geração de segundo harmônico. Já o segundo termo mostra a retificação óptica, ou seja, a resposta em

freqüência nula. Ao substituírmos as eqs. (1.50) e (1.51) na eq. (1.2) para calcular a polarização do meio, obtemos expressões para a polarização não linear e para a susceptibilidade não linear nas frequências de 2ω e 0 que são da forma:

$$P^{NL} = -Ne(x_2(2\omega) + x_2(0)) \quad (1.52)$$

$$\chi^{(2)}(2\omega) = Na \left(\frac{e^3}{m^2 \epsilon_0} \right) \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega)^2 (\omega_0^2 - (2\omega)^2 + i2\Gamma 2\omega)} + c.c. \quad (1.53)$$

$$\chi^{(2)}(0) = Na \left(\frac{e^3}{m^2 \epsilon_0} \right) \frac{1}{\omega_0^2 (\omega_0^2 - \omega^2 + i2\Gamma\omega) (\omega_0^2 - \omega^2 - i2\Gamma\omega)} + c.c. \quad (1.54)$$

Generalizando a análise para considerar a situação em que o campo possui duas frequências ω_1 e ω_2 , termos da forma $\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2)$ e $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ aparecerão e agirão como fontes de campos nessas frequências, dando origem aos fenômenos de geração de soma e de diferença de frequências. Se considerássemos que o campo é constituído de ondas de três frequências arbitrárias ω_1 , ω_2 e ω_3 e adicionássemos o termo de terceira ordem na expansão do deslocamento x , agindo de maneira análoga à segunda ordem, obteríamos termos de $\chi^{(3)}$ em frequências da forma $(\omega_i \pm \omega_j \pm \omega_k)$, com $i, j, k = 1, 2, 3$, que caracterizam os processos do fenômeno da mistura de quatro ondas.

1.6 Breve discussão sobre processos não lineares

Esta seção apresenta a uma discussão resumida sobre os principais processos não lineares associados ao nosso trabalho. Trata-se da geração de segundo harmônico, automodulação de fase e autofocalização, sendo que esses dois últimos ocorrem no processo de geração de pulsos ultracurtos em nosso laser de cristal de Ti:safira devido a efeitos não lineares de terceira ordem.

1.6.1 Geração de segundo harmônico

Aqui, nossa discussão será focada nas questões qualitativas da geração de segundo harmônico em cristais, considerando a onda incidente como monocromática na frequência ω . Mais adiante, no Capítulo 4, discutiremos a geração de segundo harmônico com pulsos não monocromáticos ultracurtos.

A geração de segundo harmônico (GSH) é um processo de segunda ordem e, portanto, associado à susceptibilidade $\chi^{(2)}$. Só pode ser observado em meios que não apresentam simetria de inversão. Isso é fácil de ser notado por meio da eq. (1.33) ao se fazer a seguinte consideração: em meios que possuem simetria de inversão, uma troca de sinal nas coordenadas do sistema deve resultar em uma troca de sinal no vetor polarização; uma vez que o termo de segunda ordem na polarização depende do quadrado da amplitude do campo elétrico, este termo não inverte seu sinal (assim como todos os outros termos de ordem par na expansão da polarização em série de potências) ao se inverter o sinal das coordenadas; isso acarreta que a susceptibilidade $\chi^{(2)}$ deve ser identicamente nula. No âmbito da mecânica quântica, a GSH é um processo no qual um fóton de frequência 2ω é gerado a partir da destruição de dois fótons de frequência ω conforme há a propagação no meio não linear, como esquematiza a fig. 1.2 (a) e (b):

Figura 1. 2 - (a) Onda de frequência ω propaga em um meio não linear gerando campos na frequência 2ω devido à não linearidade de segunda ordem do meio. (b) Descrição da geração de segundo harmônico por um diagrama de níveis de energia.

Ao propagar ao longo de uma distância l no meio, a onda incidente não depletada de intensidade $I = \frac{1}{2}n\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}|E_0|^2$ gera um segundo harmônico (SH) cuja intensidade é dada por (1):

$$I(2\omega, l) = \frac{\omega^2 [\chi^{(2)}]^2 l^2}{2n_{2\omega} n_\omega^2 c^3 \varepsilon_0} \left[\frac{\sin(\Delta k l / 2)}{\Delta k l} \right]^2 I^2(\omega) \quad (1.55)$$

onde $n_{2\omega}$ e n_ω são os índices de refração do meio experimentados pelos campos do segundo harmônico e do fundamental, respectivamente, e $\Delta k l = l[k(2\omega) - 2k(\omega)]$ é o não casamento de fase (*phase mismatch*).

Vemos da eq. (1.55) que a intensidade do segundo harmônico depende do termo de fase representado pelo termo com Δk de forma que, para maximizar essa intensidade e melhorar a eficiência do processo, devemos fazer com que haja o casamento de fase. Fisicamente, isso significa que deve haver na face de saída do cristal uma soma coerente das contribuições ao campo do segundo harmônico que são geradas ao longo do cristal em diferentes posições. Isso é alcançado fazendo com que $\Delta k = 0$. Para satisfazer tal condição, geralmente é suficiente que os índices de refração experimentados pelo SH e pelo fundamental, $n_{2\omega}$ e n_ω respectivamente, sejam iguais. A fig. 1.3 esquematiza um caso em que a condição de casamento de fase não está sendo satisfeita.

Figura 1. 3 - Desenho de um caso sem casamento de fase para os vetores de onda do SH e do fundamental

Uma consequência da inexistência de simetria de inversão nos cristais em que ocorre o fenômeno de GSH é que o índice de refração passa a depender também do ângulo da direção de propagação da onda incidente em relação aos eixos principais. Desta forma, a eficiência da GSH dependerá do ângulo de propagação das ondas de frequência 2ω e ω . Isto porque a fase acumulada ao

longo do meio é sensível a esse ângulo, pois os vetores de propagação dependem desse índice de refração, de acordo com a eq. (1.19).

O corte de cristais duplicadores de frequência geralmente é feito de forma a favorecer a GSH em um determinado comprimento de onda. Todavia, caso o pulso de bombeio seja não monocromático, possuindo uma banda espectral relativamente larga, como em pulsos ultracurtos, o ângulo de eficiência máxima para a geração de SH não será constante em toda a banda, uma vez que há dispersão do índice de refração do meio. A fig. 1.4 esquematiza a eficiência otimizada na GSH para diferentes comprimentos de onda. Um pulso ultracurto incide no cristal em vários ângulos. Em cada ângulo de incidência haverá casamento de fase para um determinado comprimento de onda, fazendo com que a GSH para o mesmo seja otimizada.

Figura 1. 4 - Casamento de fase para a GSH em diferentes ângulos para diferentes comprimentos de onda.

Para pulsos ultracurtos o efeito de dispersão angular das frequências geradas pelo fenômeno de GSH torna-se evidente devido à largura de banda considerável dos mesmos. Isso dificulta o casamento de fase para os diferentes comprimentos de onda em um mesmo ângulo. Por esse motivo, utilizamos um cristal de pequena largura, de forma que a condição de casamento de fase é razoavelmente satisfeita para uma largura considerável da banda em um mesmo ângulo de incidência.

1.6.2 Automodulação de fase

Como consequência do efeito Kerr óptico, ocorre o fenômeno conhecido como automodulação de fase (*self-phase modulation*) (1,37). Este efeito consiste

na alteração da fase de um campo que se propaga em um meio que possui não linearidade de terceira ordem. Vimos anteriormente pela eq. (1.44) que a não linearidade de terceira ordem de um meio faz com que o índice de refração dependa da intensidade da onda aplicada.

Para ilustrar a automodulação de fase, consideremos um pulso com perfil temporal de intensidade $I(t)$ que propaga por uma distância L em um meio com efeitos dependentes de $\chi^{(3)}$. A fase acumulada $\phi(L)$ devido à propagação é dada pelo termo kz da exponencial da eq. (1.16). Com k sendo dado pela eq. (1.19) e n pela eq.(1.44), podemos escrever:

$$\phi(L) = \omega t - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_0 \cdot L - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 \cdot L \cdot I(t) = \omega t + \phi_0 + \phi_{NL} \quad (1.56)$$

onde fica claro que $\phi_0 = -\frac{2\pi}{\lambda_0} n_0 L$ é a fase linear acumulada devido ao índice de refração linear n_0 , e $\phi_{NL} = -\frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 L I(t)$ é a fase não linear dependente da intensidade do pulso. Vemos da equação anterior que a não linearidade do meio, e a dependência da intensidade do pulso com o tempo, fazem com que a fase também tenha dependência temporal. Isso caracteriza o fenômeno de automodulação de fase.

Uma consequência importante disso ocorre quando o perfil temporal de intensidade do pulso não é constante e pode ser vista no espectro transmitido pelo meio que será alargado devido à variação da fase com o tempo. Isso ocorre porque a frequência instantânea $\omega(t) = \frac{d\phi(t)}{dt}$ sofrerá uma variação devido à dependência temporal do termo ϕ_{NL} :

$$\omega(t) = \frac{d\phi(L)}{dt} = \omega - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 \cdot L \cdot \frac{d}{dt} I(t) \quad (1.57)$$

A eq. (1.57) mostra que frequências novas são geradas devido à propagação da luz no meio como consequência da automodulação de fase. Para exemplificar esse efeito, consideremos um pulso cujo perfil temporal de

intensidades seja gaussiano propagando em um meio com n_2 positivo. O pulso e as novas frequências geradas são esquematizados na fig. 1.5:

Figura 1. 5 - Geração de novas frequências no espectro do pulso em meio com n_2 positivo

Nesta figura, a primeira parte mostra a dependência temporal do pulso e a segunda parte mostra a alteração da frequência instantânea do pulso transmitido. Vemos da segunda parte da figura que, em processos não lineares desse tipo, nos quais o índice de refração não linear n_2 é positivo, a derivada da intensidade no tempo troca de sinal em determinado instante. Isto implica que frequências menores que a frequência da onda incidente sejam geradas na parte frontal do perfil temporal do pulso, enquanto frequências maiores se localizarão na parte traseira do pulso. Isso é conhecido como varredura de frequência (*chirp*).

Essa disposição das frequências geradas influencia fortemente na largura temporal do pulso. Isso porque as frequências menores geralmente propagam com velocidade maior que as frequências maiores (para dispersão normal do índice de refração). Disso decorre o alargamento do pulso conforme o mesmo propaga no meio. Já para a região de dispersão anômala do índice de refração, a velocidade de propagação é maior para frequências maiores, oposto ao que ocorre na região de dispersão normal. Com isso, a automodulação de fase pode

ser usada para compensar a dispersão, resultando em uma compressão do pulso, com possível geração de um sóliton.

Em nosso sistema, a dispersão sofrida pelo pulso é do tipo normal, de forma que, combinada com a automodulação de fase com n_2 positivo, produz uma varredura de frequência do pulso ultracurto. Devemos, portanto, controlar de alguma maneira esse alargamento do pulso de forma a reduzir ao máximo essa varredura de frequência originada da propagação da luz pela cavidade, uma vez que desejamos ter na saída do laser pulsos os mais curtos possíveis. Como discutiremos no capítulo seguinte, isso é feito utilizando-se um sistema de compressão dentro da cavidade contendo dois prismas.

1.6.3 Autofocalização

A autofocalização é mais um fenômeno que ocorre nos meios materiais decorrente do efeito Kerr óptico (1,37). Ele é consequência direta do fato do perfil espacial de intensidade do feixe de luz não ser homogêneo. De fato, luz laser tem perfil de intensidade que geralmente pode ser aproximada por uma gaussiana. Uma vez que o índice de refração de um meio tipo Kerr depende da intensidade do campo incidente, o perfil espacial do índice de refração também será não homogêneo, obedecendo a uma relação análoga à eq. (1.44) onde devemos substituir a dependência temporal por uma dependência espacial. No caso de feixes gaussianos, a dependência é puramente radial com relação ao centro do pulso:

$$n(r) = n_0 + n_2 I(r) \quad (1.58)$$

sendo que r é a distância radial do centro do pulso em um plano transversal com relação à direção de propagação da luz. Com isso, a radiação incidente induz uma lente no meio, que pode ser convergente se n_2 for maior que zero, ou divergente caso n_2 seja menor que zero. O efeito de autofocalização é esquematizado na fig. 1.6 para o caso em que n_2 é positivo:

Figura 1. 6 - Efeito de autofocalização para meio tipo Kerr com n_2 positivo quando um feixe com distribuição espacial de intensidades incide no mesmo.

Veremos no capítulo seguinte como operar um laser no regime pulsado com travamento de modos (*mode locking*). O laser precisa de um componente que cause a modulação das perdas da cavidade de forma a desfavorecer o regime contínuo e favorecer o regime pulsado. No caso de um laser com cristal de Ti:safira, o efeito de autofocalização é o responsável por tal modulação, não sendo necessário se acrescentar um componente controlado externamente para “travar” os modos do laser. Essa maneira de alcançar o regime pulsado é conhecida como *Kerr Lens Mode-locking* (KLM).

Capítulo 2 Pulsos ultracurtos

2.1 Introdução

Define-se como pulso ultracurto um pulso eletromagnético que possua duração temporal da ordem de femto a picossegundos (10^{-15} a 10^{-12} s). Devido à curta duração temporal, esses pulsos possuem banda espectral larga, uma vez que a largura espectral e a duração temporal são relacionados por meio de uma transformada de Fourier. São pulsos úteis para o estudo de fenômenos ópticos não lineares por basicamente duas características. A primeira delas é a alta potência de pico do laser apesar da energia não elevada. Isso acontece devido ao fato de toda sua energia se concentrar em um intervalo de tempo curtíssimo. A segunda característica se liga ao fato de que alguns fenômenos, lineares e não lineares, podem ter sua origem em processos ultrarrápidos. Neste caso, os pulsos ultracurtos permitem se ter resolução temporal necessária para entender tais processos.

Neste capítulo faremos uma breve descrição dos princípios da geração de pulsos ultracurtos de femtossegundos em laser de Ti:safira (operando no regime de travamento passivo de modos e foi utilizado em nosso trabalho para a geração de tais pulsos).

2.2 Geração de pulsos ultracurtos

Uma das principais técnicas que permitem a geração de pulsos ultracurtos em cavidades laser é o travamento de modos (*mode-locking*) que pode ser do tipo ativo ou passivo. No primeiro caso, um agente controlado externamente, normalmente um modulador acusto-óptico ou eletro-óptico, introduz uma modulação temporal das perdas da cavidade fazendo com que os campos elétricos nela propagando sejam modulados também. No segundo caso, o meio ativo da cavidade possui alguma não linearidade, fazendo com que a luz nela

propagando module sua própria amplitude. Isso age de forma a alterar a álgebra da cavidade, e o modo pulsado do laser é alcançado sem a necessidade de um agente externo.

2.2.1 Cavidade laser: modos longitudinais

Uma cavidade laser simplificada possui dois espelhos, sendo um deles totalmente refletor e o outro permitindo a transmissão de uma pequena fração da luz, e um meio ativo. A luz emitida pelo meio ativo é aprisionada pelos espelhos de forma que ela viaje ciclicamente pela cavidade, como ilustra a fig. 2.1.

Figura 2. 1 - Desenho esquemático de uma cavidade laser.

Para uma cavidade de comprimento óptico l , somente um conjunto de frequências satisfará as condições de contorno nas superfícies dos espelhos e sofrerão interferência construtiva a cada vez que uma volta completa ($2l$) na cavidade for percorrida pela luz. Esse comprimento óptico já leva em conta o índice de refração dos componentes ópticos contidos na cavidade. Essas frequências permitidas são os modos longitudinais da cavidade, dadas por:

$$\nu_m = \frac{mc}{2n_{eff}l}, m = 0,1,2,3, \dots \quad (2.1)$$

onde c é a velocidade da luz e n_{eff} é o índice de refração efetivo da cavidade. A curva de ganho dos meios ativos geralmente apresenta grande largura de banda. Portanto, as frequências que serão emitidas por um laser são aquelas que estiverem dentro da banda de emissão do meio ativo e ainda satisfizerem a eq. (2.1). Os meios ativos de lasers de estado sólido geralmente possuem

largura da curva de ganho muito maior que a separação $\Delta\nu$ entre as frequências permitidas pela cavidade. Essa separação em frequência é dada por:

$$\Delta\nu = \frac{c}{2n_{\text{eff}}l} \quad (2.2)$$

É possível estimar o número de modos longitudinais N de um laser por meio da razão entre a largura da curva de ganho do meio $\Delta\nu_g$ e a separação entre as frequências permitidas pela cavidade $\Delta\nu$:

$$N \approx \frac{\Delta\nu_g}{\Delta\nu} \quad (2.3)$$

A fig. 2.2 esquematiza os modos da cavidade laser e a largura de ganho do meio ativo.

Figura 2. 2 - (a) Modos longitudinais de uma cavidade passiva; (b) curva de ganho não saturado (linha cheia) e curva de perda (linha tracejada), (c) curva de ganho saturado e (d) espectro de saída do laser.

2.2.2 Travamento de modos por efeito lente Kerr

Uma vez que o laser utilizado em nosso trabalho possui como meio ativo um cristal de Ti:safira, o número de modos longitudinais do laser é muito grande, uma vez que a banda de emissão desse cristal é consideravelmente larga (da ordem de 200 nm). De fato, para um laser de femtossegundos, o número de modos N estimado pela eq. (2.3) é da ordem de 10^5 ou 10^6 .

Consideremos o m -ésimo modo longitudinal da cavidade laser. Seu campo elétrico pode ser escrito de acordo com a seguinte expressão:

$$E_m(t) = E_0^m e^{i(2\pi\nu_m t + \phi_m)}, m = 0, 1, 2, 3, \dots \quad (2.4)$$

sendo que m é o índice do m -ésimo modo longitudinal, ν_m é a frequência e ϕ_m é a fase do campo eletromagnético do respectivo modo. À saída do laser, o que teremos é uma soma de todos os modos que estiverem presentes na cavidade ressonante. Para facilitar a compreensão, consideremos que as amplitudes E_0^m sejam todas constantes e iguais a E_0 . O campo resultante será:

$$E(t) = E_0 \sum_{m=1}^N \exp[i(2\pi\nu_m t + \phi_m)], m = 1, 2, 3, \dots \quad (2.5)$$

Imaginemos ainda que haja uma frequência central ω_L da banda de ganho do meio ativo, tal que possamos escrever $2\pi\nu_m = \omega_L + 2\pi m\Delta\nu$, com $m = -\frac{N}{2}, \dots, \frac{N}{2}$. Reescrevemos a eq. (2.5) da seguinte forma:

$$E(t) = E_0 \sum_{m=-N/2}^{N/2} \exp[i(\omega_L t + 2\pi m\Delta\nu \cdot t + \phi_m)] = E_0 e^{i\omega_L t} \sum_{m=-N/2}^{N/2} \exp[i(2\pi m\Delta\nu \cdot t + \phi_m)] \quad (2.6)$$

As fases ϕ_m dos modos do laser geralmente não possuem relação entre si. Com isso, devido à aleatoriedade dessas fases, a soma dada pelas eqs. (2.5) e (2.6) resultará aproximadamente em um campo constante no tempo.

Suponhamos então que um elemento é inserido na cavidade de forma que produza uma correlação entre essas fases e tenhamos $\phi_m = \phi_0$. Isso significa “travar” os modos no valor ϕ_0 . Podemos então reescrever a eq. (2.6) da seguinte forma:

$$E(t) = E_0 e^{i(\omega_L t + \phi_0)} \sum_{m=-N/2}^{N/2} \exp[i(2\pi m \Delta \nu \cdot t)] \quad (2.7)$$

Por esta expressão é possível ver que, com o travamento dos modos, o campo passa a se repetir a cada intervalo de tempo $T = 1/\Delta \nu$:

$$E(t+T) = E_0 e^{i(\omega_L t + \phi_0)} \sum_{m=-N/2}^{N/2} \exp[i(2\pi m \Delta \nu \cdot t + m2\pi)] = E(t) \quad (2.8)$$

Já que a frequência central é da forma $\omega_L = 2\pi L \frac{c}{2n_{eff}l}$, com L inteiro, então $e^{i[\omega_L(t+T)]} = e^{i(\omega_L t)}$, justificando a eq. (2.8). Uma vez que N é um número muito grande para o caso de um laser de Ti:safira, a somatória pode ser aproximada por uma integral e então a eq. (2.7) nos dá:

$$E(t) = E_0 \exp(i\omega_L t) \left[\frac{\sin(N\pi \Delta \nu \cdot t)}{\sin(\pi \Delta \nu \cdot t)} \right] \quad (2.9)$$

Uma vez que a intensidade $I(t)$ depende quadraticamente do módulo do campo elétrico, podemos escrever:

$$I(t) \propto \left[\frac{\sin(N\pi \Delta \nu \cdot t)}{\sin(\pi \Delta \nu \cdot t)} \right]^2 \quad (2.10)$$

Os gráficos apresentados na fig. 2.3 mostram a intensidade dada pela equação anterior e exemplificam a dependência da largura temporal da intensidade em termos do número de modos N presentes dentro da banda de emissão do meio ativo.

Figura 2. 3 - Pulsos originados para quando há 10 e 40 modos longitudinais da cavidade laser de modos travados dentro da curva de ganho do meio ativo.

Vemos dessa figura que a duração do pulso diminui e a intensidade de pico aumenta conforme aumenta o número N de modos longitudinais da cavidade encontrados dentro da banda de emissão do meio ativo. Com isso, podemos entender porque lasers de Ti:safira têm capacidade de gerar pulsos tão curtos, da ordem de femtossegundos: a sua banda espectral é extremamente larga. Vemos também que a taxa de repetição não se altera com N . Isso já era esperado, pois essa taxa de repetição, dada por $\Delta\nu$, só depende da velocidade da luz e das características da cavidade.

Para se obter o travamento de modos, é necessário que algum componente da cavidade seja perturbado, geralmente um prisma. Essa perturbação produz um pequeno acúmulo de energia na cavidade, produzindo um pico de intensidade que é propagado. O meio ativo, no nosso caso um cristal de Ti:safira, ao experimentar este pico de intensidade, tem seu índice de refração alterado devido ao efeito Kerr, induzindo uma lente. Efetivamente, corresponde a adicionar um elemento novo à cavidade. Isso altera as condições de estabilidade da cavidade fazendo com que o modo contínuo de emissão laser (*continuous wave*, CW) seja suprimido, favorecendo o regime pulsado. Esses pulsos gerados fazem ainda com que o laser não retorne ao modo contínuo por meio da indução de perdas para o modo CW, a não ser que ocorra alguma outra perturbação possibilitando a estabilidade deste modo de operação. A fig. 2.4 ilustra o efeito Kerr de indução de lente no meio ativo.

Figura 2. 4 - Efeito Kerr em cristal de Ti:safira.

2.3 Dispersão em pulsos ultracurtos

Uma vez que o pulso gerado possui duração temporal da ordem de femtossegundos, a largura espectral é consideravelmente larga (da ordem de 60 nm). Uma vez que, para meios dielétricos, o índice de refração depende da frequência da onda incidente, e a velocidade de propagação é inversamente proporcional a este índice, as componentes espectrais do pulso ultracurto viajarão com velocidades diferentes. Assim, cada componente acumulará uma fase diferente e isso faz com que tanto o perfil como a largura temporal do pulso sejam alteradas.

Por convenção, quando frequências maiores caminham com velocidades menores em relação às frequências menores, a dispersão é dita positiva. No caso oposto, a dispersão é dita negativa. A fig. 2.5 ilustra pulsos com dispersão sendo (a) o de dispersão positiva (frequências menores caminham na parte frontal do pulso) e (b) o de dispersão negativa (frequências maiores na parte frontal do pulso).

Quando as frequências de um pulso se separam temporalmente, dizemos que há uma varredura de frequências (*chirp*). Pulsos que possuem uma varredura de frequências são temporalmente mais largos que o limite temporal mínimo para a largura de um pulso que é dada pela transformada de Fourier da

distribuição espectral. Em princípio, a distribuição espectral poderia ser obtida por meio da transformada de Fourier da distribuição temporal do pulso. Porém isso só é válido na situação em que o pulso se encontra o mais comprimido possível (chamamos de pulso limitado por transformada), de forma que a varredura em frequências não aumenta e nem diminui a largura espectral do pulso. Todavia produz uma redistribuição das frequências do pulso inicial no tempo.

Figura 2. 5 - Varredura de frequências (a) positiva e (b) negativa.

Em um meio onde há dispersão normal do índice de refração, frequências maiores ficarão atrasadas temporalmente em relação às frequências menores, fazendo com que o pulso tenha uma varredura de frequências positiva. Na região de dispersão anômala ocorre o contrário: frequências menores ficarão atrasadas e o pulso adquire uma varredura de frequências negativa.

2.4 O laser de Ti:Safira

Usamos um laser de Ti:Safira (KM Labs) com laser de bombeio Verdi de Nd:YVO₄ de até 5W (sendo que utilizamos o bombeio com potência de 4,5W) da Coherent em 532 nm. A cavidade é constituída de um cristal de Ti:Safira (Ti:Al₂O₃), um espelho direcionador do feixe de bombeio para o cristal, uma íris e uma lente, dois espelhos curvos confocais para focalização do feixe no cristal, dois prismas para compensação da dispersão na cavidade. Eventualmente,

modulador da fase do feixe e modulador dos ganhos e perdas da cavidade por meio do efeito lente Kerr. Isto faz desnecessário se acrescentar um elemento controlado externamente para o laser operar no regime pulsado. Apesar dessas características favoráveis, nele ocorre em maior escala a dispersão das frequências do pulso gerado conforme ocorre a propagação na cavidade. Por esse motivo, torna-se necessário compensar, de alguma forma, essa dispersão. Isso é feito por meio dos prismas internos à cavidade, como discutiremos mais adiante.

A fig. 2.7 mostra os níveis de energia e os espectros de absorção e emissão do íon de Ti^{3+} (39), responsável pela emissão do meio ativo. Vemos claramente a grande largura da banda de emissão, aproximadamente 200 nm. Vemos ainda que a absorção possui um pico em cerca de 520 nm, o que justifica a escolha do bombeio.

Figura 2. 7 - Níveis de energia e espectro de absorção e emissão para o cristal de Ti:Safira.

A fig. 2.8 mostra um espectro típico de um pulso ultracurto gerado pela cavidade laser em nosso laboratório. Vemos nesta figura que o pulso gerado possui largura espectral da ordem de 40 nm, centrado em aproximadamente 785 nm, com perfil aproximadamente gaussiano.

Figura 2. 8 - Espectro típico do pulso ultracurto gerado pelo laser de Ti:Safira de nosso laboratório.

2.5 Compensação da dispersão intracavidade.

Como foi afirmado anteriormente, é necessário que haja um sistema de compensação da dispersão intracavidade se quisermos obter pulsos de femtossegundos na saída do laser. Ou seja, é preciso compensar a varredura de frequência que é gerada pela propagação da luz pela cavidade e pelos componentes da mesma. Se a varredura de frequências é positiva, deve-se inserir na cavidade um componente que adicione uma varredura de frequências negativa. Geralmente o que se faz é adicionar um sistema de compressão, sendo os mais comuns constituídos de prismas ou de redes de difração. O último geralmente é composto por duas redes de difração e espelhos para colimação e possui a desvantagem da amplitude útil do campo dentro da cavidade ficar reduzida devido às várias ordens de difração na rede. Já o primeiro atua pelo sistema de dispersão do índice de refração de forma que as perdas de intensidade são baixas. Para evitar perdas por reflexão nos prismas, o feixe de luz incidente deve ser linearmente polarizado, incidindo com o ângulo de Brewster, minimizando a reflexão da luz linearmente polarizada paralelamente ao plano de incidência.

Um sistema comumente utilizado para compressão de pulsos com prisma consiste de dois pares de prismas. Quando apropriadamente posicionados, eles separam as frequências espectrais de forma que as frequências menores percorram um caminho óptico maior. Isso corresponde a adicionar uma varredura de frequências negativa no pulso. O primeiro par de prismas separa espacialmente as frequências enquanto o segundo, simetricamente posicionado em relação ao primeiro, as recombina. A fig. 2.9 exemplifica um sistema de quatro prismas para a compressão de pulsos.

Figura 2. 9 - Sistema de compressão intracavidade com quatro prismas.

Vemos da fig. 2.6 que nosso sistema possui somente dois prismas, mas a retrorreflexão em um dos espelhos totalmente refletores faz com que o feixe retorne simetricamente aos prismas duplicando o caminho do feixe. Isto produz a propagação efetiva por quatro prismas. A vantagem disso está no menor espaço ocupado.

Capítulo 3 Formatação de pulsos ultracurtos

3.1 Introdução

Nas últimas décadas foram desenvolvidas várias técnicas para formatação de pulsos de maneira a gerar os mais variados perfis de onda de acordo com as necessidades para pesquisa e aplicação. Essa formatação permitiu um grande controle da forma dos pulsos, implicando em diversas aplicações em espectroscopia, fibras ópticas não lineares, entre outros.

Dentre as técnicas de formatação de pulsos, podemos diferenciar as que produzem modulação somente do perfil de intensidades, ou somente da fase espectral ou ainda aquelas que produzem modulação tanto do perfil de intensidades quanto da fase espectral do pulso. O foco deste capítulo está na descrição dos processos básicos da modulação, por meio de um modulador espacial de luz de cristal líquido (*liquid crystal spatial light modulator* - LC SLM), da fase de pulsos ultracurtos cujas frequências espectrais são separadas espacialmente por meio de algum componente óptico, que em nosso caso se trata de uma rede de difração. Essa separação espectral tem como vantagem o fato de tornar desnecessária a utilização de moduladores ultrarrápidos, uma vez que a modulação é feita paralelamente no domínio da frequência.

3.2 Teoria básica do filtro linear para modulação de pulsos

A teoria da modulação de pulsos ultracurtos se baseia na ação de um filtro linear e invariante no tempo. Para descrever a geração de pulsos na escala de femtossegundos formatados das mais diversas formas, utilizaremos o formalismo do filtro linear.

Figura 3. 1 - Filtro linear formatando pulso. (a) No domínio do tempo. (b) No domínio da frequência.

A ação de um filtro linear pode ser descrita tanto no domínio do tempo como no domínio da frequência, como ilustra a fig. 3.1. A forma mais adequada para descrever o problema é determinada pelas circunstâncias do experimento e pelas necessidades experimentais.

Como vemos na figura acima, o filtro pode ser caracterizado por uma função resposta, $h(t)$, no domínio do tempo. Com isso, um pulso incidente $\tilde{E}_{in}(t)$ sofrerá a ação do filtro ao propagar por ele, de forma que o pulso resultante na saída do mesmo, $\tilde{E}_{out}(t)$, seja dado pela convolução entre $\tilde{E}_{in}(t)$ e a função resposta $h(t)$ (21,23)

$$\tilde{E}_{out}(t) = \tilde{E}_{in}(t) * h(t) = \int dt' \tilde{E}_{in}(t') h(t - t') \quad (3.1)$$

Na eq. (3.1) o símbolo $*$ representa a convolução. Nota-se claramente que se o pulso incidente for uma função delta, o pulso de saída será dado simplesmente pela função resposta $h(t)$. Portanto, se o pulso incidente é suficientemente curto, pode ser aproximado por uma função delta. Com isso o problema de gerar um pulso específico na saída converte-se no problema de encontrar o filtro com função resposta adequada. A função resposta $h(t)$ também é chamada de função de Green, e é análoga às funções de mesmo nome em outras áreas.

O filtro também pode ser caracterizado por sua função resposta no domínio da frequência, $H(\omega)$. Com isso, se tivermos um pulso incidente $E_{in}(\omega)$, a saída do filtro linear nos dará um pulso $E_{out}(\omega)$, dado pelo produto do sinal de entrada pela função resposta em frequência (21,23):

$$E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega)H(\omega) \quad (3.2)$$

As funções $\tilde{E}_{in}(t)$, $\tilde{E}_{out}(t)$ e $h(t)$ se relacionam respectivamente com $E_{in}(\omega)$, $E_{out}(\omega)$ e $H(\omega)$, por meio da transformada de Fourier, ou seja:

$$H(\omega) = \int h(t)e^{-i\omega t} dt \quad (3.3)$$

$$h(t) = \frac{1}{2\pi} \int H(\omega)e^{i\omega t} d\omega \quad (3.4)$$

Se o pulso incidente $\tilde{E}_{in}(t)$ for uma função delta, a função $E_{in}(\omega)$ é uma constante igual à unidade, de forma que o espectro de saída $E_{out}(\omega)$ resulta na função resposta em frequência $H(\omega)$. Portanto, a formatação de pulsos com um formato específico desejado pode ser alcançada por meio da escolha adequada do filtro com função resposta em frequência apropriada para a ocasião.

Em nossa descrição da formatação de pulsos nos focaremos em trabalhar no domínio da frequência. A descrição é mais natural nesse domínio, uma vez que a formatação é feita com a separação espectral do pulso por um elemento dispersivo.

3.3 Aparato para formatação de pulsos

A montagem experimental mais comum para a formatação de pulsos é constituída de duas redes de difração, duas lentes e uma máscara que será o elemento modulador da amplitude, da fase ou de ambos. A fig. 3.2 ilustra a montagem básica para a formatação de pulsos ultracurtos. Esse conjunto de

componentes deve ser posicionado em uma disposição que constitua um compressor de pulsos de dispersão nula, a ser discutida mais adiante.

A primeira rede de difração produz uma dispersão angular das componentes de frequência do pulso incidente. O pulso então é focalizado em pequenos pontos, cujo tamanho é limitado pelo limite de difração, localizados no plano focal atrás da primeira lente. Nesse lugar, as componentes espectrais encontram-se separadas ao longo de uma dimensão. Basicamente a primeira lente faz uma transformada de Fourier que converte a dispersão angular produzida pela rede em uma separação espacial no plano focal traseiro. Nesse plano deve ser posicionado o modulador espacial de luz (SLM), isto é, a máscara que produzirá a modulação de fase e/ou de amplitude das frequências separadamente. Em seguida o feixe é focalizado por uma segunda lente em uma segunda rede de difração que recombina as componentes espectrais agora moduladas. Com isso se obtém um pulso formatado, com a forma do pulso sendo dada pela transformada de Fourier do padrão transferido da máscara para o espectro.

Figura 3. 2 - Desenho esquemático do formatador de pulsos ultracurtos.

Para verificar a eficácia e o correto posicionamento dos elementos do formatador, é necessário garantir que, na ausência da máscara moduladora, o pulso de saída tenha o mesmo formato que o pulso de entrada. Para isso, as lentes e a rede devem estar posicionadas de forma a constituir um formatador livre de dispersão. Isso pode ser alcançado posicionando as lentes de forma a constituírem um telescópio de coeficiente de magnificação unitária, com as redes localizadas nos planos focais externos das lentes. Ou seja, as distâncias entre a

primeira rede de difração e a primeira lente, entre a primeira lente e o modulador espacial de luz, entre o modulador e a segunda lente e entre esta e a última rede devem ser iguais a uma distância focal das lentes. Essa configuração é conhecida como configuração $4f$, uma vez que a soma das distâncias entre os componentes totaliza quatro vezes a distância focal das lentes (21,23). Nessa situação, sem o modulador, a primeira lente promoverá uma transformada de Fourier entre o plano da primeira rede de difração e o da máscara de fase, enquanto que a lente seguinte faz uma segunda transformada de Fourier, agora entre o plano do modulador e o da segunda rede. Isso resulta em um pulso não alterado.

Aqui, algumas aproximações devem ser consideradas para esta condição de dispersão nula. A primeira delas é de que as lentes sejam suficientemente finas e não haja aberrações. Outra aproximação a ser feita é da dispersão cromática nas lentes, ou em qualquer outro elemento inserido no formatador, ser pequena. Além disso, consideramos que as redes de difração possuem resposta espectral igual e constante para todas as frequências. Tanto a aberração cromática quanto a dispersão devida à propagação do pulso pelas lentes são efeitos importantes a serem considerados quando o pulso é ultracurto. Para se evitar esses efeitos indesejáveis, as lentes podem ser substituídas por espelhos esféricos. Outra complicação surge do fato das redes difratarem o pulso em várias ordens, de forma que a potência do pulso diminui de uma certa quantidade ao passar pelo formatador. Isso pode ser atenuado utilizando-se redes de difração apropriadas que favoreçam uma ordem de difração específica. Tais redes são conhecidas como *blazed gratings*.

Deve-se notar ainda que a montagem da fig. 3.2 pode ser utilizada para introduzir uma varredura de frequências no pulso por meio da simples manipulação das distâncias entre as redes e as lentes. Desta forma é possível comprimir o pulso caso o mesmo possua varredura de frequência positiva ou negativa devido à propagação por algum elemento anterior ao formatador de pulsos.

As máscaras a serem utilizadas para a modulação dos pulsos podem ser de vários tipos. Em nosso trabalho, o modulador constitui-se de um LC SLM, que efetivamente produz modulação somente na fase espectral do pulso. Filtros que

produzem modulação somente na fase possuem a vantagem de gerarem perdas consideravelmente pequenas ao serem adicionados no formatador.

3.4 Técnicas de alinhamento para o formatador de pulsos

O alinhamento cuidadoso do sistema formatador de pulsos é extremamente importante, pelo fato dos componentes possuírem muitos graus de liberdade. Aqui descrevemos alguns procedimentos úteis para o alinhamento do conjunto de elementos ópticos. Em nosso trabalho, o sistema foi posicionado em uma mesa óptica e o próprio feixe do laser de Ti:Safira foi utilizado como fonte para o alinhamento.

O primeiro procedimento a ser realizado é garantir que o feixe incidente do laser esteja colimado e propague paralelamente ao plano da mesa óptica. Isso é facilmente alcançado por meio de espelhos direcionadores. O próximo passo consiste em posicionar a primeira rede de difração de forma que sua superfície contendo as ranhuras permaneça em um plano perpendicular ao plano da mesa. Isso é facilmente obtido observando-se a retrorreflexão do feixe (difração de ordem zero) e a difração da ordem desejada e fazendo-se com que ambos propaguem paralelamente à mesa. Uma vez que esse alinhamento esteja devidamente feito, as componentes espectrais do pulso espalhadas pela rede também caminharão paralelamente à mesa. Em seguida, a primeira lente deve ser posicionada a uma distância em torno da distância focal da primeira rede, com o feixe de referência passando pelo centro da lente estando esta em um plano normal à superfície da mesa. Obviamente, o feixe de saída da lente deve permanecer com propagação paralela à mesa óptica. Isso define a altura na qual a lente deve ser posicionada. Agora o modulador espacial de luz pode ser posicionado. Ele deve estar localizado aproximadamente no plano focal posterior da primeira lente de forma que o feixe espalhado passe pelo seu centro. Nesse ponto o SLM ainda não deve gerar modulação no pulso. Em nosso caso, por utilizarmos um LC SLM controlado por computador, podemos comandar o aparelho de forma a não introduzir nenhuma modulação ou mantê-lo desligado nesse estágio do alinhamento. Então deve-se posicionar a segunda lente a duas

distâncias focais da primeira lente. Sua posição deve ser ajustada de forma ao feixe passar pelo seu centro e sair devidamente colimado. Sua altura deve ser ajustada da maneira como feito no caso da primeira lente.

A segunda rede de difração pode ser agora adicionada a uma distância focal da segunda lente. O plano de sua superfície e suas ranhuras devem ser ajustados de maneira similar àquele feito com a primeira rede. Alguns detalhes devem ser enfatizados nesse ponto. O primeiro deles é que a rotação da segunda rede sobre um eixo vertical deve ser cuidadosamente ajustada para coincidir com o da primeira. Para se conseguir isso, pode-se observar o feixe de saída no campo distante e então garantir que não há mais dispersão espacial das componentes; ou seja, garantir que todas as componentes de frequência estejam superpostas. Uma das maneiras de se visualizar a dispersão espacial residual consiste em utilizar um anteparo, ou mesmo um cartão, e transladá-lo pelo plano da máscara moduladora, onde as frequências estão espacialmente separadas horizontalmente, bloqueando gradativamente as frequências do feixe. Se não houver dispersão residual, poderá observar-se que o feixe na saída é atenuado uniformemente conforme o cartão é transladado. O segundo detalhe consiste em configurar as redes para que estejam exatamente a quatro distâncias focais uma da outra a fim de se obter dispersão nula. Como já afirmamos, se o pulso incidente possuir alguma varredura de frequência, essa distância entre as redes pode ser alterada a fim de compensar essa varredura. A distância entre as redes tem seu ajuste fino feito por meio da medida da duração do pulso de saída. por meio dessa medida pode-se encontrar a distância correta das redes ao se produzir o pulso de saída não formatado o mais curto possível.

Por fim, o equipamento modulador do pulso pode ser ligado. Em nosso caso, o LC SLM é ligado com sua região de abertura centrada no feixe disperso. Como já afirmado, deve ser posicionado no plano focal traseiro da primeira lente, onde as componentes de frequência do pulso estão focalizadas com seu menor tamanho. Novamente, ao se monitorar as características impostas no espectro do pulso de saída pode-se garantir o correto ajuste da posição e da distância do SLM.

Em nosso trabalho, ainda outra técnica auxiliar foi utilizada para a garantia de que o pulso de saída não formatado realmente era o mais curto possível. Utilizamos o segundo harmônico gerado em um cristal posicionado após o

formatador. Esse segundo harmônico pode ser monitorado de forma a obtermos a maior intensidade possível. Isso ajuda a garantir que o pulso de saída está devidamente comprimido e sem dispersão espacial.

3.5 Formatação de pulsos utilizando LC SLM

Discutimos aqui a formatação programável de pulsos ultracurtos utilizando LC SLM como máscara de fase a ser posicionada no plano focal traseiro da primeira lente da fig. 3.2. Uma das vantagens da utilização de um modulador de cristal líquido (*liquid crystal modulator – LCM*), como veremos mais adiante, é que a formatação do pulso pode ser controlada por computador de acordo com as necessidades do experimento.

Arrays de moduladores de cristal líquido podem ser utilizados tanto para modulação somente da fase do pulso como da modulação de fase e amplitude em aplicações utilizando formatação de pulsos. No sistema da fig. 3.2, ainda deve ser adicionado um par de lâminas de meia onda na entrada e na saída do LCM a fim de girar a polarização do pulso incidente, fazendo com que esta coincida com aquela exigida pelo array de moduladores. A presença de um array de cristais líquidos permite um controle de forma que se possa variar continuamente a fase a ser adicionada ao pulso por cada pixel separadamente. Além disso, possibilita um controle programável da fase espectral do na escala de milissegundos, uma vez que o tempo de reorientação das moléculas do cristal líquido em resposta à voltagem aplicada é da ordem de 50 ms (21,23). A fig. 3.3 mostra a ilustração esquemática de um array de cristal líquido para modulação apenas da fase de pulsos ultracurtos (21). Esse array é constituído de uma camada fina de cristal líquido de fase nemática posicionado entre duas placas de vidro. O cristal líquido de fase nemática é constituído basicamente de moléculas longas e finas, no formato de bastonetes que são alinhadas com seus eixos maiores na direção do eixo *y*, quando na ausência de campo elétrico aplicado. Quando um campo elétrico é aplicado na direção *z*, as moléculas de cristal líquido são giradas de forma a se alinhar com o eixo *z*, fazendo com que o índice de refração se altere para a luz polarizada na direção *y*. Obviamente, para

termos controle total da fase adicionada à componente espectral que passa por determinado pixel do array de cristal líquido, é necessário que a máxima mudança de fase em tal pixel seja de, no mínimo, 2π . Para se aplicar o campo elétrico necessário para alterar a direção das moléculas do cristal líquido, a superfície interna de cada uma das placas de vidro sofre um processo de depósito de um filme fino de óxido de estanho e índio transparente e que conduz eletricidade. Em uma das placas é desenhado um padrão com um determinado número de eletrodos separados, ou pixels.

Figura 3. 3 - Desenho esquemático de um array de cristal líquido.

Os aparelhos moduladores de cristal líquido comerciais atualmente existentes no mercado possuem de 128 até 640 pixels, com separação entre o centro dos pixels de $100\ \mu\text{m}$, com uma separação de $2,5\ \mu\text{m}$ e uma abertura total de aproximadamente 13 mm. Em nosso experimento, utilizamos um LC SLM de 640 pixels da Cambridge Research & Instrumentation, Inc. (CRi), com separação dos centros dos pixels de $100\ \mu\text{m}$, com separação de $2\ \mu\text{m}$ entre os pixels e abertura de cerca de 64 mm. O array é controlado por um circuito especial que gera 640 sinais separados com amplitude variável com o intuito de obtermos controle de fase independente e suave de todos os 640 elementos moduladores. Outro ponto importante de se notar é que o sinal enviado para cada elemento é formado por uma onda quadrada de amplitude bipolar variável, com frequência de algumas centenas de hertz ou mais ao invés de uma corrente

contínua de amplitude variável. Isso porque a corrente alternada previne a ocorrência de efeitos de acúmulo de cargas. A utilização de uma onda quadrada não altera a operação do modulador uma vez que a rotação das moléculas do cristal líquido depende somente da amplitude e não do sinal da voltagem aplicada. A partir daqui, os dados de entrada para o circuito que controla o campo elétrico aplicado no cristal líquido podem ser manipulados por computador a fim de se produzir os mais complexos padrões de fase na modulação do pulso. Para esse controle, desenvolvemos um programa específico em linguagem LabVIEW.

Em nosso trabalho, a montagem do formatador diferiu da montagem da fig. 3.2. A fig. 3.4 ilustra a montagem usada. Nesse formatador, utilizamos uma rede de difração de 600 ranhuras por milímetro, um espelho esférico com distância focal de 30 cm. Essa combinação produz uma abertura do feixe, de forma que, após o espelho, as componentes espectrais ficam dispostas em uma dimensão em formato de uma linha medindo aproximadamente 2,1 cm. Vemos na fig. 3.4 (a) que as diferenças para o formatador geral da fig. 3.2 são a presença de dois espelhos planos e de um espelho esférico. O espelho esférico substitui as lentes da fig. 3.2 a fim de evitar a aberração cromática e a dispersão que surgiriam devido à propagação nas lentes. O primeiro dos espelhos planos é utilizado para direcionar o pulso dispersado espacialmente na direção do LC SLM. Ele pode ser posicionado a uma distância a do espelho esférico e a uma distância b do modulador. Essas distâncias devem obedecer à relação $a + b = f$, sendo f a distância focal do espelho esférico. O segundo espelho plano produz uma dupla passagem das componentes pelo modulador. Isso tem o simples efeito de duplicar a fase adicionada a essas componentes. Uma das vantagens da presença desse espelho é o menor espaço ocupado pelo conjunto formatador. Outra vantagem consiste no fato de que apenas uma rede e um espelho esférico podem ser usados. Uma vez que na fig. 3.2 deve haver simetria entre os pares de lentes e redes com relação ao plano do SLM, a presença do espelho plano nesse local garante essa simetria.

Figura 3. 4 – (a) Desenho esquemático da montagem experimental usada em nosso trabalho e (b) fotografia do formatador de pulsos representado pelo desenho esquemático (a).

pelo fato da modulação ocorrer somente na fase espectral do pulso, espera-se que esse tipo de modulação não altere o formato espectral do pulso. A fig. 3.5 mostra um espectro típico após o formatador esquematizado na fig. 3.4. Podemos comparar este espectro com o da fig. 2.8 e notar que as componentes espectrais permanecem relativamente com as mesmas amplitudes antes e após o conjunto formatador.

Figura 3. 5 - Espectro típico após o conjunto formatador do pulso.

Uma das precauções a serem tomadas na formatação dos pulsos surge devido à pixelação do modulador, ou seja, devido ao fato do array ser composto de pixels, de forma à fase adicionada às componentes espectrais do pulso ser, de fato, discreta e não contínua, como se desejaria. Portanto, ao se programar o LC SLM para adicionar uma função complicada à fase espectral, deve-se tomar o cuidado dessa função ter variação suficientemente suave de forma que a mudança de fase de um pixel para o seguinte permaneça relativamente pequena. Isso faz com que a função gerada no SLM seja uma aproximação satisfatória da função teoricamente escolhida. Por exemplo, imaginemos que queremos modular a fase espectral com funções senoidais. As funções de período menor possuirão menos pixels para compor um único período completo. A fig. 3.6 ilustra casos nos quais um período da função $\sin(x)$ é construído a partir de um número limitado de pixels, exemplificando o efeito escada. Na fig. 3.6 (a), a função é construída continuamente; já na fig. 3.6 (b), a função é construída a partir de 40 pixels, e já é possível observar os degraus na função, mas ainda é possível aproximar o padrão obtido por uma função seno; na fig. 3.6 (c), construída com 20 pixels, observa-se ainda mais o efeito escada devido ao menor número de pixels; por fim, na fig. 3.6 (d), somente 10 pixels são responsáveis por reproduzir um período da função e percebe-se a grande distorção em relação à função original. Isso pode atrapalhar no momento da aplicação do pulso formatado como, por exemplo, na geração de segundo

harmônico, como é o nosso caso, pois utilizamos funções senoidais de altas frequências.

Figura 3. 6 - Função $\sin(x)$ (a) construída continuamente, (b) construída com 40 pixels, (c) construída com 20 pixels e (d) construída com 10 pixels.

Capítulo 4 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos

4.1 Introdução

A geração de segundo harmônico tornou-se de grande importância nos últimos anos em física de pulsos ultracurtos como um meio para a conversão de frequências e a correlação óptica não linear. Nesse capítulo discutiremos o caso relativamente simples da geração de segundo harmônico tipo I (38), no qual uma onda fundamental propaga como onda ordinária ou extraordinária, produzindo um segundo harmônico extraordinário ou ordinário, respectivamente. Discutiremos ainda a respeito da geração de segundo harmônico com pulsos com a fase espectral modulada. Encontraremos uma solução analítica do formato espectral do segundo harmônico para uma modulação de fase senoidal do pulso fundamental. Para isso, partiremos de uma relação demonstrada no Apêndice A. Apresentaremos ainda medidas realizadas dessa GSH. Em seguida, descreveremos a geração de segundo harmônico sintonizável por meio da modulação da fase espectral do pulso fundamental com uma função constituída da soma de senos de frequências diferentes. Serão discutidas também as limitações experimentais encontradas e, por fim, apresentaremos uma aplicação da sintonização do segundo harmônico em medidas espectroscópicas.

4.2 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno

Nesta seção apresentaremos a discussão analítica e os resultados da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por uma função cosseno.

4.2.1 Descrição analítica da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno

Nesta seção, discutimos a geração de segundo harmônico a partir de pulsos cuja fase espectral é modulada por uma função cosseno. Como campo incidente, consideramos nosso pulso de laser com formato gaussiano ao qual adicionamos uma fase espectral cossenoidal de modulação de frequência Δt :

$$A_1(\omega_1) \propto \exp\left[-\left(\frac{\omega_1}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \exp[i\phi \cos(\Delta t \cdot \omega_1 + \psi)] \quad (4.1)$$

onde ω_1 é a frequência relativa à frequência central, $\Delta\omega_1$ é a largura espectral do pulso, ϕ é a amplitude da modulação e ψ é uma constante de fase arbitrária. Para calcular o segundo harmônico gerado por um pulso da forma da eq. (4.1), devemos substituí-la na eq. (A.28)

$$A_2(\omega) \propto \int A_1(\omega') A_1(\omega - \omega') d\omega' \quad (A.28)$$

Para efetuar o cálculo, é útil utilizar a seguinte relação (42-43):

$$\exp(ix \cos \theta) = i \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(x) \cdot \exp(in\theta) \quad (4.2)$$

Aqui, $J_n(x)$ é a função de Bessel de ordem n . Com isso, obtemos o segundo harmônico gerado:

$$A_2(\omega_2) \propto \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_2}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} a_n \quad (4.3)$$

sendo que

$$a_n = J_n \left(2\phi \cos \left(\frac{1}{2} \Delta t \cdot \omega_2 + \psi \right) \right) \times \exp \left[i \frac{1}{2} n \pi - \frac{1}{8} (n \Delta t \Delta \omega_1)^2 \right] \quad (4.4)$$

Nessas expressões, ω_2 corresponde à frequência relativa à frequência central do segundo harmônico, sendo ela o dobro da frequência central do pulso fundamental.

Vemos da expressão para a_n que os termos contendo funções de Bessel de ordens elevadas são suprimidos devido à presença da exponencial decrescente. Por esta razão, se possuímos um produto $\Delta t \Delta \omega_1$ suficientemente grande, podemos desprezar os termos a_n com n diferente de zero. Dessa forma, o espectro do segundo harmônico fica modulado simplesmente por uma função de Bessel de ordem zero:

$$A_2(\omega_2) \sim \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\omega_2}{\Delta \omega_1} \right)^2 \right] \times J_0 \left(2\phi \cos \left(\frac{1}{2} \Delta t \cdot \omega_2 + \psi \right) \right) \quad (4.5)$$

A fig. 4.1 mostra uma simulação do segundo harmônico dado pela eq. (4.5), gerado a partir do pulso fundamental dado pela eq. (4.1), que possui comprimento de onda central em 795 nm.

Vemos que o espectro do segundo harmônico não possui modulação na fase, mas ao invés disso possui modulação na amplitude, com a mesma frequência da modulação da fase aplicada ao pulso fundamental. Outro fato interessante a se notar é que, por meio da escolha adequada da amplitude de modulação ϕ pode-se obter contraste perfeito. Ou seja, produzir vales cuja intensidade mínima seja nula, uma vez que a função cosseno tem sua imagem limitada ao intervalo $(-1$ e $1)$. De fato, o valor de ϕ escolhido no experimento foi de 1,202, pois 2ϕ corresponde ao valor do primeiro zero da função de Bessel de ordem zero.

Figura 4. 1 - Simulação de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.5), com $2\phi=2,404$, $\Delta t \sim 140$ fs e $\psi=0$. Em linha preta, o envelope gaussiano. Em linha amarela, o produto da função de Bessel de ordem zero pela gaussiana.

4.2.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função cosseno

Em nosso experimento, utilizamos um cristal de KDP com espessura aproximada de $300 \mu m$, fabricado com corte específico para geração de segundo harmônico tipo I. Um desenho esquemático da montagem para a geração de segundo harmônico é mostrado na fig. 4.2 (a). Já a fig. 4.2 (b) mostra uma fotografia da montagem.

Uma lente converge o pulso formatado sobre o cristal de KDP onde o segundo harmônico é gerado. Observa-se tanto luz do pulso fundamental quanto luz do segundo harmônico sendo emitidas pelo cristal. Um filtro posicionado após o cristal bloqueia as frequências mais baixas da luz, permitindo a passagem somente do segundo harmônico. Este segundo harmônico é então colimado e direcionado para um espectrômetro portátil HR4000, da Ocean Optics, com resolução de $0,3$ nm na região do ultra violeta. O espectrômetro não está representado na ilustração da fig. 4.2 (a), mas pode ser observado no canto superior esquerdo da fig. 4.2 (b). A distância focal da primeira lente é de 15 cm.

Figura 4. 2 - (a) Ilustração da montagem para geração de segundo harmônico em cristal de KDP com pulsos ultracurtos formatados. (b) Fotografia da montagem.

A fig. 4.3 (a) mostra o espectro do pulso fundamental e um exemplo de fase cossenoidal aplicada. A fig. 4.3 (b) mostra o respectivo segundo harmônico gerado por este pulso formatado.

Figura 4. 3 - (a) Pulso fundamental e fase espectral aplicada e (b) segundo harmônico gerado sem modulação de fase (linha preta) e com modulação de fase (linha vermelha).

Nesta figura observamos claramente a modulação da amplitude do segundo harmônico. É possível observar também que a frequência central do segundo harmônico possui frequência nula, como era previsto, uma vez que nessa frequência o cosseno tem seu valor igual a um e, portanto, o argumento da função de Bessel se iguala ao valor do seu primeiro zero.

Para uma melhor análise do comportamento do segundo harmônico gerado, fizemos uma varredura na frequência do cosseno. O gráfico da fig. 4.4 (a) mostra a intensidade do segundo harmônico em função do comprimento de onda e em função do número total de períodos do cosseno suportado pelo LC SLM. Já a fig. 4.4 (b) mostra o segundo harmônico gerado para uma modulação cossenoidal com 60 períodos totais no SLM. Isto corresponde, em nosso experimento, a cerca de 20 períodos dentro da banda do pulso fundamental. Esta figura ainda mostra o segundo harmônico gerado sem modulação de fase. O gráfico da fig. 4.4 (b) corresponde a um corte vertical do gráfico de intensidades da fig. 4.4 (a) no valor de 60 períodos no SLM. Vemos pela fig. 4.4 (a) que, de fato, para um número muito pequeno de períodos da modulação, não há o comportamento esperado do segundo harmônico e a eq. (4.5) deixa de valer. Isso ocorre porque o produto $\Delta t \Delta \omega_1$ deixa de ser grande o suficiente para se desprezar os termos da eq. (4.4) que possuem funções de Bessel de ordem superior a zero.

Figura 4. 4 - (a) Gráfico de intensidades experimental do segundo harmônico em função do número de períodos do cosseno aplicado pelo SLM e (b) SH para modulação com 60 períodos no SLM (linha vermelha) comparado ao SH gerado sem modulação do pulso fundamental (linha preta).

Vemos também, por ambos os gráficos acima, que a modulação do pulso fundamental é, de fato, transferida para o segundo harmônico. Porém, ao contrário do esperado, a intensidade do segundo harmônico modulado não acompanha o envelope gaussiano gerado sem modulação do pulso fundamental caso o número de períodos da modulação, e consequentemente o produto $\Delta t \Delta \omega_1$, seja relativamente grande. Hacker *et al.* (31), argumentam que isso ocorre devido à resolução limitada do espectrômetro utilizado. Utilizamos um monocromador com resolução da ordem de 0,1 nm para confirmar os resultados. Mesmo com um espectrômetro de maior resolução, observamos que a intensidade do segundo harmônico diminui conforme a frequência da modulação aumenta, o que descarta a suposição do referido artigo.

Acreditamos que o efeito escada, discutido na Seção 3.5, é o responsável pela queda nas intensidades do segundo harmônico. Por esse efeito, a modulação aplicada ao pulso fundamental não pode ser aproximada por um cosseno. Tal fato decorre da redução do número de pixels do LC SLM, responsáveis por reproduzir um período da função, conforme a frequência da modulação aumenta. Deixando a modulação de ser cossenoidal, as eqs. (4.1) a (4.5) perdem a validade.

4.3 Geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno

Nesta seção apresentaremos a discussão analítica e os resultados da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por uma função seno.

4.3.1 Descrição analítica da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno

Nesta seção é discutida a geração de segundo harmônico a partir da modulação da fase espectral do pulso fundamental utilizando-se uma função senoidal. O procedimento é análogo ao discutido na seção 4.4.1.

O pulso fundamental pode ser escrito por uma equação análoga à eq. (4.1):

$$A_1(\omega_1) \sim \exp\left[-\left(\frac{\omega_1}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \exp[i\phi \sin(\Delta t \cdot \omega_1 + \psi)] \quad (4.6)$$

Podemos utilizar agora a relação (42-43):

$$\exp(ix \sin \theta) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(x) \cdot \exp(in\theta) \quad (4.7)$$

Substituindo então as eqs. (4.6) e (4.7) na eq. (A.28), encontramos:

$$A_2(\omega_2) \sim \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_2}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} b_n \quad (4.8)$$

com

$$b_n = J_n\left(2\phi \sin\left(\frac{1}{2}\Delta t \cdot \omega_2 + \psi\right)\right) \times \exp\left[i\frac{1}{2}n\pi - \frac{1}{8}(n\Delta t\Delta\omega_1)^2\right] \quad (4.9)$$

Usando novamente a aproximação de que o produto $\Delta t\Delta\omega_1$ seja suficientemente grande, podemos desprezar os termos da eq. (4.9) com n diferente de zero. Com isso, o segundo harmônico gerado pode ser escrito como:

$$A_2(\omega_2) \sim \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_2}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times J_0\left(2\phi \sin\left(\frac{1}{2}\Delta t \cdot \omega_2 + \psi\right)\right) \quad (4.10)$$

As mesmas considerações feitas na seção anterior podem ser feitas para essa nova modulação. A constante 2ϕ novamente foi escolhida para resultar em 2,404, e a constante de fase ψ foi escolhida para ser nula. A fig. 4.5 mostra uma simulação de espectro de segundo harmônico gerado pela eq. (4.10), com Δt igual a 140 fs:

Figura 4. 5 - Simulação de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.10), com $2\phi=2,404$, $\Delta t \sim 140$ fs e $\psi=0$. Em linha preta, o envelope gaussiano. Em linha vermelha, o produto da função de Bessel de ordem zero pela gaussiana.

Também aqui é esperado que a frequência central do segundo harmônico possua um máximo de intensidade e o espectro, como um todo, acompanhe o envelope gaussiano.

4.3.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por função seno

Utilizamos a mesma montagem experimental da seção anterior, com uma única mudança no experimento: a função utilizada para a modulação do pulso fundamental. Isso é feito por meio de um programa de computador na linguagem LabVIEW.

A fig. 4.6 (a) mostra o espectro do pulso fundamental e um exemplo de fase senoidal aplicada. A fig. 4.6 (b) mostra o segundo harmônico gerado respectivo a este pulso formatado. Nessas figuras, vemos que a frequência central possui um máximo de intensidade, concordando com a eq. (4.10), pois, nessa frequência, a função de modulação tem valor nulo e, consequentemente, o argumento da função de Bessel também. Quando seu argumento é nulo, a imagem da função de Bessel de ordem zero tem seu valor máximo igual a um. Nessa situação, ocorre um máximo da intensidade nessa frequência.

Figura 4.6 - Medida de segundo harmônico gerado a partir da eq. (4.10), com $2\phi=2,404$, $\Delta t \sim 140$ fs e $\psi=0$. (a) Pulso fundamental (vermelho) e fase espectral teoricamente escolhida (linha azul). (b) SH não modulado (linha preta) e modulado com função seno (linha vermelha).

Fizemos ainda uma varredura no número de períodos do seno modulador para analisar o segundo harmônico gerado, analogamente ao realizado na seção anterior. O gráfico da fig. 4.7 (a) mostra a intensidade do segundo harmônico em função do comprimento de onda e em função do número total de períodos de seno que o LC SLM comporta. Já a fig. 4.7 (b) mostra o segundo harmônico

gerado para uma modulação senoidal com 60 períodos totais no SLM (em linha vermelha), o que corresponde, em nosso experimento, a cerca de 20 períodos dentro da banda do pulso fundamental, além do segundo harmônico gerado sem modulação de fase (em linha preta).

Figura 4. 7 - (a)Gráfico de intensidades do SH em função do número de períodos do seno aplicado pelo SLM e (b) SH gerado para modulação com 60 períodos no SLM (linha vermelha) comparado ao SH gerado sem modulação do pulso fundamental (linha preta).

Novamente é possível observar que a modulação na fase espectral do pulso fundamental é transferida para o segundo harmônico. Assim como na situação anterior, o espectro do segundo harmônico modulado não acompanhou o envelope da gaussiana do segundo harmônico gerado sem modulação. A explicação para tal discrepância com relação à previsão teórica recai no efeito escada mais uma vez. A modulação espectral não pode ser uma função de variações rápidas, ou seja, deve ser uma função suave, pois em caso contrário a eq. (4.10) deixa de ser uma boa aproximação. Para comprovar essa suposição, fizemos um gráfico do contraste das franjas em função do número de períodos dentro da banda do pulso fundamental em torno de 400 nm. Este gráfico é apresentado na fig. 4.8. Aqui, o contraste η é definido por meio da relação:

$$\eta = \frac{I_{máx} - I_{mín}}{I_{máx} + I_{mín}} \quad (4.11)$$

sendo que $I_{máx}$ e $I_{mín}$ são a intensidade máxima dos picos e a intensidade mínima dos vales, respectivamente. Vemos que há uma limitação quanto à

intensidade dos picos ao se aumentar a frequência da modulação da fase espectral do pulso fundamental. Como veremos na seção seguinte, isso dificulta o processo de geração de segundo harmônico sintonizável por meio da metodologia por nós utilizada.

Figura 4. 8 - Contraste dos picos gerados no segundo harmônico modulado.

4.4 Geração de segundo harmônico sintonizável

Nesta seção apresentaremos a discussão analítica e os resultados da geração de segundo harmônico com pulsos ultracurtos com fase espectral modulada por uma soma de funções senoidais de frequências diferentes.

4.4.1 Descrição teórica da geração de segundo harmônico sintonizável

Para tornar possível a sintonização do segundo harmônico gerado, pode-se modular a fase espectral do pulso fundamental utilizando-se uma função constituída da soma de senos de frequências diferentes, mas escolhidas

convenientemente. Formatado o pulso, seu campo elétrico pode ser escrito como:

$$A_1(\omega_1) \propto \exp\left[-\left(\frac{\omega_1}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \exp\left[i\phi \sum_j \sin(n_j(\Delta t \cdot \omega_1 + \psi))\right] \quad (4.12)$$

onde n_j é um número real escolhido de acordo com a conveniência. A somatória no argumento da exponencial da eq. (4.12) pode ser reescrita como um produto de exponenciais. Cada uma dessas exponenciais pode ser substituída pela relação dada pela eq. (4.7). Ao substituirmos a eq. (4.12) na eq. (A.28), cada exponencial dará origem a uma função de Bessel de ordem zero no segundo harmônico, de forma que haverá um produtório contendo essas funções. Novamente, utilizamos a aproximação para o produto $\Delta t \Delta\omega_1$. O campo do segundo harmônico pode então ser escrito como:

$$A_2(\omega_2) \sim \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_1}{\Delta\omega_1}\right)^2\right] \times \prod_j J_0\left(2\phi \sin\left\{n_j\left(\frac{1}{2}\Delta t \cdot \omega_1 + \psi\right)\right\}\right) \quad (4.13)$$

Vemos que cada função de Bessel apresenta uma modulação espectral de frequência proporcional a $n_j \Delta t$. Com isso, o produto das funções de Bessel com diferentes frequências produz um máximo estreito cuja largura é determinada pela função de período mais curto. Uma vez que as funções J_0 possuem vários máximos, os valores de n_j podem ser escolhidos de forma que um máximo de uma das funções coincida com um zero de outra. Com isto se pode pronunciar somente o máximo central de todas elas. Ao se alterar o valor da constante de fase ψ , pode-se então sintonizar o segundo harmônico dentro da banda espectral gerada caso não houvesse modulação de fase do pulso fundamental. A fig. 4.9 (a) mostra um exemplo com três funções de Bessel e em (b) o segundo harmônico correspondente gerado. Δt foi ajustado para ser igual a 18 fs, e a fase ψ para ser igual a 0,31 rad.

Em teoria, pode-se produzir um segundo harmônico tão estreito quanto desejado, mas, a utilização de n_j relativamente grande faz com que a frequência

da modulação da função de Bessel respectiva se torne muito grande. Como vimos, isso leva ao problema do efeito escada, anteriormente discutido.

Para resolver esse empecilho, utilizamos um conjunto de n_j não necessariamente inteiros e relativamente pequenos. Desta forma, a largura do espectro gerado passa a ser determinado pelo produto das funções de Bessel utilizadas e apesar desta largura ser razoavelmente larga, da ordem de 1 nm, ainda assim é aceitável para várias aplicações em espectroscopia.

Figura 4. 9 - (a) Gráfico de três funções de Bessel, com $n_j=2$ (azul pontilhada), $n_j=4$ (vermelha tracejada) e $n_j=8$ (preta contínua). $\psi=0,31$ rad e $\Delta t=18$ fs. (b) Simulação do SH não modulado (linha preta) e o modulado com $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha vermelha).

A fig. 4.10 (a) mostra o produto de três funções de Bessel com argumentos dados pela eq. (4.13) com n_j iguais a 3, 3,75 e 4,5. Já a fig. 4.10 (b) mostra o espectro do SH com produto de funções de Bessel com n_j iguais a 3, 3,75, 4,5, 5,25, 6. Em ambas, Δt foi ajustado para 18 fs, e a fase ψ para 0.

Figura 4. 10 - (a) Gráfico de três funções de Bessel para $n_j=3$ (preta contínua), $n_j=3,75$ (vermelha tracejada) e $n_j=4,5$ (azul pontilhada). $\psi=0$ rad e $\Delta t=18$ fs. (b) Simulação do SH não modulado (linha preta) e o modulado com $n_j=3,3,75,4,5,5,25$ e 6.

4.4.2 Medidas e discussões da geração de segundo harmônico sintonizável

Programando o LC SLM para adicionar a fase teórica representada pela soma de cinco funções seno, com $n_j = 1, 2, 4, 8$ e 16 , fizemos uma varredura na fase ψ a fim de observar e comprovar a sintonização do segundo harmônico gerado. Isso é mostrado nas figs. 4.11.

Figura 4. 11 - Espectro do segundo harmônico não modulado (linha preta) e modulado por um produto constituído de funções de Bessel com $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha vermelha) para diferentes fases ψ . (a) $\psi = -0,50$ rad; (b) $\psi = -0,25$ rad; (c) $\psi = -0,13$ rad; (d) $\psi = 0,13$ rad; (e) $\psi = 0,38$ rad; (f) $\psi = -0,63$ rad.

Vemos que o espectro obtido possui uma linha estreita sintonizável, mas a amplitude cai para cerca de metade do esperado a partir do produto das funções de Bessel. Além disso, existem ainda alguns picos laterais em torno dos picos principais, como mostra as figs. 4.11. Como já mencionado, a modulação espectral deveria ser uma função suave, entretanto o tamanho finito dos elementos moduladores individuais produz a aproximação da função por uma sequência de degraus que limita o controle da fase adicionada ao pulso fundamental. Isto limita a eficiência da modulação do segundo harmônico.

Utilizando uma modulação com $n_j = 3, 3,75, 4,5, 5,25$ e 6, é possível atenuar essa limitação. Isto porque a fase espectral aplicada varia suficientemente devagar para que a modulação produzida pelo LC SLM seja uma boa aproximação da função teoricamente escolhida. De fato, podemos comparar na fig. 4.12 as fases teoricamente escolhidas, constituídas de uma soma de senos com períodos diferentes. Vemos claramente nessa figura que, utilizando valores de n_j relativamente grandes, a fase espectral passa a ter oscilações complicadas. Isto torna difícil a reprodução da função pelo LC SLM a fim de ser transferida para a fase espectral do pulso fundamental. Isso não acontece ao se utilizar valores de n_j relativamente menores, pois possuem variações mais suaves.

Figura 4. 12 - Comparação entre a fase espectral adicionada ao pulso fundamental utilizando $n_j=1,2,4,8$ e 16 (linha preta) e $n_j=3,3,75,4,5,5,25$ e 6 (linha vermelha). Δt é ajustado para 18 fs.

Aplicando a fase mais suave, é possível obter um segundo harmônico sintonizável cuja intensidade do pico não seja consideravelmente afetada. Assim a varredura na fase ψ pode reproduzir aproximadamente o espectro que seria gerado caso o pulso fundamental não propagasse pelo formatador. A fig. 4.13 mostra os espectros obtidos.

É possível citar ainda um pequeno decréscimo da intensidade dos picos, podendo este ser explicado pelo fato do contraste ser levemente inferior à unidade. Ainda assim, essa atenuação é aceitável para a utilização em várias aplicações.

Continua

Continuação

Figura 4. 13 - Sintonização experimental da GSH. SH não modulado (linha preta) e modulado utilizando-se $\eta_i=3,3,75,4,5,5,25$ e 6 (linha vermelha). (a) $\psi = -0,69$ rad; (b) $\psi = -0,57$ rad; (c) $\psi = -0,44$ rad; (d) $\psi = -0,31$ rad; (e) $\psi = -0,19$ rad; (f) $\psi = -0,06$ rad; (g) $\psi = 0,06$ rad; (h) $\psi = 0,19$ rad; (i) $\psi = 0,31$ rad; (j) $\psi = 0,44$ rad; (k) $\psi = 0,57$ rad; (l) $\psi = 0,69$ rad.

4.5 Medida de transmissão de uma amostra de EuCl_3

Para verificar a utilidade e validade da sintonização do segundo harmônico gerado, fizemos uma medida de transmissão em uma amostra de

cloreto de európio (EuCl_3) dissolvida em água (0,1329g em 5 ml de água). Para realizar essa medida, primeiramente formatamos a fase do pulso fundamental com uma soma de senos assim como foi apresentado na seção anterior. Então realizamos uma varredura na fase ψ de forma a obter vários espectros, tais como os da fig. 4.13. Um programa desenvolvido em LabVIEW detecta a posição de cada pico em cada espectro e armazena tanto sua intensidade como seu comprimento de onda, de forma a ser possível reproduzir o segundo harmônico não formatado por meio desses dados. Em seguida, a amostra é posicionada em frente ao feixe de segundo harmônico. Isso corresponderia a posicionar a amostra entre o filtro e a lente após o cristal de KDP representado na fig. 4.2. Uma nova varredura na fase ψ é realizada utilizando-se os mesmos parâmetros da varredura anterior. Novamente, o programa em LabVIEW armazena as intensidades e as posições de cada pico. Em seguida é realizada a operação de divisão das intensidades dos respectivos comprimentos de onda de cada uma das varreduras. Para efeito de comparação, realizamos a mesma medida de transmissão por meio de um espectrofotômetro. As figs. 4.14 (a) e (b) mostram a transmissão da amostra realizada por meio do nosso procedimento e a transmissão medida pelo espectrofotômetro, respectivamente.

Figura 4. 14 - Medidas de transmissão do cloreto de európio realizadas (a) através do nosso método e (b) utilizando espectrofotômetro do nosso grupo.

Por meio delas observamos ser a medida perfeitamente aceitável, sendo que o comprimento de onda de maior absorção (394 nm) coincide em ambos os gráficos. A resolução da nossa medida supera àquela realizada no

espectrofotômetro devido à maior resolução do espectrômetro portátil e do método de detecção de picos do programa escrito para LabVIEW.

Essa é uma medida que evidencia a validade e utilidade da técnica de sintonização da geração de segundo harmônico.

Conclusões e perspectivas

A formatação de pulsos ultracurtos utilizando LC SLM possui grande potencial para aplicações em óptica não linear. Apesar disso, algumas limitações existem devido à discretização da função a ser adicionada à fase espectral do pulso. O fato dos pixels do array de moduladores de cristal líquido possuírem um tamanho finito faz com que a função aplicada se torne efetivamente uma aproximação em degraus da função teoricamente escolhida. Tomadas as devidas precauções, encontram-se resultados que concordam com a teoria, sendo que as discordâncias provêm essencialmente de dificuldades experimentais.

Mostramos que, ao se modular a fase do pulso fundamental com funções seno ou cosseno, tal modulação em fase é transformada em modulação da amplitude do segundo harmônico. Mostramos que o contraste da modulação produzida no segundo harmônico cai conforme a frequência da função oscilante moduladora cresce.

Mostramos ainda que a modulação da fase dos pulsos baseada numa soma de funções senoidais produz uma banda estreita e sintonizável na região do UV, o que é requerido para microscopia por dois fótons. Ademais, ela não requer a utilização de algoritmos evolucionários de aprendizagem para sua implementação. Dois tipos de modulação podem ser empregadas: aquela com n_j 's inteiros e múltiplos produzem linhas estreitas, mas a amplitude é cerca de metade da amplitude esperada que é dada pelo segundo harmônico não modulado, enquanto que aquela com n_j 's reduzidos e relativamente próximos dá um SH mais intenso às custas do alargamento da linha.

Vimos ainda que a luz sintonizável obtida pode ser utilizada em medidas espectroscópicas por meio da obtenção de um espectro de transmissão na região do UV de uma amostra de cloreto de európio. Comparada à medida realizada em um espectrofotômetro, observamos boa concordância com o mínimo de transmissão em cerca de 394 nm. Observamos ainda uma melhor resolução do espectro obtido em relação à do espectrofotômetro que podemos atribuir à maior resolução do espectrômetro portátil HR4000 (cerca de 0,3 nm) e ao método de detecção de picos do programa elaborado em LabVIEW.

Como proposta de novas medidas utilizando o segundo harmônico sintonizável, podemos citar a experiência de fluorescência seletiva, na qual duas microestruturas são criadas com pequena separação espacial e dopadas com corantes diferentes. Esses corantes devem possuir a propriedade de que em um deles seja observada fluorescência quando a amostra é exposta a luz de comprimento de onda localizado próximo a uma das extremidades da banda do segundo harmônico gerado na ausência de modulação. O outro deve ter sua fluorescência observada quando sofre a incidência de luz de frequência próxima da outra extremidade da mesma banda. Tomando como exemplo a fig. 4.13, esses comprimentos de onda seriam aproximadamente 384 nm e 400 nm.

Referências

- 1 BOYD, R. W. **Nonlinear optics**. San Diego: Academic Press Inc., 1992

- 2 BALDWIN, G. C. **An introduction to nonlinear optics**. Boston: Plenum Press Inc., 1969

- 3 MAIMAN, T. H. Stimulated optical radiation in ruby. **Nature**, v.187, n. 4736, p. 493-494, 1960.

- 4 FRANKEN, P. A.; WEINREICH, G.; PETERS, A. E.; HILL, A. E. Generation of optical harmonics. **Physical Review Letters**, v. 7, n. 4, p. 118, 1961.

- 5 FRANKEN, P. A.; WARD, J. F. Optical harmonics and nonlinear phenomena. **Reviews of Modern Physics**, v. 35, n. 1, p. 23, 1963.

- 6 BASS, M.; FRANKEN, P. A.; HILL, A. E.; PETERS, C. W.; WINREICH. Optical mixing. **Physical Review Letters**, v. 8, n. 1, p. 18, 1962.

- 7 MAKER, P. D.; TERHUNE, R. W. Study of optical effects due to an induced polarization third order in electric field strength. **Physical Review**, v. 137, n. 3A, p. A801, 1965.

- 8 ECKHARDT, G.; HELLWARTH, R. W.; MCCLUNG, F. J.; SCHWARZ, S. E.; WEINER, D. Stimulated Raman scattering from organic liquids. **Physical Review Letters**, v. 9, n. 11, p. 455, 1962.

- 9 ZVEREV, G. M.; MIKHAILOVA, T. N.; PASHKOV, V. A.; SOLOV'EVA, N. M. Self-focusing of laser beams in ruby and leucosapphire crystals. **Jetp Letters-URSS**, v. 5, n. 11, p. 319, 1967.

- 10 MCCALL, S. L.; HAHN, E. L. Self-induced transparency by pulsed coherent light. **Physical Review Letters**, v. 18, n. 21, p. 908, 1967.

- 11 MCCALL, S. L.; HAHN, E. L. Self-induced transparency. **Physical Review**, v. 183, n. 2, p. 457, 1969.

12 BASS, M.; FRANKEN, P. A.; WARD, J. F.; WEINREICH, G. Optical rectification. **Physical Review Letters**, v. 9, n. 11, p. 446, 1962.

13 GIORDMAINE, J. A.; MILLER, R. C. Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO₃ at optical frequencies. **Physical Review Letters**, v. 14, n. 24, p. 973, 1965.

14 ZILIO, S. C. Regimes de operação de um laser. In: _____. **Óptica moderna: fundamentos e aplicações**. São Carlos: Instituto de física de São Carlos, Universidade de São Paulo, 2009. cap. 13, p. 255-268.

15 YARIV, A. **Quantum electronics**. New York: John Wiley & Sons, 1989.

16 ASAKI, M. T.; HUANG, C. P. Generation of 11-fs pulses from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. **Optics Letters**, v. 18, n. 12, p. 977-979, 1993.

17 SPENCE, D. E.; KEAN, P. N.; SIBBETT, W. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. **Optics Letters**, v. 16, n. 1, p. 42-44, 1991.

18 HILLEGAS, C. W.; TULL, J. X.; GOSWAMI, D.; STRICKLAND, D.; WARREN, W. S. Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses. **Optics Letters**, v. 19, n. 10, p. 737-739, 1994.

19 VERLUISE, F.; LAUDE, V.; CHENG, Z.; SPIELMANN, C.; TOURNOIS, P. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping. **Optics Letters**, v. 25, n. 8, p. 575-577, 2000.

20 SHIM, S. H.; STRASFELD, D. B.; FULMER, E. C.; ZANNI, M. T. Femtosecond pulse shaping directly in the mid-IR using acousto-optic modulation. **Optics Letters**, v. 31, n. 6, p. 838-840, 2006.

21 WEINER, A. M. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. **Review of Scientific Instruments**, v. 71, n. 5, p. 1929-1960, 2000.

22 WEINER, A. M. Ultrafast optical pulse shaping: a tutorial review. **Optics Communications**, v. 284, n. 15, p. 3669-3692, 2011.

- 23 GOSWAMI, D. Optical pulse shaping approaches to coherent control. **Physics Reports**, v. 374, n. 6, p. 385-481, 2003.
- 24 PASTIRK, I.; DELA CRUZ, J. M.; WALOWICZ, K. A.; LOZOVY, V. V.; DANTUS, M. Selective two-photon microscopy with shaped femtosecond pulses. **Optics Express**, v. 11, n. 14, p. 1695-1701, 2003.
- 25 MESHULACH, D.; SILBERBERG, Y. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. **Nature**, v. 396, n. 6708, p. 239-242, 1998.
- 26 WALOWICZ, K. A.; PASTIRK, I.; LOZOVY, V. V.; DANTUS, M. Multiphoton intrapulse interference. 1. control of multiphoton processes in condensed phases. **Journal of Physical Chemistry A**, v. 106, n. 41, p. 9369-9373, 2002.
- 27 WEINER, A. M.; LEAIRD, D. E.; PATEL, J. S.; WULLERT, J. R. Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. **Optics Letters**, v. 15, n. 6, p. 326-328, 1990.
- 28 ZEEK, E.; MAGINNIS, K.; BACKUS, S.; RUSSEK, U.; MURNANE, M.; MOUROU, G.; KAPTEYN, H.; VDOVIN, G. Pulse compression by use of deformable mirrors. **Optics Letters**, v. 24, n. 7, p. 493-495, 1999.
- 29 BRADY, D.; CHEN, A. G. S.; RODRIGUEZ, G. Volume holographic pulse shaping. **Optics Letters**, v. 17, n. 8, p. 610-612, 1992.
- 30 EMA, K.; SHIMIZU, F. Optical pulse shaping using a Fourier-transformed hologram. **Japanese Journal of Applied Physics part 2 – Letters**, v. 29, n. 4, p. L631-L633, 1990.
- 31 HACKER, M.; NETZ, R.; ROTH, M.; STOBRAWA, G.; FEURER, T.; SAUERBREY, R. Frequency doubling of phase-modulated, ultrashort laser pulses. **Applied Physics B**, v. 73, n. 3, p. 273-277, 2001.
- 32 COMSTOCK, M.; LOZOVY, V. V.; PASTIRK, I.; DANTUS, M. Multiphoton intrapulse interference 6; binary phase shaping. **Optics Express**, v. 12, n. 6, p. 1061-1066, 2004.

33 LOZOVY, V. V.; PASTIRK, I.; DANTUS, M. Multiphoton intrapulse interference. IV. ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation. **Optics Letters**, v. 29, n. 7, p. 775-777, 2004.

34 ZHENG, Z.; WEINER, A. M. Spectral phase correlation of coded femtosecond pulses by second-harmonic generation in thick nonlinear crystal. **Optics Letters**, v. 25, n. 13, p. 984-986, 2000.

35 FOWLES, G. R. **Introduction to modern optics**. New York: Dover Publications Inc., 1989.

36 REITZ, J. R.; MILFORD, F. J.; CHRISTY, R. W. **Foundations of electromagnetic theory**. Minnesota: Addison-Wesley Inc., 1979.

37 SHEN, Y. R. **The principles of nonlinear optics**. New York: John Wiley & Sons Inc., 1984.

38 DIELS, J. C.; RUDOLPH, W. **Ultrashort laser pulse phenomena: fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale**. San Diego: Academic Press Inc., 2006.

39 SILVA, D. L. **Otimização de pulsos ultracurtos via absorção de dois fótons**. 2005. 139 p. Dissertação (Mestrado em Ciências) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2005.

40 SCHUBERT, M.; WILHELMI, B. **Nonlinear optics and quantum electronics**. New York: John Wiley & Sons Inc., 1978.

41 BLOEMBERGEN, N. **Nonlinear optics**. Singapore: World Scientific Publishing Company, 1996.

42 BUTKOV, E. **Mathematical physics**. Minnesota: Addison-Wesley Inc. 1968.

43 ARFKEN, G. B.; WEBER, H. J. **Mathematical methods for physicists**. San Diego: Academic Press Inc, 2001.

Apêndice A - Demonstração da relação entre o espectro do pulso fundamental e do segundo harmônico.

A.1 Propagação de pulsos em meios lineares

Para um pulso propagando na direção z , podemos reescrever a eq. (1.13) na seguinte forma:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(1)}(z, t) \quad (\text{A.1})$$

com a polarização linear no domínio da frequência $P^{(1)}(\omega, z)$ sendo dada pela eq. (1.3). Fazendo-se a transformada de Fourier da eq. (A.1) e utilizando-se a eq. (1.3), obtemos a seguinte equação no domínio da frequência:

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \omega^2 \varepsilon(\omega) \mu_0 \right] \tilde{E}(z, \omega) = 0 \quad (\text{A.2})$$

sendo $\varepsilon(\omega)$ dado pela eq. (1.4). A solução geral para a equação acima como uma onda propagante na direção z pode ser escrita:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-ik(\omega)z} \quad (\text{A.3})$$

onde k foi introduzido no Capítulo 1 e é dado pela relação de dispersão da óptica linear, eq. (1.20). Expandimos então o vetor de onda $k(\omega)$ em torno de uma frequência portadora ω_L :

$$k(\omega) = k(\omega_L) + \delta k \quad (\text{A.4})$$

com

$$\delta k = \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_L} (\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right|_{\omega_L} (\omega - \omega_L)^2 + \dots \quad (\text{A.5})$$

Desta forma, podemos reescrever a eq. (A.3) da seguinte forma:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-ik_L z} e^{-i\delta k z} \quad (\text{A.6})$$

sendo $k_L = k(\omega_L)$. Na maioria dos casos de interesse, a amplitude de Fourier estará centrada em um vetor de onda médio k_L , e terá valores não desprezíveis somente em um intervalo Δk pequeno comparado a k_L . Aqui consideraremos a aproximação na qual o envelope do pulso varia lentamente com a coordenada espacial. Isto significa dizer que o envelope do pulso não sofre alterações significantes enquanto viaja por uma distância comparável ao comprimento de onda $\lambda_L = 2\pi/k_L$ (38). Fazendo-se a transformada inversa de Fourier da eq. (4.6), teremos:

$$\tilde{E}(t, z) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega, 0) \exp(-i\delta k z) \exp[i(\omega - \omega_L)t] \right\} \exp[i(\omega_L t - k_L z)] \quad (\text{A.7})$$

ou então

$$\tilde{E}(t, z) = \frac{1}{2} A(t, z) \exp[i(\omega_L t - k_L z)] \quad (\text{A.8})$$

sendo $A(z, t)$ o envelope variando lentamente no espaço e tempo dado pelo termo entre chaves na eq. (A.7). Para maior simplificação da equação de onda, desenvolveremos uma equação correspondente para $A(t, z)$ utilizando as propriedades do envelope lento. Somente alguns termos da expansão de $k(\omega)$ e $\varepsilon(\omega)$ serão considerados. Vamos então expandir $\varepsilon(\omega)$ em torno de ω_L de forma que a polarização de primeira ordem $\tilde{P}^{(1)}(\omega, z)$ possa ser escrita, a partir das eqs. (1.3) e (1.4), como:

$$\tilde{P}(\omega, z) = \left[\varepsilon(\omega_L) - \varepsilon_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n!} \frac{d^n \varepsilon}{d\omega^n} \Big|_{\omega_L} (\omega - \omega_L)^n \right] \tilde{E}(\omega, z) \quad (\text{A.9})$$

Em termos do envelope do pulso, $A(t, z)$, a equação acima pode ser escrita, aplicando-se a transformada de Fourier, como:

$$\begin{aligned} \tilde{P}(\omega, z) = & \frac{1}{2} \left\{ [\varepsilon(\omega_L) - \varepsilon_0] A(t, z) + \sum_{n=1}^{\infty} (-i)^n \frac{1}{n!} \frac{\partial^n \varepsilon}{\partial \omega^n} \Big|_{\omega_L} \frac{\partial^n A(t, z)}{\partial t^n} \right\} \times \\ & \times \exp[i(\omega_L t - k_L z)] \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Nessa equação, o termo entre as chaves define o envelope variando suavemente da polarização. Em seguida, substituímos as eqs. (A.7) e (A.10) na eq. (A.1). Depois disso, fazemos uma mudança de coordenadas para um sistema de coordenadas (η, ξ) que se move com velocidade igual à velocidade de grupo $v_g = \left(\frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_L} \right)^{-1}$ (35), que é a transformação padrão para um referencial retardado:

$$\xi = z ; \quad \eta = t - \frac{z}{v_g} \quad (\text{A.11})$$

e

$$\frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} ; \quad \frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \eta} \quad (\text{A.12})$$

Esse é o referencial apropriado pois, apesar de uma onda monocromática propagar com velocidade de fase dada pela eq. (1.21), o pacote de onda constituído pela soma das várias ondas de frequências diferentes propaga com a velocidade de grupo (35). Fazendo as substituições, encontramos (1,38):

$$\frac{\partial A}{\partial \xi} - \frac{i}{2} k_L'' \frac{\partial^2 A}{\partial \eta^2} + D = - \frac{i}{2k_L} \frac{\partial}{\partial \xi} \left(\frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{2}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} \right) A \quad (\text{4.13})$$

sendo

$$D = -\frac{i\mu_0}{2k_L} \sum_{n=3}^{\infty} \frac{(-i)^n}{n!} \left[\omega_L^2 \frac{\partial^n \varepsilon}{\partial \omega^n} \Big|_{\omega_L} - 2n \frac{\partial^{n-1} \varepsilon}{\partial \omega^{n-1}} \Big|_{\omega_L} + n(n-1) \frac{\partial^{n-2} \varepsilon}{\partial \omega^{n-2}} \Big|_{\omega_L} \right] \frac{\partial^n A}{\partial \eta^n} \quad (\text{A.14})$$

o fator que contém a dispersão de ordens mais altas e é obtido por meio da segunda derivada da polarização definida pela eq. (A.10). Os índices dos três termos resultantes foram redefinidos de forma que a derivada de ordem n do envelope do campo possa ser colocada em evidência. A segunda derivada de k , k''_L , resulta em:

$$\begin{aligned} k''_L &= \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega_L} = -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} \Big|_{\omega_L} = \\ &= \frac{1}{2k_L} \left[\frac{2}{v_g^2} - 2\mu_0 \varepsilon(\omega_L) - 4\omega_L \mu_0 \frac{\partial \varepsilon}{\partial \omega} \Big|_{\omega_L} - \omega_L^2 \mu_0 \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega_L} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Este parâmetro define a dispersão da velocidade de grupo (*group velocity dispersion* – GVD). Ele também pode ser relacionado com a derivada da velocidade de grupo v_g com relação ao comprimento de onda, λ , por (38):

$$\frac{dv_g}{d\lambda} = \frac{\omega^2 v_g}{2\pi c} \frac{d^2 k}{d\omega^2} \quad (\text{A.16})$$

Até aqui, nenhuma aproximação foi explicitamente utilizada. A partir daqui, propriedades da variação lenta do envelope podem ser utilizadas para simplificar a eq. (A.13). Matematicamente, as condições necessárias para o envelope variar lentamente, tanto espacial quanto temporalmente, são dadas por (38):

$$\left| \frac{\partial}{\partial z} A(t, z) \right| \ll k_L |A(t, z)| \quad (\text{A.17})$$

$$\left| \frac{\partial}{\partial t} A(t, z) \right| \ll \omega_L |A(t, z)| \quad (\text{A.18})$$

Ao se utilizar essas condições em nossa situação, no devido referencial, obtém-se:

$$\left| \frac{1}{k_L} \left(\frac{\partial}{\partial \xi} - \frac{2}{v_g} \frac{\partial}{\partial \eta} \right) A \right| = \left| \frac{1}{k_L} \left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial t} \right) A \right| \ll |A| \quad (\text{A.19})$$

Com isso, o lado direito da eq (A.13) pode ser desprezado. Esse procedimento reduz a equação de onda a uma equação com derivadas de primeira ordem com relação ao espaço.

A.2 Geração de segundo harmônico tipo I com pulsos ultracurtos e baixa eficiência de conversão

Se o pulso fundamental é um pulso ultracurto e, portanto, contenha apenas alguns ciclos ópticos, é possível que a condição (A.18) não seja satisfeita e não possamos desprezar a derivada temporal da eq. (A.19). Para verificar isto, podemos fazer a aproximação $\frac{\partial A}{\partial t} \approx \frac{A}{\tau_p}$, sendo τ_p a duração temporal do pulso. Com isso, a desigualdade a ser satisfeita será:

$$\frac{1}{\omega_L \tau_p} |A(t, z)| \ll |A(t, z)| \quad (\text{A.20})$$

Para a região do visível, um pulso de femtossegundos resulta num produto $\omega_L \tau_p \sim 1$, de forma que a condição não é satisfeita.

Para um meio dielétrico com não linearidade de segunda ordem, a propagação do campo dentro do material será constituída do campo fundamental (para o qual utilizaremos o subíndice $i = 1$) e do segundo harmônico (que será denotado pelo subíndice $i = 2$). A equação de ondas a ser satisfeita pelo campo

é semelhante à eq. (A.13) utilizando-se somente a simplificação imposta pela eq. (A.17), com a adição de uma polarização não linear de segunda ordem como termo de fonte. Retornando-se para as coordenadas (z, t) , essa equação pode ser escrita:

$$\left[\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_1} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{ik''_1}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) A_1 + D_1 \right] \exp[i(\omega_1 t - k_1 z)] + \quad (A.21)$$

$$+ \frac{k_2}{k_1} \left[\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_2} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{ik''_2}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) A_2 + D_2 \right] \exp[i(\omega_2 t - k_2 z)] + c.c. = i \frac{\mu_0}{k_1} \frac{\partial^2 P^{(2)}}{\partial t^2}$$

com a polarização de segunda ordem podendo ser escrita como (38):

$$P^{(2)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \frac{1}{4} \{ A_1 \exp[i(\omega_1 t - k_1 z)] + A_2 \exp[i(\omega_2 t - k_2 z)] \}^2 \quad (A.22)$$

Estamos utilizando o referencial do laboratório (z, t) porque em geral não há um referencial no qual ambos os pulsos estejam em repouso, decorrentes das velocidades de grupo v_1 e v_2 não serem necessariamente iguais. Utilizando a polarização de segunda ordem da eq. (A.22) e substituindo na eq. (A.21), após simplificações, obtemos duas equações diferenciais para o pulso fundamental e para o segundo harmônico, respectivamente:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_1} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{ik''_1}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) A_1 + D_1 = -i \chi^{(2)} \frac{\omega_1^2}{4c^2 k_1} A_1^* A_2 \exp(i\Delta k z) \quad (A.23)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_2} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{ik''_2}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) A_2 + D_2 = -i \chi^{(2)} \frac{\omega_1^2}{4c^2 k_2} A_1^2 \exp(-i\Delta k z) \quad (A.24)$$

sendo $\Delta k = 2k_1(\omega_1) - k_2(\omega_2)$ o termo determinante do não casamento de fase entre o fundamental e o segundo harmônico que foi introduzido no Capítulo 1. Neste capítulo, atestamos que uma maneira de se obter o casamento de fases, ou seja, $\Delta k = 0$, consiste em garantir que os índices de refração para o pulso fundamental e de segundo harmônico sejam iguais. Isso pode ser obtido em

cristais, pelo fato dos os vetores de onda k_1 e k_2 serem funções da orientação do vetor de onda com relação aos eixos cristalográficos. (1,40-41). Devemos notar que os vetores de onda são variáveis em um pulso ultracurto, pois este é composto de várias frequências. Isso já está levado em conta pelas derivadas no tempo nas eqs. (A.23) e (A.24).

Consideremos agora que a taxa de conversão do pulso fundamental para o segundo harmônico seja baixa, isto é, consideremos que o pulso fundamental não sofra perdas consideráveis ao passar pelo cristal. Isso pode ocorrer para incidência de pequena intensidade ou em meios não lineares com susceptibilidade não linear reduzida ou com comprimento reduzido, como é o nosso caso. Assumindo-se ainda as aproximações $k''_1 = k''_2 = D_1 = D_2 \approx 0$, encontramos pela eq. (A.23) que o pulso fundamental é uma função $A_1(t, z) = A_1(t - z/v_1)$. Isso indica que o pulso, em um referencial que se move com a velocidade de grupo v_1 , propaga sem distorção. Substituindo essa amplitude na eq. (A.24) e integrando-a em relação a z , obtemos a seguinte expressão para o segundo harmônico na saída do cristal, em $z = L$:

$$A_2\left(t - \frac{L}{v_2}, L\right) = -i \frac{\chi^{(2)} \omega_2^2}{4c^2 k_2} \int_0^L A_1^2 \left[t - \frac{z}{v_2} + \left(\frac{1}{v_2} - \frac{1}{v_1} \right) z \right] \exp(-i\Delta k z) dz \quad (\text{A.25})$$

Essa equação pode ser escrita, no domínio da frequência, por meio do teorema da correlação, como:

$$A_2(\omega, L) = -i \frac{\chi^{(2)} \omega_2^2}{4c^2 k_2} \int A_1(\omega') A_1(\omega - \omega') d\omega' \int_0^L \exp \left\{ i \left[\left(\frac{1}{v_2} - \frac{1}{v_1} \right) \omega - \Delta k \right] z \right\} dz \quad (\text{A.26})$$

Resolvendo a integral em z , obtemos:

$$A_2(\omega, L) = -i \frac{\chi^{(2)} \omega_2^2}{4c^2 k_2} \sin c \left\{ \left[\left(\frac{1}{v_2} - \frac{1}{v_1} \right) \omega - \Delta k \right] \frac{L}{2} \right\} \int A_1(\omega') A_1(\omega - \omega') d\omega' \quad (\text{A.27})$$

Ou, mais resumidamente (31):

$$A_2(\omega) \propto \int A_1(\omega') A_1(\omega - \omega') d\omega' \quad (\text{A.28})$$

A partir dessa expressão podemos prever o formato do segundo harmônico gerado para um dado pulso fundamental $A_1(\omega)$. Uma vez que podemos modular a fase espectral do pulso fundamental, como discutido no Capítulo 3, podemos gerar o segundo harmônico com diversos padrões de amplitude espectral, de acordo com a eq. (A.28). A natureza da modulação da fase espectral do pulso fundamental é que determina se a modulação na fase e a fase espectral serão conservadas no processo de duplicação da frequência. Por exemplo, modulação linear e quadrática da fase espectral aplicada a pulsos gaussianos são transferidos para o segundo harmônico sem influenciar no formato do espectro gerado (31). Em contrapartida, vários outros exemplos de modulação da fase espectral produzem um segundo harmônico com formato espectral diferente como, por exemplo, a modulação cúbica e a senoidal (31). Nesses casos, a informação sobre o formato temporal é transferido da fase espectral do pulso fundamental para a amplitude espectral do segundo harmônico. Com isso, é possível se produzir modulações em amplitude no espectro do segundo harmônico, até mesmo sem transferir nenhuma fase espectral, puramente por meio da modulação da fase espectral do pulso fundamental.