INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

LASERS DE FREQUÊNCIA ÚNICA DE Nd:YLF E Nd:YVO₄ NA
REGIÃO DO VERMELHO

FABÍOLA DE ALMEIDA CAMARGO

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau
de Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Materiais.

Orientador:
Dr. Niklaus Ursus Wetter

SÃO PAULO
2010

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

LASERS DE FREQUÊNCIA ÚNICA DE Nd:YLF E Nd:YVO₄ NA
REGIÃO DO VERMELHO

FABÍOLA DE ALMEIDA CAMARGO

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau
de Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Materiais.

Orientador:
Dr. Niklaus Ursus Wetter

SÃO PAULO
2010

Dedico este trabalho à minha mãe, Vera, à minha irmã, Fernanda e ao meu pai, Lucio, que foram e sempre serão a base da minha vida. Mesmo longe meu coração estará sempre com vocês.

Billy

Agradecimentos

Ao Niklaus Ursus Wetter pela orientação, pela amizade e paciência durante esses 7 anos de convívio. Apesar de todas as nossas diferenças certamente nos lembraremos para sempre um do outro de uma maneira muito especial.

Je souhaiterai remercier spécialement Jean-Jacques Zondy, qui m'a reçu dans son laboratoire les bras ouverts. Je le remercie infiniment d'avoir cru en moi et en mon travail ainsi que de m'avoir encouragée dans toutes mes décisions. Il m'a enseigné beaucoup plus que de la physique et de l'optique non linéaire, il m'a appris comment nous pouvions faire notre travail et combien nous pouvions l'aimer. Et bien plus que tout cela, il m'a montré qu'un responsable pouvait être plus qu'un professeur qui vous guide, mais également un ami.

À toda a minha família que sempre me apoio e acreditou em mim.

Ao Jonas pelas inúmeras e pacientes discussões e sua tão importante presença sempre que precisei (e quando não precisei também).

Aos colegas do laboratório, Gustavo e Renato pelo convívio sempre agradável, pelo apoio e ajuda.

Aos amigos do CLA com quem passei ótimos momentos e que tornaram meus dias no CLA muito mais agradáveis, Ilka, Fabio, Fernando, Gerson, Horácio, Ivanildo, Melissa, Renata, Renato e Thiago.

Às minhas queridas amigas Ana Paula Aquino e Bianca Berberian que estiveram sempre ao meu lado em todos os momentos importantes da minha vida. Não sei o que seria de mim sem vocês duas.

Às minhas eternas amigas, Adriana Bobrow, Adriana Lage, Leila Sponton e Renata Duarte.

Ao meu querido amigo Gabriel Zarnauskas, mesmo estando longe você estará sempre presente na minha vida.

À Verônica pela paciência eterna comigo e por me apresentar um novo mundo que me trouxe tantas alegrias e paz em momentos difíceis.

Às amigas do Angra por me receber de braços abertos, apesar das nossas diferenças, especialmente à Fernanda.

Aos meus queridos amigos dos bons tempos em Paris, Jane, Lucas e Rodrigo. Espero que nossa amizade dure por muitas viagens ainda.

Ao Dr. Ricardo Elgul Samad, pela ajuda nas discussões sobre o meu trabalho.

Je remercie le Laboratoire National de métrologie et d'Essais pour le financement de mes travaux de thèse lors de mon séjour en France.

À Fapesp pelo projeto temático que financiou parte dos meus estudos e pela minha bolsa de doutorado.

Aos técnicos e funcionário do CLA.

Je tiens à remercier également l'Institut National de Métrologie pour m'avoir accueillie lors de ces 6 mois passés en France.

À todas as pessoas que direta ou indiretamente contribuíram para a realização deste trabalho.

LASERS DE FREQUÊNCIA ÚNICA DE Nd:YLF E Nd:YVO₄ NA REGIÃO DO VERMELHO

Fabíola de Almeida Camargo

Resumo

Lasers de estado sólido sintonizáveis com uma estreita largura de linha de emissão na região do vermelho são uma alternativa conveniente aos lasers de corante para aplicações em espectroscopia de alta resolução. Nesse trabalho, foram investigados lasers contínuos de Nd:YLiF₄ e Nd:YVO₄ operando em frequência única na região de 1,32 - 1,34 μ m, assim como a geração de segundo harmônico (GSH) desses lasers usando cristais de BiB₃O₆ (BiBO) e KTiOPO₄ com inversão periódica de domínios (ppKTP), para a obtenção da emissão no vermelho (0,65 - 0,67 μ m).

Utilizando um laser de Nd:YVO₄ operando em frequência única em uma configuração em anel com um cristal não linear BiBO do tipo I, demonstrou-se o recorde de 680mW no vermelho em 671,1nm, sem a utilização de nenhum elemento seletivo. Uma sintonia em todo o ganho (~ 4 nm) foi obtida através da inserção de um etalon com filme refletor ($R = 40\%$) e com 100 μ m de espessura, o que reduziu a potência de saída no vermelho para 380mW no comprimento de onda de maior ganho (671,15 nm). Em 1342nm foi demonstrada uma potência de saída de 1,5W em frequência única quando utilizado um espelho de saída com transmissão de 2%.

Foi demonstrado ainda uma ótima eficiência de conversão de segundo harmônico em um laser em anel de Nd:YLF na polarização π ($\lambda = 1321,5$ nm) quando usando um cristal de ppKTP. Este laser forneceu 1,4W em frequência única no vermelho em 660,5 nm. Essa potência é a máxima que pode ser extraída desse laser no segundo harmônico e no fundamental quando utilizado um espelho com transmissão ótima. Utilizando um etalon com filme refletor ($R = 25\%$), o laser pôde ser sintonizado em $\Delta\lambda \sim 1,6$ nm.

SINGLE FREQUENCY Nd:YLF AND Nd:YVO₄ LASER IN THE RED EMISSION

Fabíola de Almeida Camargo

Abstract

All solid-state continuous-wave (cw) narrow emission linewidth and tunable red lasers are convenient alternative sources to bulky and expensive dye-lasers for high-precision laser spectroscopy. Single-frequency operation of diode-pumped Nd:YLiF₄ and Nd:YVO₄ cw ring lasers were investigated in the 1.32 - 1.34 μ m range, together with their intracavity second-harmonic generation (SHG) to the red spectral range (0.65 - 0.67 μ m) using either BiB₃O₆ (BiBO) or periodically-poled KTiOPO₄ (ppKTP) crystals.

We report on such a single-end diode-pumped Nd:YVO₄ unidirectional red ring laser containing a type-I cut BiBO nonlinear crystal, yielding a record of 680 mW of single-longitudinal mode (SLM) red output power at 671.1nm without any intra-cavity etalon. For smooth SLM wavelength tuning over the full gain bandwidth (~ 4 nm), a partially-coated ($R = 40\%$) 100 μ m-thin etalon was found necessary, reducing the maximum SLM power (at 671.15 nm) to 380 mW. At 1342.5nm and with a $T = 2\%$ transmission output coupler, the laser provided an optimal 1.5W of single-frequency power.

We demonstrate also optimal intracavity SHG of a Nd:YLF ring laser in the π -polarization ($\lambda = 1321.5$ nm) using a ppKTP. The laser yielded 1.4 W of single-frequency red power at 660.5 nm, as much as the maximum fundamental power that can be extracted from the resonator using an optimal output coupler. With a partially-coated ($R = 25\%$) thin etalon, the laser was tunable over $\Delta\lambda \sim 1.6$ nm.

Sumário

1	Introdução	1
2	Óptica não linear	4
2.1	Interação da radiação com meios não lineares	4
2.2	Geração de segundo harmônico	6
2.2.1	Relações de simetria no tensor de susceptibilidade não-linear	7
2.2.2	Geração de segundo harmônico de uma onda plana	8
2.2.3	Valor efetivo do d_{ijk}	13
2.2.4	Geração de segundo harmônicos de feixes gaussianos focados	14
2.2.5	Limitação na geração do segundo harmônico	21
2.2.6	Potência máxima gerada no segundo harmônico	22
3	Laser de neodímio na região do vermelho	28
3.1	Matrizes laser	28
3.2	Obtenção de lasers na região do vermelho	31
3.3	Lasers operando em frequência única	33
4	Procedimento experimental	35
4.1	Projeto Nd:YVO ₄	35
4.2	Projeto Nd:YLF	38
4.2.1	Caracterização do cristal de ppKTP	38
4.2.2	Ressonador de Nd:YLF	40
5	Resultados e discussões	42
5.1	Projeto Nd:YVO ₄	42
5.2	Projeto Nd:YLF	49
5.2.1	Caracterização do cristal de ppKTP	49

5.2.2	Ressonador de Nd:YLF	52
6	Conclusões	57
	Referências Bibliográficas	59

Lista de Figuras

2.1	Potência relativa no segundo harmônico em função do casamento de fase. . .	9
2.2	Elipsoides dos índices de refração do comprimento de onda fundamental (linha pontilhada) e do segundo harmônico (linha cheia) em um cristal uniaxial negativo.	11
2.3	Esquema da geração de segundo harmônico de um feixe gaussiano focalizado dentro de um cristal não linear do tipo I (ooe).	15
2.4	Simulação da eficiência de conversão do SH em função do d_{eff} para um cristal do tipo I ooe com comprimento igual a 1 cm e <i>walk-off</i> igual a 1°	20
2.5	Simulação da eficiência de conversão do SH em função do ângulo de <i>walk-off</i> para um cristal do tipo I ooe com comprimento igual a 1 cm e com um $d_{\text{eff}} = 2\text{pm/V}$	20
2.6	Simulação da eficiência de conversão do SH em função comprimento de um cristal do tipo I ooe para um <i>walk-off</i> igual a zero e um $d_{\text{eff}} = 2\text{pm/V}$	21
2.7	Comportamento da potência no segundo harmônico em função de $\sqrt{y}$	27
3.1	a) Simulação da eficiência de conversão do BiBO utilizado nesse projeto em função do raio do feixe laser dentro do cristal. b) Simulação da eficiência de conversão do ppKTP utilizado nesse projeto em função do raio do feixe laser dentro do cristal.	33
4.1	Ressonador em anel com o cristal não linear intracavidade utilizado para a obtenção do comprimento de onda de 670,97nm.	37
4.2	Configuração de geração de segundo harmônico extracavidade para a caracterização do ppKTP.	39
4.3	Foto do laser de Nd:YLF com o cristal ppKTP intracavidade.	41

5.1	Potência de saída no infravermelho em função da potência incidente no cristal quando utilizada uma cavidade ressonante linear pequena e uma configuração em anel.	43
5.2	Potência de saída no infravermelho versus potência absorvida pelo cristal para espelhos com diferentes transmissões.	43
5.3	Potência de saída no infravermelho quando utilizado o espelho com transmissão de 2% e os dois etalons diferentes, um sem filme refletor e outro com filme refletor ($R = 40\%$).	44
5.4	Espectro dos modos longitudinais oscilando no ressonador obtido através de um Fabry-Perot: (a) Modos longitudinais ressonantes quando utilizado um etalon intracavidade e (b) sem etalon intracavidade. A varredura feita pelo Fabry-Perot é mostrada em preto.	45
5.5	Curva de sintonização do Nd:YVO_4 utilizando os dois diferentes etalons, um com $100\mu\text{m}$ de espessura e com filme refletor e outro com $200\mu\text{m}$ de espessura e sem filme refletor.	46
5.6	Potência de saída no vermelho quando utilizado o BiBO em função da potência absorvida pelo Nd:YVO_4 , sem e com o etalon.	47
5.7	Potência de saída do vermelho e do infravermelho, com o laser operando em frequência única, em função do comprimento de onda para uma potência absorvida de 9,5W.	48
5.8	Potência de saída no vermelho normalizada em função da temperatura do ppKTP para três diferentes raios de feixes para o comprimento de onda de 1322,12nm.	49
5.9	Temperatura de operação ótima do ppKTP para o casamente de fase em função do comprimento de onda do laser incidente no cristal.	50
5.10	Potência obtida no SH em função do quadrado da potência no fundamental incidente no cristal não linear para a determinação da eficiência de conversão do ppKTP quando utilizado um feixe focalizado com uma cintura de $41\mu\text{m}$	51
5.11	Potência do laser operando em frequência única no vermelho em função da potência absorvida do bombeamento quando utilizado um etalon com refletividade de 25%.	53
5.12	Medida da qualidade de feixe do vermelho.	53

5.13	Espectro obtido com o Fabry-Perot. Em (a) é mostrado a operação em multi- modo sem a presença do etalon intracavidade. Em (b) operação em frequência única obtida com um etalon com refletividade de 25%. Em (c), o regime tem- poral consiste em um trem de pulsos curtos que é registrado no Fabry-Perot de maneira contínua.	54
5.14	Potência do laser operando em frequência única no vermelho em função do comprimento de onda do laser e da temperatura de operação do cristal não linear.	55
5.15	Temperatura de operação do ppKTP extracavidade e intracavidade para o casamento de fase.	56
6.1	Espectro de transmissão do filtro utilizado para bloquear a emissão em $1,3\mu\text{m}$ fornecido pelo fabricante (Newport Corp.).	58

Lista de Tabelas

3.1	Características espectroscópicas, térmicas e mecânicas de alguns cristais lasers [1–5].	29
3.2	Características dos cristais não lineares utilizados nesse trabalho. As larguras de aceitação foram calculadas através do modelo de onda plana [6, 7].	32

Lista de siglas e abreviaturas

LIDAR - *Light Detection and Ranging*

He-Ne - Hélio-Neônio

GSH - Geração de segundo harmônico

Nd - neodímio

ppKTP - *periodically poled* KTP

SH - Segundo harmônico

ESA - *Excited-state absorption*

Capítulo 1

Introdução

Os lasers na região do visível têm diversas aplicações médicas, estéticas, industriais, ambientais (LIDAR - *Light detection and Ranging*) e em física básica, como espectroscopia de alta resolução, resfriamento e aprisionamento de átomos. Para a utilização nas últimas aplicações citadas, é necessário um laser estável, sintonizável, operando em frequência única e com alta resolução espectral, ou seja, que tenha uma largura de linha estreita (da ordem de dezenas de MHz ou menor, dependendo da transição a ser estudada) devido às linhas bem definidas das transições atômicas em gases.

Para a obtenção de uma emissão na região do visível, diferentes tipos de laser têm sido desenvolvidos. Entre eles, os lasers de gás [8, 9], os lasers de corante [10, 11] e lasers de estado sólido, como lasers de semicondutor [12], lasers de conversão ascendente [13, 14] e geração de segundo harmônico de um laser de estado sólido emitindo no infravermelho. Os lasers de gás costumam ser grandes, como o caso do laser de Argônio, ou apresentam baixa potência de saída, como os lasers de He-Ne. Os lasers de corantes muitas vezes utilizam como meio ativo materiais tóxicos e que precisam ser substituídos regulamentemente. Como uma possibilidade para a substituição desses lasers na região do visível, os lasers de estado sólido têm se destacado como uma solução compacta e eficiente. Para as aplicações em espectroscopia atômica de alta resolução, a geração de segundo harmônico (GSH) de lasers de estado sólido bombeados por diodo tem se mostrado uma alternativa com os requisitos necessários, como alta resolução espectral e baixo ruído. Além disso, este tipo de laser pode ser sintonizável, possibilitando a emissão no comprimento de onda da transição a ser estudada no átomo.

Enquanto a obtenção de vários watts de lasers em frequência única na região do verde já está bem estabelecida [15, 16], o mesmo não acontece na região do vermelho devido à seção

de choque da transição ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{13/2}$ ser 5 vezes menor que da transição ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{11/2}$ no caso do YVO_4 , e quase 10 vezes menor no caso da emissão na polarização π do YLF. Mesmo com uma seção de choque de emissão na polarização π 5 vezes maior no Nd:YVO_4 que no Nd:YLF , a forte lente térmica e o tempo de decaimento do nível superior laser, 3 vezes menor no vanadato que no fluoreto, fazem com que a eficiência dos dois lasers seja comparável.

Nessa região existem vários comprimentos de onda de interesse para espectroscopia e aprisionamento de átomos. Por exemplo, um laser de Nd:YLF na polarização σ operando no comprimento de onda fundamental pode ser usado para o estudo da transição de dois fótons $2S - 3S$ do hidrogênio em 1312,6nm [17], enquanto que a GSH dessa transição casa com a transição ${}^1S_0 - {}^3P_1$ do cálcio em 657nm [18]. A polarização π desse mesmo cristal, quando sintonizada para 1322,4nm e dobrada em frequência para 661,2nm, pode ser utilizada para obter a estreita transição de dois fótons ${}^2S_{1/2} - {}^2D_{5/2}$ para o resfriamento de átomos neutros de prata [19]. Além disso, para o estudo das transições das linhas ${}^2S_{1/2} - {}^2P_{1/2,3/2}$ dos isótopos ${}^7\text{Li}$ e ${}^6\text{Li}$, é necessário um laser emitindo em 670,97nm [20], comprimento de onda obtido através da GSH da emissão de um Nd:YVO_4 , centrada em 1342nm.

A maioria dos trabalhos relatados na região do vermelho visam alta potência e eficiência, sem grande preocupação com a resolução espectral do laser. Por esse motivo, utilizam cavidades em L ou Z nas quais é possível obter um pequeno foco dentro do cristal não linear, aumentando a eficiência da GSH [21–24]. Esses tipos de cavidade ressonante geram uma onda estacionária, o que dificulta a sua operação em uma única frequência devido ao *hole burning* espacial [25]. Para evitar esse tipo de problema a melhor configuração é uma cavidade ressonante em anel operando unidirecionalmente. Nessa configuração as ondas eletromagnéticas dentro da cavidade laser são viajantes, evitando assim problemas com *hole burning* espacial, e tornando o laser mais estável na operação em frequência única. Porém para que esses lasers operem unidirecionalmente e que possam ser sintonizáveis, é necessária a utilização de elementos intracavidade, o que faz com que essas configurações sejam menos eficientes e apresentem menor potência que cavidades lineares, em L ou em Z.

A motivação deste trabalho foi a construção de fontes para espectroscopia atômica de alta resolução da prata e do lítio. Para isso foram desenvolvidos dois lasers sintonizáveis operando em frequência única de maneira estável na região do vermelho. Para que o laser fosse estável e com alta potência operando em frequência única, optamos por utilizar cavidades ressonantes em anel com um etalon intracavidade para a sintonização. Para a obtenção do vermelho foi utilizada a técnica de GSH intracavidade do comprimento de onda fundamental de um

laser de Nd:YVO₄ e de um laser de Nd:YLF. Como cristais não lineares foram utilizados um BiB₃O₆ (BiBO) para o laser de Nd:YVO₄ e um KTP com inversão periódica de domínio (*periodically poled* KTP - ppKTP) para o laser de Nd:YLF.

Nessa tese, serão abordados os conceitos de óptica não linear e geração de segundo harmônico, capítulo 2. Nesse capítulo, é também analisada a eficiência de conversão do segundo harmônico para uma onda plana e para feixes focalizados. A seguir, é mostrada a potência máxima no segundo harmônico obtida em um laser de quatro níveis. No capítulo 3 são apresentados os melhores resultados na literatura de lasers operando na região de 1,3 μ m e na região do vermelho. Nos capítulos 4 e 5 são apresentados os procedimentos experimentais utilizados e os resultados obtidos, respectivamente. Por fim as conclusões do trabalho são apresentadas no último capítulo.

O objetivo principal desse trabalho foi estudar a geração de segundo harmônico intracavidade de lasers de estado sólido bombeados por diodo, operando em frequência única, para a obtenção de altas potências na região do vermelho.

Caracterizou-se a eficiência da GSH e obteve-se alta eficiência na geração de frequência no vermelho de maneira estável e operando em frequência única utilizando matrizes de YLF e YVO₄ dopadas com neodímio.

Capítulo 2

Óptica não linear

A interação da radiação com a matéria pode ocorrer de diferentes maneiras dependendo da intensidade incidente e do tipo do material no qual essa radiação se propaga. Para baixas intensidades, ou seja, quando não há modificação no material em que a luz se propaga, a interação se dá apenas quando a frequência incidente no material é ressonante com uma transição do material. Porém, quando a intensidade se torna suficientemente alta, ou seja, da magnitude do campo elétrico que prende os elétrons ao átomo (da ordem de 10^9 V/cm), esse campo propagante causa uma resposta não linear dentro de determinados materiais causando então uma polarização não linear. A óptica não linear é a parte da óptica que trata da propagação da luz em um meio em que a resposta ao campo elétrico não é mais linear.

2.1 Interação da radiação com meios não lineares

Quando um campo elétrico $\mathbf{E}$ se propaga em um material dielétrico criam-se dipolos elétricos nesse material que induzem uma polarização $\mathbf{P}$. Essa polarização pode ser escrita pela soma da polarização linear $\mathbf{P}_L$ e da polarização não linear $\mathbf{P}_{NL}$ como mostrado a seguir [26]

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E} \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E} + \dots = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} \quad (2.1.1)$$

onde χ é o tensor de susceptibilidade elétrica do material, sendo $\chi^{(1)}$ a susceptibilidade linear enquanto $\chi^{(2)}$ e $\chi^{(3)}$ são as susceptibilidades de segunda e terceira ordem, respectivamente. Pode-se verificar então que há apenas uma componente na polarização que é linear com o campo elétrico, que ocorre para campos com baixa intensidade. Para intensidades mais altas temos uma polarização não linear onde ocorre uma interação entre os campos elétricos

dentro do meio. A susceptibilidade de segunda ordem é responsável pelos efeitos de geração de segundo harmônico, soma e diferença de frequências enquanto a de terceira ordem gera o efeito Kerr e o efeito Raman, entre outros. Uma vez que no geral $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \gg \chi^{(3)}$, os estudos dos efeitos não lineares só puderam ser verificados experimentalmente a partir da década de 60 com a invenção do laser que forneceu uma fonte coerente com alta intensidade. Nesse trabalho, iremos estudar mais detalhadamente apenas sobre a geração de segundo harmônico, que é o efeito utilizado nesta tese.

A interação dessa onda elétrica com um meio não linear pode ser descrita através da seguinte equação de onda, deduzida das equações de Maxwell [26]

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.1.2)$$

onde $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ é o campo elétrico da radiação, $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ é a polarização induzida por esse campo, c é a velocidade da luz no vácuo e ϵ_0 é a permissividade elétrica no vácuo.

Uma vez que temos que $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$ com $\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = 0$ a equação 2.1.2 pode ser escrita como [26]

$$-\nabla^2 \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.1.3)$$

Para melhor compreender a propagação de um campo elétrico em um meio não linear vamos simplificar considerando que essa onda oscila em uma frequência bem determinada ω_n e que se propaga apenas ao longo da direção z . O seu campo elétrico pode ser descrito da seguinte maneira

$$E_n(z, t) = A_n(z) \exp(ik_n z - i\omega_n t) \quad (2.1.4)$$

onde $A_n(z)$ é a amplitude do campo elétrico, k_n é o vetor de onda e o índice n indica a frequência de oscilação da onda, por exemplo, no caso da geração do segundo harmônico $n = 2\omega$. Temos então que a segunda derivada do campo elétrico em função de z é dada por

$$\frac{\partial^2 E_n(z, t)}{\partial z^2} = 2ik_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \frac{\partial A_n(z)}{\partial z} + e^{i(k_n z - \omega_n t)} \frac{\partial^2 A_n(z)}{\partial z^2} - k_n^2 A_n(z) e^{i(k_n z - \omega_n t)} \quad (2.1.5)$$

Utilizando a aproximação do envelope lentamente variável onde [26]

$$k \frac{dA_n(z)}{dz} \gg \frac{d^2 A_n(z)}{dz^2} \quad (2.1.6)$$

Lembrando que estamos considerando um campo elétrico se propagando apenas em z e, portanto, as derivadas desse campo em relação a x e y são nulas, podemos reescrever a equação de onda 2.1.3 da seguinte maneira

$$\left[-2ik_n \frac{dA_n(z)}{dz} + k_n^2 A_n(z) - \frac{1}{c^2} \omega_n^2 A_n(z) \right] e^{i(k_n z - \omega_n t)} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{d^2 \mathbf{P}}{dt^2} \quad (2.1.7)$$

Uma vez que $k_n = \omega_n/c$ temos então que a variação na amplitude do campo elétrico é dado por

$$\frac{dA_n(z)}{dz} = \frac{1}{2i\epsilon_0 c^2 k_n} e^{i(k_n z - \omega_n t)} \frac{d^2 \mathbf{P}}{dt^2} \quad (2.1.8)$$

Vemos então que a amplitude do campo elétrico vai depender da polarização gerada pelos campos elétricos incidentes no meio.

2.2 Geração de segundo harmônico

De maneira genérica, pode-se dizer que a polarização não linear de segunda ordem gerada em um material onde se propagam duas ondas com frequências ω_m e ω_n , nas coordenadas i , j e k , é dada por

$$\mathbf{P}_i(\omega_r) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{nm} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_r = \omega_m + \omega_n, \omega_m, \omega_n) [\mathbf{E}_j(\omega_n) \times \mathbf{E}_k(\omega_m)] \quad (2.2.1)$$

A GSH é um caso específico onde as ondas que geram a polarização dentro de um material tem a mesma frequência ω e os dipolos criados irradiam em uma frequência 2ω . Nesse caso a polarização é dada por

$$\mathbf{P}(2\omega) = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega, \omega, \omega) \mathbf{E}(\omega)^2 \quad (2.2.2)$$

O tensor de susceptibilidade $\chi_{ijk}^{(2)}$ é também conhecido como tensor d e dado por [27]

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (2.2.3)$$

Esse tensor tem 27 componentes, porém levando em conta questões de simetria do sistema,

pode-se ter diversos elementos nulos nesse tensor.

2.2.1 Relações de simetria no tensor de susceptibilidade não-linear

A primeira relação de simetria pode ser vista da equação 2.2.1, e se dá pelo fato de que a ordem do produto dos campos j e k não é importante. De tal maneira que $E_j(\omega_n)E_k(\omega_m)$ gera a mesma componente i na polarização que $E_k(\omega_m)E_j(\omega_n)$. Assim, a susceptibilidade não-linear reflete essa simetria de tal modo que

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_r, \omega_m, \omega_n) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_r, \omega_n, \omega_m) = etc \quad (2.2.4)$$

É importante ressaltar que a simetria só é mantida se trocadas as frequências juntamente com os índices i , j e k . Isso porque os produtos $E_j(\omega_n)E_k(\omega_m)$ e $E_k(\omega_n)E_j(\omega_m)$ podem mudar a polarização não linear. Portanto, de modo geral, se mudarmos os índices ijk a susceptibilidade será a mesma desde que seja mudada também os índices rmn associado a cada índice. Essa regra de permutação permite que o tensor de $3 \times 3 \times 3$ seja escrito com uma matriz de 3×6 da seguinte maneira $d_{ijk} \rightarrow d_{il}$ onde

$i : x$	1	$jk : xx$	1
y	2	yy	2
z	3	zz	3
		$yz = zy$	4
		$xz = zx$	5
		$xy = yx$	6

(2.2.5)

Assim podemos escrever, $d_{xyz} = d_{xzy} = d_{14}$. Utilização a equação 2.2.3 a susceptibilidade pode ser escrita como $\chi_{ijk}^{(2)} = 2d_{il}$.

Outra simetria pode ser demonstrada quando a susceptibilidade é calculada através da mecânica quântica [26]

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_r, \omega_m, \omega_n) = \chi_{kij}^{(2)*}(-\omega_n, \omega_r, -\omega_m) = etc \quad (2.2.6)$$

Essa simetria é consequência do fato de o campo elétrico possui um valor real, e portanto tem-se que $\mathbf{E}^{(-\omega_m)} = \mathbf{E}^{(\omega_m)*}$ [28]. Essa expressão é dada para as susceptibilidades que são

complexas. Isso se dá quando uma das frequências ou a combinação das mesmas é próxima da frequência de ressonância do material. Porém, quando não há uma frequência próxima a frequência natural de ressonância do material podemos dizer que as perdas são nulas e a susceptibilidade é uma grandeza real e, portanto, a susceptibilidade é igual ao seu complexo conjugado. Nesse caso, podemos então escrever a equação 2.2.6 como

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_r, \omega_m, \omega_n) = \chi_{kij}^{(2)}(-\omega_n, \omega_r, -\omega_m) = etc \quad (2.2.7)$$

Se as frequências envolvidas forem menores que a menor frequência de ressonância do meio a susceptibilidade é praticamente independente da frequência e os índices podem ser permutados, sem que haja a permutação das frequências. Essa simetria é conhecida como simetria de Kleinman e pode ser escrita da seguinte maneira

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_r, \omega_m, \omega_n) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_r, \omega_m, \omega_n) = etc \quad (2.2.8)$$

Outras simplificações no tensor de susceptibilidade não linear podem ocorrer baseadas na simetria do cristal não linear utilizado. As referências [27, 29] apresentam a matriz d para diversas classes de simetria em cristais uniaxiais e biaxiais.

2.2.2 Geração de segundo harmônico de uma onda plana

Como mostrado anteriormente, o campo elétrico de uma onda plana se propagando na direção z com frequência ω é dado por

$$\mathbf{E}_\omega(z, t) = A_\omega(z) e^{i(k_\omega z - \omega t)} \quad (2.2.9)$$

Através da equação 2.2.2 temos então que a polarização gerada por esse campo elétrico dentro de um material é dada por

$$\mathbf{P}_{2\omega} = \epsilon_0 \chi^{(2)} A_\omega^2 e^{i(2k_\omega z - 2\omega t)} \quad (2.2.10)$$

Substituindo a equação 2.2.10 em 2.1.8 pode-se mostrar que a potência no segundo harmônico (SH) é dada por [30]

$$\frac{P_{2\omega}}{P_\omega^2} = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 l^2}{\epsilon_0 c^3 n_\omega^2 n_{2\omega} A} \text{sinc}^2(\Delta k l / 2) \quad (2.2.11)$$

onde d_{eff} é o coeficiente não linear efetivo do cristal não linear, n_ω e $n_{2\omega}$ são os índices de refração do cristal para os comprimentos de onda fundamental e do segundo harmônico (SH), respectivamente, A é a área do feixe laser dentro do cristal não linear com comprimento l , $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega$ e $\text{sinc}(\Delta kl/2) = \sin(\Delta kl/2)/(\Delta kl/2)$. Através da equação 2.2.11 pode-se verificar que a potência obtida no SH depende das características do cristal não linear utilizado, como o d_{eff} , n_ω , $n_{2\omega}$ e l , das características do laser, como a potência no fundamental e sua área dentro do cristal não linear e de Δk . A dependência com Δk da potência no SH é dada através da função $\text{sinc}^2(\Delta kl/2)$. O comportamento dessa função pode ser visto na Figura 2.1.

Figura 2.1: Potência relativa no segundo harmônico em função do casamento de fase.

Através da Figura 2.1 pode-se verificar que a potência máxima no SH é obtida quando $\Delta k = 0$, ou seja, quando houver o casamento de fase entre os campos elétricos do primeiro e do segundo harmônicos. Quando temos que $\Delta k > 0$ ou $\Delta k < 0$ a potência no SH cai rapidamente. Esse decréscimo se dá devido ao fato de nessas situações a potência gerada no segundo harmônico começar a retornar para o comprimento de onda fundamental.

Para obter-se esse casamento de fase é necessário que

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega = \frac{2\pi n_{2\omega}}{\lambda_\omega/2} - 4\frac{\pi n_\omega}{\lambda_\omega} = n_{2\omega} - n_\omega = 0 \quad (2.2.12)$$

Portanto, é necessário que o índice de refração do cristal não linear seja igual para o comprimento de onda fundamental e para o SH. Isto pode ser obtido através da utilização de cristais birrefringentes, ou seja, um cristal onde cada polarização tem um índice de refração

diferente. Na prática, existem duas maneiras de se obter o casamento de fase entre as ondas, o casamento de fase por ângulo ou o casamento de fase por temperatura.

Casamento de fase por ângulo

Em um cristal birrefringente o feixe com uma polarização perpendicular ao eixo óptico do cristal, conhecido como feixe ordinário, é independente da direção de propagação, enquanto o feixe com polarização paralela ao eixo óptico do cristal, conhecido como feixe extraordinário, tem um índice de refração que depende do ângulo de incidência em relação ao eixo óptico da seguinte maneira [29]

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (2.2.13)$$

onde n_e é o índice de refração da polarização extraordinária, que é obtido quando tivermos $\theta = 0^\circ$, e n_o é o índice de refração da polarização ordinária, Figura 2.2.

Existem dois tipos de interações dentro do cristal não linear relacionados com a polarização do feixe de entrada. O primeiro tipo é quando as polarizações das ondas eletromagnéticas no fundamental são paralelas entre si, o que chamamos de interação do tipo I, e o segundo tipo é quando as polarizações são perpendiculares entre si, o que chamamos de interação do tipo II. A interação do tipo I e tipo II depende também da birrefringência do cristal não linear utilizado como mostrado a seguir

TIPO I	$E_o^\omega + E_o^\omega \rightarrow E_e^{2\omega}$	birrefringência negativa	$n_o > n_e$
	$E_e^\omega + E_e^\omega \rightarrow E_o^{2\omega}$	birrefringência positiva	$n_e > n_o$
TIPO II	$E_e^\omega + E_o^\omega \rightarrow E_e^{2\omega}$	birrefringência negativa	$n_o > n_e$
	$E_e^\omega + E_o^\omega \rightarrow E_o^{2\omega}$	birrefringência positiva	$n_e > n_o$

Pode-se então determinar o ângulo θ_m , conhecido como ângulo do casamento de fase, para os dois tipos de interação (tipo I e tipo II), Figura 2.2, no qual o casamento de fase será obtido. Para um cristal uniaxial negativo ($n_o > n_e$) temos

$$\begin{aligned} n_e^{2\omega}(\theta_m) &= n_o^\omega & \text{tipo I} \\ n_e^{2\omega}(\theta_m) &= \frac{1}{2}[n_e^\omega(\theta_m) + n_o^\omega] & \text{tipo II} \end{aligned} \quad (2.2.14)$$

Para um cristal do tipo I, substituindo a equação 2.2.14 em 2.2.13, tem-se então que o ângulo do casamento de fase é dado por

Figura 2.2: Elipsóides dos índices de refração do comprimento de onda fundamental (linha pontilhada) e do segundo harmônico (linha cheia) em um cristal uniaxial negativo.

$$\sin^2 \theta_m = \frac{(n_o^\omega)^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}{(n_e^{2\omega})^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}} \quad (2.2.15)$$

A partir da determinação desse ângulo para a obtenção do casamento de fase pode-se então calcular o valor do d_{eff} do cristal não linear para aquela determinada geração de segundo harmônico (ver seção 2.2.3).

Uma vez que no casamento de fase por ângulo o feixe não se propaga paralelamente ao eixo óptico, a direção de propagação do fluxo de energia (vetor de Poynting) das ondas eletromagnéticas polarizadas extraordinariamente sofrem um pequeno desvio em relação a direção de propagação do vetor de onda. Este efeito é conhecido como *walk-off*, e este pequeno ângulo ρ é dado por [31]

$$\tan \rho = \frac{n_o^\omega}{2} \left[\frac{1}{(n_e^{2\omega})^2} - \frac{1}{(n_o^{2\omega})^2} \right] \sin 2\theta \quad (2.2.16)$$

O *walk-off* limita o comprimento do cristal não linear a ser utilizado assim como a eficiência na geração do segundo harmônico. Além disso, essa característica do casamento de fase por ângulo faz com que o feixe laser de saída no SH seja elíptico.

Esse casamento de fase através do ângulo de entrada do feixe laser dentro do cristal não linear, quando $\theta \neq 90^\circ$ ou $\theta \neq 0^\circ$, é conhecido como casamento de fase crítico.

Casamento de fase por temperatura

Em alguns casos, o casamento de fase pode ser obtido com um feixe entrando paralelamente ao eixo do cristal, ou seja, $\theta = 0, 90^\circ$ através de uma mudança na temperatura do cristal. Nesse caso, pode-se verificar através da equação 2.2.16 que a geração do segundo harmônico não vai ser mais limitada pelo *walk-off*. Esse tipo de casamento de fase é conhecido como casamento de fase não crítico. Apesar de ser preferível ao casamento de fase crítico, muitas vezes não é possível se obter uma temperatura na qual o cristal pode ser aquecido de maneira que os índices de refração sejam iguais para os dois comprimentos de onda envolvidos. Por isso, em muitos casos são utilizados cristais não lineares com casamento de fase por ângulo.

Quase casamento de fase

Como uma solução para as limitações geradas pelo casamento de fase crítico (através do ângulo), o casamento de fase não crítico e quase casamento de fase vem sendo estudados para a obtenção de maiores potências no SH. Para isso, diversas técnicas têm sido desenvolvidas para a obtenção de cristais com inversão periódica de domínio (*periodically poled*) [32–34]. Na GSH com uma onda plana, a potência do SH é proporcional ao $\text{sinc}^2(\Delta kl/2)$ e, portanto o período dessa oscilação é dado quando $\Delta kl/2 = \pi$. Pode-se então definir o comprimento de coerência para a GSH como sendo o comprimento necessário para a obtenção da potência máxima no SH

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k} \quad (2.2.17)$$

Para comprimentos maiores que l_c a potência gerada no SH começa novamente a ser transferida para o comprimento de onda fundamental. Na prática, o comprimento de coerência é limitado pelas larguras de aceitação espectral e/ou de temperatura para o casamento de fase, uma vez que o feixe incidente é em geral focalizado e apresenta uma certa divergência dentro do cristal não linear.

Nos cristais com inversão periódica de domínio, o coeficiente não linear do cristal é modulado a cada comprimento de coerência tendo o sinal do coeficiente não linear invertido a cada $l = l_c$ [35]. Dessa forma, a fase relativa entre as duas ondas é invertida quando a GSH se torna máxima e, portanto a relação de fase entre as duas ondas pode ser tal que a potência no SH vai continuar aumentando ao longo do cristal não linear. O período do cristal não linear pode ser escrito da seguinte maneira

$$\Lambda = 2l_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{1}{\left(\frac{2n_{2\omega}(\lambda)}{\lambda_{2\omega}} - 4\frac{n_{\omega}(\lambda)}{\lambda_{\omega}}\right)} \quad (2.2.18)$$

Uma das dificuldades em se fazer esses cristais com inversão de domínio é a necessidade de uma boa determinação da equação e dos coeficientes de Sellmeier para cada cristal possibilitando a obtenção correta dos valores do índice de refração do cristal para cada comprimento de onda.

A condição de casamento de fase com cristais não lineares com o inversão de domínio é dada então por

$$\Delta k(\theta, T) = k_{2\omega}(T) - 2k_{\omega}(\theta, T) - \frac{2\pi}{\Lambda(\lambda, T)} \quad (2.2.19)$$

2.2.3 Valor efetivo do d_{ijk}

Para que haja o casamento de fase na GSH, o cristal não linear é cortado em um determinado ângulo permitindo que a propagação da onda fundamental dentro do cristal esteja em fase com a onda gerada no segundo harmônico. Para cada caso específico de GSH é determinado o ângulo correto em que o cristal tem que ser cortado para que haja o casamento de fase. Assim, para cada geometria de corte do cristal não linear o coeficiente d é dado por um diferente valor, conhecido como o coeficiente não linear efetivo d_{eff} .

Utilizando a notação apresentada na seção 2.2.1 podemos escrever o tensor d_{ijk} da seguinte maneira

$$d_{il} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \quad (2.2.20)$$

Dependendo da simetria do cristal muitas das componentes do tensor d_{ijk} são nulas.

Portanto, para cada corte de cristal pode-se determinar o d_{eff} daquele cristal específico através do tensor d e dos ângulos do feixe em relação ao eixo óptico do cristal. Por exemplo, para um BiBO tipo I (ooe) cortado no plano XZ o coeficiente não linear efetivo é dado por [6]

$$d_{\text{eff}}^{\text{ooe}}(\theta, \phi = 0^\circ) = -d_{12}\cos(\theta) \quad (2.2.21)$$

Enquanto que um BiBO tipo I (eeo) tem um d_{eff} para a geração de segundo harmônico de 610nm a $3\mu\text{m}$ dado por

$$d_{\text{eff}}^{\text{eeo}}(\theta, \phi = 90^\circ) = d_{25} \sin(2\theta) \quad (2.2.22)$$

Portanto, o d_{eff} de um cristal é a soma dos termos não nulos do tensor d e depende do corte do cristal para cada tipo de geração de segundo hamônico.

2.2.4 Geração de segundo harmônicos de feixes gaussianos focados

No geral, as teorias apresentadas de geração de segundo harmônico levam em consideração a interação de um feixe com um meio não linear utilizando-se a aproximação de onda plana, como mostrado na seção 2.2.2. Porém, os efeitos não lineares dependem de uma alta intensidade, e portanto, na prática são utilizados feixes focalizados para a obtenção de altas intensidades dentro do meio não linear.

A teoria da interação de um feixe focalizado em um cristal não linear do tipo I com casamento de fase crítico foi primeiramente demonstrada na década de 60 por D. A. Kleinman e G. D. Boyd *et al* [31, 36, 37]. Nesse tipo de interação as ondas eletromagnéticas no comprimento de onda fundamental entram com a mesma polarização dentro do meio fundamental gerando um feixe no SH com polarização ortogonal. Os cristais do tipo I são nomeados de duas maneiras diferentes dependendo da polarização das ondas incidentes e geradas. Quando a polarização das ondas no fundamental é ordinária gerando ondas no SH com polarização extraordinária, denota-se esse cristal como tipo I ooe. Analogamente, temos os cristais do tipo I eeo, tipo II ooe e tipo II oeo. Como apenas as ondas com polarização extraordinária sofrem um desvio ρ em relação ao eixo de propagação, no caso de cristais do tipo I, as ondas no fundamental vão se propagar paralelamente. Porém quando se utiliza um cristal não linear do tipo II as polarizações das ondas fundamentais são ortogonais gerando um segundo harmônico polarizado extraordinariamente (oeo) ou ordinariamente (eeo). Nesse caso, as ondas no fundamental sofrem um pequeno desvio entre si. Na década de 90, J.-J. Zondy desenvolveu uma teoria para a geração do segundo harmônico de feixes gaussianos focalizados com um cristal não linear do tipo II (oeo ou eeo) [38].

Vamos considerar aqui um cristal não linear uniaxial do tipo I com interação do tipo ooe, onde apenas as ondas do segundo harmônico sofrem um desvio devido ao *walk-off*, Figura

2.3. Essa teoria pode ser aplicada a cristais uniaxiais positivos ($n_e > n_o$) ou negativos ($n_o > n_e$), como demonstrado por G. D. Boyd [37].

Considerando uma onda eletromagnética que se propaga na direção z e passa por um cristal não linear com comprimento l , o campo elétrico desse feixe gaussiano com cintura w_0 é dado por [37]

$$\mathbf{E}_\omega(x', y', z') = \frac{A_\omega}{1 + i\tau'} \exp\left(-\frac{x'^2 + y'^2}{w_0^2(1 + i\tau')}\right) \exp\left(-\frac{1}{2}\alpha_\omega z' + ik_\omega z'\right) \quad (2.2.23)$$

onde A_ω é a amplitude do campo elétrico e α_m é coeficiente de absorção do comprimento de onda fundamental pelo cristal não linear no qual está onda se propaga. A dependência no tempo dada por $\exp(i\omega t)$ foi omitida. As coordenadas dentro do cristal não linear são identificadas com o sobrescrito $'$. As seguintes definições foram utilizadas

$$\tau' = \frac{z' - f}{z_R} \quad \text{onde} \quad f = \eta l \quad (0 \leq \eta \leq 1) \quad (2.2.24)$$

onde z_R é o comprimento de Rayleigh dado por $k_\omega w_0^2/2$. Utilizando essa notação é possível verificar que essa teoria leva em consideração um feixe focalizado em qualquer ponto do cristal não linear. A variável η nos diz a quão longe o foco do laser está da borda do cristal em que esse feixe entra.

Figura 2.3: Esquema da geração de segundo harmônico de um feixe gaussiano focalizado dentro de um cristal não linear do tipo I (ooe).

A polarização gerada por um campo elétrico em um meio não linear já foi mostrada como sendo

$$\mathbf{P}_{2\omega}(x', y', z') = 2\epsilon_0 d_{\text{eff}} \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega \quad (2.2.25)$$

Substituindo o campo elétrico dado pela equação 2.2.23, temos que a polarização gerada por um feixe gaussiano focalizado é dada por

$$\mathbf{P}_{2\omega}(x', y', z') = 2\epsilon_0 d_{\text{eff}} \frac{A_\omega^2}{(1 + i\tau')^2} \exp\left(-2\frac{x'^2 + y'^2}{w_0^2(1 + i\tau')}\right) \exp(-\alpha_\omega z' + 2ik_\omega z') \quad (2.2.26)$$

Através das equações de Maxwell foi demonstrado na seção 2.1 a variação na amplitude de um campo elétrico do segundo harmônico. Pode-se então utilizar esse formalismo para determinar a variação na amplitude do segundo harmônico gerado em um determinado ponto $M(x', y', z')$ dentro do cristal não linear. Substituindo então a polarização de um feixe focalizado na equação 2.1.8 temos

$$\begin{aligned} \frac{dA_{2\omega}}{dz} = \frac{idA_\omega^2}{kc^2(1 + i\tau')^2} \exp\left(-\frac{1}{2}\alpha_{2\omega}(l - z') - \alpha_\omega z' + 2ik_\omega z'\right) \\ \exp(-ik_{2\omega} z') \exp\left(-2\frac{x'^2 + y'^2}{w_0^2(1 + i\tau')}\right) \end{aligned} \quad (2.2.27)$$

Nessa caso, levamos em conta também a possibilidade da absorção do segundo harmônico pelo cristal não linear.

Cada ponto $M(x', y', z')$ dentro do cristal pode ser considerado como um dipolo emitindo com frequência igual a 2ω . Se utilizarmos apenas geometria podemos determinar qual será a amplitude do campo elétrico do segundo harmônico em um ponto $M(x, y, z)$ fora do cristal gerado por esse dipolo elétrico dentro do cristal. Esse método é conhecido como tratamento heurístico. Pode-se então definir as coordenadas de um ponto M fora do cristal em função das coordenadas dentro do cristal e o ângulo ρ , lembrado que apenas o feixe com polarização extraordinário, nesse caso, o segundo harmônico, sofre um desvio com ângulo igual ρ . Temos então que

$$\begin{aligned} x' &= x - \rho(z - z') & z < l \\ x' &= x - \rho(l - z') & z > l \\ y' &= y & 0 \leq z' \leq l \end{aligned} \quad (2.2.28)$$

Podemos então determinar a amplitude do campo elétrico do segundo harmônico fora do cristal substituindo as equações 2.2.28 em 2.2.27 e intergrando ao longo de todo o comprimento do cristal.

$$A_{2\omega}(M)_{z \gg l} = \frac{idA_{\omega}^2 \exp(-\alpha_{2\omega}l/2)}{kc^2(1+i\tau)} \int_0^l dz' \frac{\exp(-i\Delta kz' - \alpha z')}{(1+i\tau')} \exp\left(-2\frac{(x - \rho(l-z'))^2 + y^2}{w_0^2(1+i\tau)}\right) \quad (2.2.29)$$

onde $\alpha = \alpha_{\omega} + \alpha_{2\omega}/2$. Kleinman *et al* demonstraram que a utilização do método heurístico no tratamento do campo elétrico nos fornece os mesmos resultados que o tratamento formal através da função de Green [39]. Esse fato justifica a simplificação no tratamento através da utilização das equações 2.2.28. Da equação 2.2.29 podemos reescrever o seguinte termo como

$$\frac{1}{w_0^2(1+i\tau)} = \frac{\tau^2(1-i\tau)}{\tau^2 w_0^2(1+\tau^2)} \quad (2.2.30)$$

Para o campo distante onde $\tau \rightarrow \infty$ temos que $\frac{\tau^2}{1+\tau^2} \approx 1 - \tau^{-2} + \tau^{-4} \approx 1$, e portanto podemos aproximar a equação 2.2.30 por

$$\frac{1}{w_0^2(1+i\tau)} \approx \frac{1-i\tau}{w_0^2\tau^2} \quad (2.2.31)$$

Definindo duas novas variáveis u e v como sendo

$$u = \frac{x - \rho(l-f)}{w_0\tau} \quad \text{e} \quad v = \frac{y}{w_0\tau} \quad (2.2.32)$$

Podemos então reescrever os seguintes termos da equação 2.2.29 utilizando 2.2.32 da seguinte maneira

$$\frac{(x - \rho(l-z'))^2}{w_0^2(1+i\tau)} \approx u^2(1-i\tau) - 2iu\beta\tau' \quad \text{e} \quad \frac{y^2}{w_0^2(1-i\tau)} \approx v^2(1-i\tau) \quad (2.2.33)$$

onde $\beta = \rho z_R/w_0$. Substituindo 2.2.33 em 2.2.29 temos

$$A_{2\omega}(M)_{z \gg l} = \frac{idA_{\omega}^2 \exp(-\alpha_{2\omega}l/2)}{k_{2\omega}c^2(1+i\tau)} \int_0^l dz' \left[\frac{\exp(-i\Delta k z' - \alpha z')}{(1+i\tau')} \exp[-2(u^2 + v^2)(1-i\tau) + 4iu\beta\tau'] \right] \quad (2.2.34)$$

onde $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega}$. Fazendo uma mudança de variável de z' para τ' lembrando que $\tau' = (z' - f)/z_R$ e utilizando novamente a aproximação para um campo distante de $\frac{1}{1+i\tau} = \frac{1-i\tau}{\tau^2}$ temos que a primeira ordem da aproximação em τ pode ser escrita da seguinte maneira

$$A_{2\omega}(u, v, \tau) = \frac{dA_{\omega}^2 \exp(-\alpha_{2\omega}l/2 - \alpha f)}{\tau k_{2\omega}c^2(1+i\tau)} \exp[-2(u^2 + v^2)] \exp[2i\tau(u^2 + v^2)] H(\alpha, l, f, \sigma) \\ H(\alpha, l, f, \sigma) = \int_{-f/z_R}^{(l-f)/z_R} d\tau' \left[\frac{\exp(-i\sigma\tau' - i\Delta k f - \alpha\tau'z_R)}{(1+i\tau')} \right] \quad (2.2.35)$$

onde $\sigma = \Delta k z_R + 4u\beta$. A potência no segundo harmônico pode então ser determinada através da integração da intensidade $I_{2\omega} = \epsilon_0 c n_{2\omega} |A_{2\omega}|^2 / 2$ em relação a x e y . Em função de u e v tem-se

$$P_{2\omega} = \int_{-\infty}^{\infty} du \int_{-\infty}^{\infty} dv w_0^2 \tau^2 \frac{\epsilon_0 c n_{2\omega}}{2|A_{2\omega}|^2} \quad (2.2.36)$$

Substituindo 2.2.35 em 2.2.36, resolvendo a integral em relação a v , indentificando $P_{\omega} = \pi \epsilon_0 c n_{\omega} w_0^2 A_{\omega}^2 / 4$ e $k_{2\omega} = \omega n_{2\omega} / c$ podemos escrever a eficiência de conversão do segundo harmônico $\Gamma = P_{2\omega} / P_{\omega}^2$ como

$$\Gamma_{SH} = K k_{\omega} l \exp(-2\alpha_{\omega} f) h(\alpha, l, f, \sigma) \\ h(\alpha, l, f, \sigma) = \frac{2z_R \sqrt{\pi}}{l} \int du \frac{1}{2\pi} |H(\alpha, l, f, \sigma)|^2 \quad (2.2.37)$$

onde $K = 2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 / (\pi \epsilon_0 c^3 n_{\omega}^2 n_{2\omega})$. Resolvendo o módulo da função H podemos então resolver a integral em u através de uma tabela de integral onde

$$\int_{-\infty}^{\infty} du \exp(-4u^2 + 4i\beta i u(\tau + \tau')) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \exp(\beta^2(\tau - \tau')^2) \quad (2.2.38)$$

Temos por fim que a eficiência da conversão de segundo harmônico é dada por

$$\Gamma = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2}{\pi \epsilon c^3 n_\omega^2 n_{2\omega}} l k_\omega h(\alpha, \beta, \Delta k)$$

$$h(\alpha, \beta, \Delta k) = \frac{z_R}{2l} \int \int_{-f/z_R}^{(l-f)/z_R} d\tau' d\tau \frac{\exp[-i\Delta k z_R(\tau - \tau') - \alpha_\omega z_R(\tau + \tau') - \beta^2(\tau - \tau')^2]}{(1 + i\tau)(1 - i\tau')} \quad (2.2.39)$$

A função $h(\alpha, \beta, \Delta k)$ age como uma função de casamento de fase mudando a eficiência de conversão em função do casamento de fase e da focalização do feixe. Essa função leva em consideração os efeitos da difração do feixe e do *walk-off* dentro do cristal não linear. A função h é conhecida como função de focalização.

Para o caso de uma onda plana onde $z_R \gg l$ para um casamento de fase não crítico, ou seja, $\rho = 0$, temos que h se reduz a conhecida função $\text{sinc}^2(\Delta k l/2)$ para uma onda plana, desprezando a absorção no cristal não linear.

Nessa seção foi demonstrada a eficiência de conversão do segundo harmônico para um cristal do tipo I (ooe), sendo a eficiência de conversão para um cristal do tipo I (eoo) também dada pela mesma expressão, como demonstrado previamente [37].

Através da simulação da eficiência de conversão para um cristal do tipo I (ooe) vamos analisar a influência dos valores do d_{eff} , do comprimento do cristal l e do ângulo de *walk-off*. Todas as simulações desprezaram a absorção do comprimento de onda fundamental e do segundo harmônico pelo cristal não linear. Além disso, assumimos que o foco do feixe está no centro do cristal não linear.

Através da equação 2.2.39 é possível notar que o valor do coeficiente não linear efetivo do cristal é um parâmetro importante, uma vez que a eficiência cresce quadraticamente com o d_{eff} , como pode ser visto na Figura 2.4. Para os três valores simulados de d_{eff} , a conversão de eficiência máxima ocorre para o mesmo tamanho de feixe $w_0 = 27\mu\text{m}$ uma vez que a função h é igual para todos os casos. Além disso, fica claro a importância de um feixe com um diâmetro pequeno dentro do cristal não linear. Enquanto um feixe de $27\mu\text{m}$ tem uma eficiência de conversão de $8,1 \cdot 10^{-5} \text{ W}^{-1}$ o aumento para um feixe de $100\mu\text{m}$ fornece uma eficiência 3 vezes menor, para um $d_{\text{eff}} = 4\text{pm/V}$.

Para verificar a influência do ângulo de *walk-off* na GSH mantivemos um valor fixo de d_{eff} igual a 2pm/V e um comprimento de cristal $l = 1\text{cm}$ e variamos o ângulo ρ de 0° a 1° , Figura 2.5. Através da fórmula 2.2.39 é possível verificar que o *walk-off* influencia diretamente na função de focalização h . Através da Figura 2.5 pode-se verificar que quanto maior o ângulo de *walk-off* menor será a eficiência na GSH, demonstrando que o *walk-off* é uma perda para

Figura 2.4: Simulação da eficiência de conversão do SH em função do d_{eff} para um cristal do tipo I ooe com comprimento igual a 1 cm e *walk-off* igual a 1° .

a GSH. Além disso, o *walk-off* se torna um limitante do comprimento do cristal não linear a ser utilizado. A eficiência na GSH é máxima para um feixe com raio de $20\mu\text{m}$ quando o *walk-off* é nulo, passando a ser máxima para um feixe com raio de $27\mu\text{m}$ para $\rho = 1^\circ$ além de três vezes menor para o cristal com casamento de fase crítico.

Figura 2.5: Simulação da eficiência de conversão do SH em função do ângulo de *walk-off* para um cristal do tipo I ooe com comprimento igual a 1 cm e com um $d_{\text{eff}} = 2\text{pm/V}$.

Para verificar-se a influência da variação do comprimento do cristal, mantivemos o coeficiente não linear efetivo igual a 2pm/V e $\rho = 0^\circ$. Através da Figura 2.6 pode-se verificar que o aumento do comprimento do cristal favorece a eficiência da GSH como esperado. Além disso, cristais mais compridos fazem com que a eficiência máxima da GSH ocorra para feixes com um raio maior dentro do cristal não linear, isso ocorre uma vez que para cristal muito compridos têm uma perda grande para feixes muito focalizados devido o cristal não linear ser muito maior que o comprimento de Rayleigh do feixe. Uma outra perda é gerada para feixes muito focalizados devido a parte do feixe não conseguir ser convertida no SH por causa do ângulo de aceitação do cristal não linear (ver seção 2.2.5).

Figura 2.6: Simulação da eficiência de conversão do SH em função comprimento de um cristal do tipo I ooe para um *walk-off* igual a zero e um $d_{\text{eff}} = 2\text{pm/V}$.

2.2.5 Limitação na geração do segundo harmônico

Além do *walk-off* há outros parâmetros que influenciam e limitam a geração do segundo harmônico.

Como citado anteriormente, o índice de refração do feixe extraordinário depende do ângulo θ entre o feixe de entrada e o eixo óptico do cristal. Assim em cristais com casamento de fase por ângulo, quando esse ângulo se afasta do ângulo do casamento de fase θ_m , a geração do segundo harmônico vai diminuindo até se tornar nula. Isso faz com que exista um ângulo máximo para o feixe de entrada no qual ainda ocorre o casamento de fase. Esse ângulo é

conhecido como largura de aceitação angular de um cristal não linear com o casamento de fase crítico [30]. Essa largura determina o quão crítica é a entrada do feixe no ângulo correto do casamento de fase e é dada pela largura a meia altura da função $\text{sinc}^2(\Delta kl/2)$, Figura 2.1. Para feixes focalizados dentro do cristal não linear, essa característica do cristal pode ser determinante para a limitação da eficiência da GSH.

Analogamente, para cristais com casamento de fase por temperatura, há uma largura de aceitação de temperatura.

O mesmo pode-se dizer para a largura de aceitação espectral. Uma vez que o índice de refração varia em função do comprimento de onda, há uma limitação espectral na qual começa haver uma diminuição do casamento de fase, e portanto Δk passa a ser diferente de zero e a GSH passa a ser menos eficiente.

Portanto, na escolha de um cristal não linear para a GSH de um laser, todas essas características devem ser levadas em consideração, juntamente com as características citadas na seção anterior. É importante dizer, que essa limitação angular é levada em conta nas simulações feitas na seção 2.2.4 através da variação do Δk na função de focalização h .

2.2.6 Potência máxima gerada no segundo harmônico

Na seção 2.2.4 estudou-se a eficiência da GSH levando em consideração as características do cristal não linear e do feixe incidente nesse cristal. Nessa seção, será demonstrada qual é a potência máxima que pode ser obtida no SH em um laser levando em consideração os parâmetros do laser, tais como taxa de bombeamento, perdas intracavidade e emissão espontânea e estimulada. Essa teoria foi desenvolvida em 1968 por R. Polloni e O. Svelto [40] e demonstrou através das equações de taxa de um laser de quatro níveis que a potência máxima que pode ser obtida no SH em um laser de quatro níveis é igual a potência máxima obtida nesse mesmo laser no comprimento de onda fundamental quando utilizado um espelho com transmissão ótima. O mesmo resultado foi obtido posteriormente por Smith comparando o ganho saturado de um laser com a soma das perdas lineares e não lineares [41].

Vamos demonstrar primeiramente, qual é a potência máxima no comprimento de onda fundamental que podemos obter de um laser através das equações de taxa de um laser de quatro níveis, sem um meio não linear intracavidade. Essas equações são dadas por

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = \beta N - Bnq - \frac{n}{\tau} \\ \frac{dq}{dt} = Bnq - K_i q - K_e q \end{cases} \quad (2.2.40)$$

onde n é a inversão de população entre os níveis laser superior e inferior, β é proporcional à taxa de bombeamento, N é a densidade de íons dopantes no cristal, B é proporcional à seção de choque de emissão estimulada, q é a densidade de fótons na frequência do laser no modo oscilante dentro da cavidade ressonante, τ é o tempo de vida do nível superior laser, K_i é um coeficiente relacionado com as perdas lineares do laser e K_e são as perdas introduzidas pela transmissão do espelho de saída do laser. É importante ressaltar que as perdas lineares do laser K_i não levam em consideração as perdas pela transmissão do espelho de saída.

O coeficiente B é dado por [40]:

$$B = \frac{c\sigma_{em}}{Sdn_1^3} \quad (2.2.41)$$

onde c é a velocidade da luz, σ_{em} é a seção de choque de emissão, S é a área do feixe laser dentro do cristal, d é o comprimento do ressonador e n_1 é o índice de refração do meio ativo.

No estado estacionário temos que dn/dt e dq/dt são nulos. Chamando as grandezas n e q no estado estacionário como n_0 e q_0 , respectivamente, temos então que as equações de taxa no estado estacionário podem ser escritas da seguinte maneira

$$\begin{cases} \beta N - Bn_0q_0 - \frac{n_0}{\tau} = 0 \\ Bn_0q_0 - K_i q_0 - K_e q_0 = 0 \end{cases} \quad (2.2.42)$$

No limiar de ação laser pode-se assumir que $q_0 \rightarrow 0$. Fazendo então $q_0 = 0$ nas equações 2.2.42 e resolvendo o sistema de equações pode-se definir a taxa de bombeamento no limiar laser como sendo

$$\beta_c = \frac{K_i + K_e}{BN\tau}. \quad (2.2.43)$$

A potência no comprimento de onda fundamental é dada por

$$P_\omega = h\nu K_e q_0 \quad (2.2.44)$$

onde h é a constante de Planck e ν é a frequência do laser. Resolvendo o sistema de equações no estado estacionário temos que q_0 é dado por

$$\begin{cases} n_0 = \frac{K_i + K_e}{B} \\ q_0 = \frac{1}{K_i + K_e} \left(\beta N - \frac{K_i + K_e}{B\tau} \right) = \frac{1}{B\tau} \left(\frac{\beta}{\beta_c} - 1 \right) \end{cases} \quad (2.2.45)$$

Substituindo o valor de q_0 dado em 2.2.45 temos então que a potência no fundamental é

$$P_\omega = \frac{h\nu}{B\tau} K_e \left(\frac{\beta N B \tau}{K_i + K_e} - 1 \right) \quad (2.2.46)$$

Pode-se verificar então que a potência do laser depende da transmissão do espelho de saída, que está presente na equação através do parâmetro K_e . A transmissão ótima para este espelho de saída que maximiza a potência no comprimento de onda fundamental pode ser obtida derivando a equação 2.2.46 em relação a perda inserida pela transmissão do espelho K_e e igualando a zero. Toma-se então o valor de K_e^{otimo} positivo dado por

$$K_e^{otimo} \equiv T^{ot} \frac{c}{nd} = -K_i + \sqrt{\beta N B \tau K_i} \quad (2.2.47)$$

onde T^{ot} é a transmissão ótima do espelho de saída do laser e assume-se o índice de refração do ressonador laser como sendo somente o índice de refração do ar n . Substituindo o valor de K_e^{otimo} na potência obtém-se a potência máxima que pode ser obtida em um laser de quatro níveis no comprimento de onda fundamental, dada por

$$P_w^{max} = \frac{h\nu}{B\tau} \left[\sqrt{\beta N B \tau} - \sqrt{K_i} \right]^2 \quad (2.2.48)$$

Para a geração do segundo harmônico é introduzido um cristal não linear dentro da cavidade laser. Nas equações de taxa essa inserção aparece como perdas para o comprimento de onda fundamental. Além disso, para uma eficiente geração de segundo harmônico é necessária uma alta potência no fundamental, portanto todos os espelhos são considerados altamente refletores para o comprimento de onda fundamental do laser e altamente transmissor para o segundo harmônico. Assim o termo de perda devido ao espelho de saída K_e mostrado nas equações de taxa 2.2.40 é nulo nesse caso. As equações de taxa para esse laser podem então ser descritas como [40]

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = \beta N - Bnq - \frac{n}{\tau} \\ \frac{dq}{dt} = Bnq - K_i q - K_u q^2 \end{cases} \quad (2.2.49)$$

onde K_i é o coeficiente relacionado com as perdas lineares do laser, e portanto, não leva em

conta as perdas devido a geração de segundo harmônico (GSH). As perdas úteis devida à GSH são inseridas no coeficiente de perdas não lineares, K_u .

O coeficiente de perdas lineares K_i pode ser escrito então em função das perdas internas por passo α_i da seguinte maneira:

$$K_i = \frac{\alpha_i c}{n_1 d}. \quad (2.2.50)$$

No estado estacionário as equações de taxa são dadas por

$$\begin{cases} \beta N - B n_0 q_0 - \frac{n_0}{\tau} = 0 \\ B n_0 - K_i - K_u q_0 = 0 \end{cases} \quad (2.2.51)$$

Através das equações 2.2.51, pode-se então definir a taxa de bombeamento no limiar laser, $q_0 \rightarrow 0$, para um laser com um cristal não linear intracavidade como sendo

$$\beta_c = \frac{K_i}{B N \tau}. \quad (2.2.52)$$

A potência obtida no segundo harmônico, P_{2w} , é dada por

$$P_{2w} = K_u q_0^2 h \nu \quad (2.2.53)$$

onde h é a constante de Planck e ν é a frequência do laser.

Resolvendo o sistema de equações (2.2.51) e substituindo em (2.2.53) temos que

$$P_{2w} = \frac{h \nu}{4 B^2 \tau^2} \left[\sqrt{\frac{(K_u + B \tau K_i)^2}{K_u} + 4 B \tau (\beta B N \tau - K_i)} - \frac{(K_u + B \tau K_i)}{\sqrt{K_u}} \right]^2. \quad (2.2.54)$$

Pode-se então escrever essa equação em função das seguintes variáveis normalizadas

$$\begin{aligned} x &= \frac{\beta}{\beta_c} = \frac{P_{abs}}{P_{th}} \\ y &= \frac{K_u}{B \tau K_i} \end{aligned} \quad (2.2.55)$$

onde x é a normalização da potência absorvida pelo cristal laser na potência de limiar do laser e y é a normalização da perda não linear. A potência no segundo harmônico pode então ser escrita da seguinte maneira

$$P_{2w} = \frac{K_i h \nu}{B \tau} \frac{1}{4y} \left[\sqrt{(y-1)^2 + 4yx} - (y+1) \right]^2. \quad (2.2.56)$$

Pode-se então determinar a potência máxima que pode ser obtida no SH derivando a equação (2.2.54) em relação a perda não linear K_u e igualando a zero para achar o máximo da função. Assim temos que a melhor eficiência na GSH ocorre quando a seguinte relação é obedecida

$$K_u = B \tau K_i \implies y = 1. \quad (2.2.57)$$

A otimização da GSH depende das características do cristal não linear e não da potência incidente no cristal não linear, como pode ser visto na Figura 2.7 onde temos que a potência máxima no SH sempre ocorre para $y = 1$. Nesta figura pode-se verificar que a eficiência de conversão máxima não depende da potência incidente, apenas a potência no SH depende desse parâmetro. Assim, um dado cristal não linear vai obter a mesma eficiência de conversão para qualquer potência incidente. Desta forma, a maior potência no segundo harmônico se dá através da correta escolha do cristal não linear, uma vez que a variável K_u depende das características desse cristal e do raio do feixe laser dentro do mesmo, w_0 , da seguinte forma [40]

$$K_u = \frac{512 h \pi^4 d_{mn}^2 \nu^3 l^2}{c n_c^3 n_1^2 w_0^2 d^2} \quad (2.2.58)$$

onde d_{mn} é o coeficiente não linear (d_{eff}) do cristal não linear, l e n_c são o seu comprimento e o índice de refração do cristal não linear, respectivamente. Esta equação é válida para feixes cujo diâmetro não varie significativamente dentro do comprimento do cristal não linear.

Uma vez que y é proporcional a $\frac{l^2 w^2}{w_0^2}$ podemos verificar que para obter a otimização da eficiência da GSH, após determinado o cristal não linear, é preciso encontrar a melhor razão entre os diâmetros do feixe laser dentro do meio ativo, w , e do meio não linear, w_0 , ou ainda, o comprimento do cristal não linear para a obter uma constante y unitária.

A potência máxima no SH para uma determinada configuração de um laser é então obtida substituindo (2.2.57) em (2.2.54)

$$P_{2w}^{max} = \frac{h \nu}{B \tau} \left[\sqrt{\beta N B \tau} - \sqrt{K_i} \right]^2. \quad (2.2.59)$$

Comparando as equações 2.2.48 e 2.2.59 verifica-se que a potência máxima que pode-se

Figura 2.7: Comportamento da potência no segundo harmônico em função de $\sqrt{y}$.

obter na geração do segundo harmônico de um laser é igual a potência máxima que pode-se extrair desse mesmo laser, no comprimento de onda fundamental, quando utilizado um espelho com transmissão ótima.

Capítulo 3

Laser de neodímio na região do vermelho

Nesse trabalho utilizamos a técnica de geração de segundo harmônico de emissões na região de $1,3\mu\text{m}$ para obtenção de lasers emitindo no vermelho. Como foi demonstrado no capítulo 2, a potência no SH depende das características do cristal não linear utilizado assim como da potência intracavidade no comprimento de onda fundamental. Nessa capítulo, faremos uma breve discussão das matrizes lasers mais comumente utilizadas para a obtenção de lasers na região de $1,3\mu\text{m}$ e dos cristais não lineares utilizados, assim como suas características, vantagens e desvantagens. Será mostrada uma revisão dos melhores resultados obtidos na literatura até o presente momento para lasers operando na região de $1,3\mu\text{m}$ e do vermelho. Por último, serão discutidos os resultados dos lasers operação em frequência única, tanto no infravermelho como no vermelho.

3.1 Matrizes laser

Para a obtenção de um laser de estado sólido na região de $1,3\mu\text{m}$, diferentes matrizes cristalinas dopadas com neodímio têm sido usadas, como por exemplo, Nd:YLF [17, 42], Nd:YVO₄ [43], Nd:Y₃Al₅O₁₂ (Nd:YAG) [44] e Nd:GdVO₄ [45]. Enquanto os óxidos (YAG, YVO₄ e GdVO₄) são matrizes resistentes à altas potências, o YLF apresenta um limiar de fratura mais baixo limitando assim a potência de bombeamento. Porém, a birefringência natural do Nd:YLF faz com que o calor gerado dentro do cristal proporcione uma mudança negativa no índice de refração, fazendo com que se forme uma lente divergente. Essa lente compensa a

lente convergente formada devido a deformação do meio ativo. Isso faz com que esse fluoreto apresente a grande vantagem de uma fraca lente térmica se comparado com os óxidos. A forte lente térmica gerada nesses óxidos é responsável pela distorção da qualidade do feixe e instabilidade do ressonador laser, limitando a potência de bombeamento. Esse efeito é mais acentuado no caso da transição em $1,3\mu\text{m}$ se comparadas com as transições em $1,0\mu\text{m}$ e $0,9\mu\text{m}$, amplamente estudadas nessas matrizes, devido ao maior defeito quântico. No caso do Nd:YVO_4 , por exemplo, a lente térmica gerada em um laser operando em 1342nm é 2,5 vezes maior que a gerada na emissão em 1064nm [46].

A lente térmica dentro de um cristal laser depende das propriedades térmicas e mecânicas do material, como a condutividade térmica e o coeficiente termo-óptico (dn/dT). A distância focal dessa lente é proporcional a condutividade térmica e inversamente proporcional ao dn/dT [47]. Uma vez que o dn/dT da matriz de Nd:YAG é alto, tabela 3.1, a lente térmica gerada nesse cristal é comparável com as geradas nos vanadatos mesmo apresentando uma alta condutividade térmica. Se compararmos os dois vanadatos, a maior condutividade térmica do Nd:GdVO_4 explica a menor lente térmica gerada no mesmo, como demonstrado por Krennrich *et al* [48].

Tabela 3.1: Características espectroscópicas, térmicas e mecânicas de alguns cristais lasers [1–5].

	Nd:YAG	Nd:YVO₄	Nd:GdVO₄	Nd:YLF
Comprimento de onda de emissão (nm)	1319	1342	1341	1321 (π) 1314 (σ)
Condutividade térmica ($\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$)	11,1	5,23 (eixo c) 5,10 (eixo a)	11,7 (eixo c)	5,8 (eixo c) 7,2 (eixo a)
Expansão térmica (10^{-6}K^{-1})	7,9	11,4 (eixo c) 4,4 (eixo a)	7,3 (eixo c) 1,5 (eixo a)	8 (eixo c) 13 (eixo a)
dn/dT (10^{-6}K^{-1})	7,3	3,0 (eixo c)	4,7 (eixo c) 6,9 (eixo a)	-4,3 (eixo c) -2,0 (eixo a)

As diferenças cristalinas entre as matrizes geram ainda diferentes emissões do neodímio em cada uma delas. Enquanto no YLF essa transição ocorre em 1314nm , para a polarização σ , e em 1321nm , para a polarização π , a mesma transição fornece um comprimento de onda em 1319nm em uma matriz de YAG, 1341nm em uma matriz de GdVO_4 e 1342nm em uma matriz de YVO_4 . Dessa forma, a escolha do meio ativo laser, muitas vezes, se dá pelo comprimento de onda necessário para cada aplicação e não somente pelas qualidades térmicas e mecânicas das matrizes.

Nesse trabalho, foram construídos dois laser operando em frequência única para diferentes

aplicações espectroscópicas, um para espectroscopia atômica do lítio e outro para espectroscopia atômica da prata. Para a espectroscopia do lítio visava-se estudar a transição $^2S_{1/2} - ^2P_{1/2}$ centrada em 670,976nm. Esse comprimento de onda pode ser obtido através da GSH da transição em 1342nm de um cristal de YVO₄ ou GdVO₄ dopado com neodímio. Se compararmos esses cristais, a seção de choque de absorção em 808nm do GdVO₄ é quase duas vezes maior que do YVO₄. Porém, a seção de choque de emissão em 1,3μm do YVO₄ é de $4,5 \cdot 10^{-19} \text{cm}^2$ contra $1,8 \cdot 10^{-19} \text{cm}^2$ do GdVO₄ [49, 50]. Além disso, a seção de choque de absorção do estado excitado do Nd:GdVO₄ é aproximadamente 5 vezes maior que o do Nd:YVO₄ tornando assim os lasers de Nd:GdVO₄ em 1,3μm pouco eficientes se comparados com os de Nd:YVO₄ [49]. Enquanto os lasers de Nd:YVO₄ operando em 1342nm demonstraram eficiências próximas a eficiência quântica (*slope efficiency*) de 53,5% e 64% quando bombeado em 808nm e 879nm [51], respectivamente, os lasers de Nd:GdVO₄ obtiveram eficiências de 33% e 49,1% para esses mesmos comprimentos de onda de bombeamento [45, 52]. Essas altas eficiências foram demonstradas para potências de bombeamento de até 2W no caso do Nd:YVO₄ e 10W no caso do Nd:GdVO₄. A maior potência de saída até hoje reportada em um laser de Nd:YVO₄ emitindo em 1342nm é de 24W com um feixe gaussiano, $M^2 < 1,1$, para uma potência de bombeamento de 84W em 888nm [53]. Devido aos resultados obtidos na literatura, optou-se por utilizar um cristal de Nd:YVO₄ para a construção desse laser.

Para a espectroscopia da prata visava-se estudar a transição de dois fótons $^2S_{1/2} - ^2D_{5/2}$ no comprimento de onda de 661,325nm [19]. Esse comprimento de onda pode ser obtido através da GSH da emissão π do Nd:YLF. Essa matriz tem a emissão centrada em 1321,5nm com uma largura espectral de aproximadamente 4nm e, portanto, através da GSH de um laser de Nd:YLF sintonizável é possível atingir a transição desejada da prata. Apesar da baixa seção de choque de emissão em 1321nm do Nd:YLF, aproximadamente $2 \cdot 10^{-20} \text{cm}^2$ [54], a fraca lente térmica desse cristal favorece a estabilidade do laser até o limiar de fratura do meio. Porém poucos trabalhos exploraram esta emissão do Nd:YLF. Utilizando uma configuração em L, Y. Louyer *et al.* demonstraram 4,8W em 1322,6nm para 16,3W de potência absorvida com uma *slope efficiency* de 30%, quando bombeado em 806nm, sem problemas de fratura no cristal. Recentemente, Y.F.Lu *et al* estudaram uma cavidade laser linear de Nd:YLF operando em 1321nm com a maior eficiência até hoje reportada, 37% quando o cristal foi bombeado em 806nm e 52% quando bombeado em 880nm, com uma potência de saída de 3,6W para 7,3W de potência absorvida [55].

3.2 Obtenção de lasers na região do vermelho

Uma boa eficiência na GSH depende da escolha correta do cristal não linear a ser utilizado. Uma das primeiras características analisadas é se o cristal é transparente no comprimento de onda fundamental e no segundo harmônico, para que não haja absorção desses comprimentos de onda gerando assim uma perda. Além disso, características como o ângulo de aceitação, o coeficiente não linear efetivo e o *walk-off* devem ser levados em consideração. Muitos cristais não lineares tem sido usados e desenvolvidos nos últimos anos. Na região do visível, os cristais de β -BaB₂O₄ (BBO) e LiB₃O₅ (LBO) têm sido amplamente estudados. Porém esses cristais apresentam um baixo coeficiente não linear efetivo fazendo com que a conversão para o SH seja baixa. Mais recentemente, foi desenvolvido um borato de bismuto, BiB₃O₆ (BiBO), com um coeficiente não linear efetivo mais alto, como uma alternativa mais eficiente para a obtenção de comprimentos de onda no visível e ultravioleta, uma vez que sua janela de transmissão vai de 290nm a 2500nm [6]. Uma desvantagem do BiBO, assim como do BBO, se comparados ao LBO é o pequeno ângulo de aceitação para o casamento de fase e um *walk-off* maior. Isso limita a eficiência da GSH para feixes muito focalizados dentro do cristal não linear e faz com que o feixe de saída do SH seja elíptico.

Como uma solução para as limitações geradas pelo casamento de fase crítico, têm sido desenvolvidos cristais com inversão periódica de domínio, como o ppKTP e o ppLN [56, 57]. Com esses cristais é possível obter um meio não linear com um alto d_{eff} e com *walk off* nulo, o que torna a GSH mais eficiente.

Apesar das qualidades em se trabalhar com cristais com inversão periódica de domínio, a maioria dos trabalhos publicados utilizam cristais de LBO ou BiBO.

Quando utilizado como cristal laser um Nd:YVO₄, a maioria dos trabalhos visam alta potência sem se preocupar com a resolução espectral ou uma operação em frequência única. A maior potência já reportada no vermelho, utiliza uma cavidade em L e um cristal de LBO do tipo I com 15mm de comprimento. Dispondo esse cristal no menor foco da cavidade, foi demonstrado 5,5W no vermelho com uma potência absorvida pelo Nd:YVO₄ de 19W quando bombeado em 880nm. Para a mesma potência absorvida quando bombeado em 808nm, foi obtida uma potência de 3,5W no vermelho [55]. O único trabalho até hoje demonstrado com um cristal não linear de BiBO, demonstrou uma potência de 1,22W para uma potência incidente de 25W [58].

Já com uma matriz de Nd:YLF os poucos trabalhos realizados visam a operação em

frequência única com aplicações para espectroscopia atômica, uma vez que essa matriz é mais limitada para altas potências devido ao baixo limiar de dano. O único trabalho com operação em vários modos longitudinais, demonstrou uma comparação entre cristais de Nd:YLF *a-cut* (quando o eixo de propagação do laser é perpendicular ao eixo óptico do cristal) e *c-cut* (quando o eixo de propagação do laser é paralelo ao eixo óptico do cristal). O cristal não linear utilizado foi um LBO do tipo II com casamento de fase não crítico obtido em 42°C. O melhor resultado em 660,5nm foi de 0,9W no vermelho para uma potência absorvida 6,3W quando utilizado o cristal *a-cut* [59].

Neste trabalho, optou-se por estudar a GSH na região de 650nm utilizando dois cristais não lineares diferentes. Para o projeto do Nd:YVO₄ foi utilizado um cristal de BiBO do tipo I. Para o laser de Nd:YLF, foi testado um cristal de ppKTP uma vez que já havia sido estudado a GSH desse laser utilizando um cristal de BiBO e LBO [60]. O cristal de ppKTP não foi testado com o laser de Nd:YVO₄ pois o mesmo foi desenhado para funcionar em 1314nm (uma das emissões do Nd:YLF) e para que funcionasse em 1342nm seria necessário operar esse cristal em temperaturas muito altas. As principais características dos cristais utilizados são apresentadas na Tabela 3.2.

Tabela 3.2: Características dos cristais não lineares utilizados nesse trabalho. As larguras de aceitação foram calculadas através do modelo de onda plana [6, 7].

Parâmetros do cristal	ppKTP	BiBO
Casamento de fase	tipo I (eee)	tipo I (ooo)
Orientação (θ, ϕ) (deg)	(90;0)	(8,6;0)
Janela de transmissão (nm)	350 - 4500	290 - 2500
Walk-off (°)	0	1,4
Largura de aceitação angular $\Delta\theta$ (°)	-	0,088
Largura de aceitação espectral $\Delta\lambda$ (nm)	0,9	3,9
Largura de aceitação de temperatura ΔT (°C)	9,9	4,7
Coefficiente não linear efetivo d_{eff} (pm/V)	8,9	2,92
Eficiência de conversão máxima (W^{-1})	$6,6 \cdot 10^{-3}$	$12,7 \cdot 10^{-3}$
Raio da conversão ótima ω_{ot} (μm)	20	28

Através da teoria de GSH com laser focalizados dentro do cristal não linear, mostrada na seção 2.2.4, e dos dados mostrado na Tabela 3.2 foi possível estimar a eficiência da GSH para feixes focalizados dentro dos dois cristais não lineares utilizados, Figura 3.1. Devido ao maior coeficiente não linear efetivo, d_{eff} , a eficiência de conversão máxima do ppKTP é 50 vezes maior que a do BiBO, para cristais com o mesmo comprimento. Além disso, o ppKTP tem a melhor eficiência com um feixe de 20 μm enquanto o BiBO tem a maior eficiência com

um feixe um pouco maior, $28\mu\text{m}$. Isso se dá pelo fato do *walk off* do ppKTP ser igual a zero enquanto o BiBO apresenta um *walk off* de $1,4^\circ$. Isso faz com que o BiBO tenha uma perda maior na GSH para feixes muito focalizados tendo então sua melhor eficiência para feixes maiores.

Figura 3.1: a) Simulação da eficiência de conversão do BiBO utilizado nesse projeto em função do raio do feixe laser dentro do cristal. b) Simulação da eficiência de conversão do ppKTP utilizado nesse projeto em função do raio do feixe laser dentro do cristal.

3.3 Lasers operando em frequência única

Para a aplicação em espectroscopia atômica é necessário que o laser seja estável, ou seja, sem *mode-hops* (mudança espontânea de um modo longitudinal para outro), tenha uma estreita largura de emissão e oscile em uma única frequência bem determinada. Cavidades ressonantes lineares tem uma grande dificuldade de operar em frequência única, principalmente em altas potências, devido ao *hole burning* espacial. Por esse motivo, uma baixa estabilidade na operação em frequência única foi observada por Y. Louyer *et al* em um laser de Nd:YLF, com uma configuração em L. Apesar da alta potência obtida, aproximadamente 2,9W em 1322,6nm, mesmo com a utilização de dois etalons intracavidade o laser oscilava em uma única frequência apenas 1s antes de uma mudança de um modo longitudinal para outro [21]. Uma operação estável em 1321nm só foi demonstrada por R. Sarrouf *et al.* quando utilizada uma configuração em anel. Em 1322,6nm foi demonstrado 0,5W utilizando um etalon com $R = 25\%$, enquanto no ganho máximo, 1321,5nm, o mesmo laser forneceu 0,9W. Com mesmo

BiBO utilizado nesse projeto, foi demonstrado 0,7W no vermelho, em frequência única, para uma potência absorvida de 8,7W. Quando utilizado um LBO do tipo I ($d_{\text{eff}} = 0,82\text{pm/V}$) e um espelho com transmissão de 0,5% em 1321nm, o grupo demonstrou 0,25W no vermelho tornando clara a vantagem em se utilizar o BiBO ao invés do LBO. Porém o BiBO demonstrou um feixe mais elíptico, devido ao mais alto *walk-off*, com um M^2 de $1,33 \times 1,27$ na horizontal e na vertical, respectivamente [60].

As mesmas dificuldades em uma operação estável em frequência única foram verificadas por A. Agnesi *et al* em um laser de Nd:YVO₄ [61]. O único trabalho que reporta a operação de um laser de Nd:YVO₄ em frequência única utiliza uma cavidade em L e um LBO do tipo II com casamento de fase não crítico que serve para suprimir os modos longitudinais e fazer o laser operar em frequência única. Porém essa operação só pode ser mantida quando diminuída a potência de bombeamento do laser, obtendo então 370mW no vermelho.

Para contornar a baixa estabilidade obtida em lasers com configuração linear ou em L, ambas as cavidades ressonantes desenvolvidas nesse trabalho utilizaram uma configuração em anel.

Capítulo 4

Procedimento experimental

4.1 Projeto Nd:YVO₄

Para obtenção do comprimento de onda de 671 nm foi utilizado um cristal de Nd:YVO₄, uma vez que a transição do nível ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$ emite em 1342nm. Porém um dos maiores problemas em se trabalhar com óxidos é a forte lente termicamente induzida. Para minimizar esse problema optou-se pela utilização de um cristal com uma baixa dopagem de neodímio (0,15mol%) possibilitando assim uma melhor distribuição da potência de bombeamento dentro do cristal, diminuindo a lente térmica [23, 43]. O cristal utilizado tem dimensões de $3 \times 3 \times 10\text{mm}^3$, com filme nas duas faces de $3 \times 3\text{mm}^2$, anti-refletor para o comprimento de onda de 1342nm e transmissor para os comprimentos de onda de bombeamento, 808nm ($T > 95\%$), e para 1064nm ($T > 50\%$). O cristal foi montado em um suporte de cobre, mantido à 12°C através de um sistema de refrigeração a água e envolto em uma folha de índio para uma melhor transmissão de calor. O eixo óptico c, do cristal se encontra perpendicular ao plano da mesa óptica. A emissão laser ocorre em π (paralelo ao eixo c do cristal) devido à mais alta seção de choque de emissão em π que em σ [49].

Como fonte de bombeamento foi utilizado um diodo laser acoplado à fibra da empresa alemã LIMO, operando em regime contínuo. O diodo é acoplado a uma fibra com diâmetro de $200\mu\text{m}$ e abertura numérica de 0,22 e fornece uma potência máxima de 20W. O comprimento de onda de emissão foi sintonizado por temperatura para a obtenção da emissão no pico de absorção do Nd:YVO₄, 808nm. Nesse comprimento de onda o cristal absorve aproximadamente 90% da radiação incidente. O feixe do diodo foi focalizado no cristal através de um conjunto de lentes acromáticas ($f_1 = 60\text{mm}$ e $f_2 = 80\text{mm}$), com isso o raio do feixe de

bombeamento dentro do cristal foi de aproximadamente $260\mu\text{m}$.

Como o principal objetivo desse laser é a utilização em espectroscopia de lítio, foi necessário o desenvolvimento de um laser estável operando em frequência única e sintonizável para a obtenção da transição $^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{1/2,3/2}$ do lítio em $670,97\text{nm}$. Para isso foi utilizada um ressonador assimétrico em anel com dois espelhos planos (M1 e M2) e dois espelhos curvos com raio de curvatura de 10cm (M3 e M4), Figura 4.1. Todos os espelhos tem filme com $R > 99,8\%$ entre $1300\text{-}1350\text{nm}$ e $T \sim 90\%$ entre $650\text{-}810\text{nm}$. Uma vez que a transição em 1064nm tem uma seção de choque de emissão aproximadamente duas vezes maior que a em 1342nm [62] todos os espelhos utilizados no ressonador tem uma transmissão maior que 50% em 1064nm para extinguir a possibilidade de sua oscilação. As dimensões do ressonador foram previamente estudadas, utilizando a teoria de matrizes ABCD. O comprimento total do ressonador sem o cristal não linear foi de $L_{cav} = 680\text{mm}$, com distâncias de M3-M4 igual a 115mm , M4-M2 igual a 135mm , M1-M2 igual a 210mm e M1-M3 igual a 220mm , o que corresponde a um espaçamento entre dois modos longitudinais de $\text{FSR}_{cav} = c/L_{opt} = 441\text{MHz}$. O ressonador foi desenhado para permitir uma variação do raio do feixe dentro do cristal laser de 290 a $400\mu\text{m}$ quando variada a distância entre os espelhos M3 e M4, sem que houvesse uma grande variação da cintura do feixe localizada no cristal não linear.

Para uma operação unidirecional estável, foi utilizado um rotator de Faraday (TGG - granada de térbio-gálio) de 20mm de comprimento e 5mm de diâmetro. O cristal é cortado em ângulo de Brewster e produz uma rotação na polarização do feixe laser de aproximadamente 7° , para um campo magnético aplicado de $0,4\text{T}$. Como a rotação provocada pelo TGG acontece sempre na mesma direção, utilizando uma placa de meia onda de ordem zero é possível compensar essa rotação em apenas uma das direções. Assim através do ângulo de Brewster do TGG é introduzida uma perda para apenas uma das direções conseguindo-se então manter a operação unidirecional. Como este laser será sintonizável dentro do perfil de ganho do meio ativo foi utilizada uma placa de meia onda de ordem zero, ao invés de uma placa de múltiplas ordens, devida a maior variação permitida no comprimento de onda em torno do λ_0 para a qual esta foi projetada.

Através da utilização de um etalon foi possível obter uma laser sintonizável e com emissão em frequência única de maneira estável. O etalon foi posicionado entre o meio ativo e o rotator de Faraday, no segundo foco do ressonador, onde a divergência do feixe é pequena, diminuindo assim as perdas devido à sua inserção. Foram testados dois etalons, um sem filme anti-refletor com $200\mu\text{m}$ de espessura (free-spectral range $\text{FSRe} \sim 0,5\text{ THz}$ ou $\Delta\lambda = 3\text{ nm}$) e outro com

refletividade parcial ($R = 40\%$) com $100\mu\text{m}$ de espessura ($\text{FSR}_e \sim 1 \text{ THz}$ ou $\Delta\lambda = 6 \text{ nm}$). Para o estudo espectral dos modos oscilando no ressonador, a pequena porcentagem do laser que passava pelo espelho M3 foi dividida em dois. Uma parte foi inserida em um ressonador confocal de Fabry-Perot com um *free spectral range* de $\text{FSR} = 750\text{MHz}$ e *finesse* $F \approx 100$ que continha um piezoelétrico em um dos espelhos. Através da variação desse piezoelétrico foi possível verificar a quantidade de modos longitudinais oscilando dentro do ressonador. A outra parte foi utilizada para verificar o comprimento de onda de oscilação do laser através de um espectrômetro com alta resolução, Burleigh WA-1000.

Inicialmente foi caracterizada a oscilação do comprimento de onda fundamental, 1342nm . Para isso o espelho M3 foi trocado por um espelho com transmissão parcial em 1342nm e com o mesmo raio de curvatura de 10cm . Foram testadas três diferentes transmissões, 1% , 2% e 5% .

Figura 4.1: Ressonador em anel com o cristal não linear intracavidade utilizado para a obtenção do comprimento de onda de $670,97\text{nm}$.

Para a geração do segundo harmônico o espelho M3 foi novamente trocado por um espelho altamente refletor em 1342nm . O cristal não linear utilizado foi um BiBO do tipo I (ooe) com dimensões de $3 \times 3 \times 10 \text{ mm}^3$ cortado no plano xz com $\theta = 8,6^\circ$ e $\phi = 0^\circ$. O cristal tem um filme anti-refletor em $1,32\mu\text{m}$ e foi medida uma perda de aproximadamente 1% por face em 1342nm .

Para uma conversão eficiente, o cristal dobrador foi posicionado no centro dos dois espelhos curvos, na cintura do feixe no ressonador, com um raio de aproximadamente $50\mu\text{m}$. Quando introduzido o cristal não linear ($n_c = 1,77$), há uma mudança no caminho óptico entre os espelhos M3 e M4, e portanto, no comprimento total do ressonador. Esse fato causa uma mudança do tamanho do feixe laser dentro do meio ativo. Por esse motivo, após intro-

duzido o BiBO o tamanho do ressonador foi otimizado variando o caminho óptico entre o espelho M3 e M4, e portanto, o comprimento do ressonador até obter o melhor acoplamento entre o feixe laser e o feixe de bombeamento, e por consequência, obter a potência máxima no vermelho.

Uma das faces do BiBO tem um pequeno ângulo de $0,2^\circ$, permitindo uma sintonização contínua através da mudança do caminho óptico do ressonador, transladando o cristal. Com essa fina sintonização é possível obter exatamente o comprimento de onda necessário para a transição atômica do lítio.

4.2 Projeto Nd:YLF

4.2.1 Caracterização do cristal de ppKTP

Nesse trabalho optou-se por utilizar dois cristais não lineares diferentes, um BiBO com casamento de fase crítico e um ppKTP. Se compararmos esses cristais, o ppKTP apresenta diversas vantagens como um coeficiente não linear efetivo, d_{eff} , três vezes maior que o do BiBO tornando esse cristal extremamente eficaz para a geração de segundo harmônico. Além disso, como o casamento de fase nesse caso é feito por temperatura e não por ângulo, o walk-off é zero e, portanto a qualidade de feixe obtida no segundo harmônico é melhor que as obtidas com cristais como o BiBO, que tem um walk off de $1,4^\circ$. Esse casamento de fase faz com que não seja necessário realinhar o ressonador depois de introduzir o cristal como no caso do BiBO, onde há um pequeno desalinhamento. Porém, a grande dificuldade de se trabalhar com ppKTP reside no fato de a largura de aceitação espectral do casamento de fase ser muito estreita, $0,9\text{nm}$ contra $3,9\text{nm}$ do BiBO. Isso torna mais difícil obter o casamento de fase entre a temperatura de operação do cristal e o comprimento de onda incidente. Por isso, foi realizada uma análise prévia das características do ppKTP extracavidade.

O ppKTP (Raicol Crystals Ltd) utilizado tem dimensões de $5 \times 1 \times 10\text{mm}^3$ e um período de grade de $\Lambda \sim 16,9\mu\text{m}$. As faces do cristal apresentam filme anti-refletor para 1321nm e 661nm e uma delas tem um pequeno ângulo ($\sim 0,08^\circ$). O cristal foi montado em um suporte de cobre sobre um controlador de temperatura utilizando um *peltier*, com uma precisão de $0,1^\circ\text{C}$. Foi utilizado um laser sintonizável e polarizado de Nd:YLF operando em frequência única emitindo em torno de 1321nm . Através de espelhos de ouro e lentes de colimação o feixe de saída do laser foi focado dentro do cristal de ppKTP. Para de obter-se medidas

absolutas de potência em um único passo dentro do cristal, utilizou-se um fotodetector de silício calibrado. Uma vez que nem todos os fótons que passam pelo cristal geram o segundo harmônico, utilizamos dois filtros KG5 que bloqueiam os fótons em $1,3\mu\text{m}$ (verificar espectro no APÊNDICE A) e passam parcialmente os fótons na região de 660nm , Figura 4.2.

Figura 4.2: Configuração de geração de segundo harmônico extracavidade para a caracterização do ppKTP.

Inicialmente, verificou-se a largura de aceitação de temperatura do cristal não linear para diferentes cinturas de feixe laser dentro do mesmo. Para isso o laser foi mantido operando em frequência única em $1322,12\text{nm}$ e foram utilizadas duas lentes de focalização, sendo que a distância focal da lente próxima ao ppKTP foi variada para garantir que o cristal estivesse sempre posicionado na cintura do feixe. As distâncias focais das lentes estudadas foram de $7,5\text{cm}$, 10cm e 15cm gerando feixes com raios de $30\mu\text{m}$, $41\mu\text{m}$ e $92\mu\text{m}$. Esses tamanhos de feixe foram medidos utilizando um analisador de feixe. Uma vez que o laser operava no modo gaussiano pudemos então calcular o comprimento de Rayleigh para cada caso, dado por $z_R = \frac{\pi w_o^2}{\lambda}$, que é de $2,1\text{mm}$ para o feixe de $30\mu\text{m}$, 4mm para o feixe de $41\mu\text{m}$ e 20mm para o feixe de $90\mu\text{m}$. Uma vez que o comprimento do cristal utilizado é 10mm vemos que apenas quando usamos um feixe de $90\mu\text{m}$ temos o cristal dentro do parâmetro confocal, $b = 2z_R$, e portanto, temos que apenas nesse caso o feixe pode ser aproximado por um feixe colimado.

A seguir mediu-se a temperatura ótima de operação do cristal não linear em função do comprimento de onda incidente. Para a caracterização da temperatura, inicialmente sintonizamos o laser em um comprimento de onda e variamos a temperatura de operação do cristal não linear até obtermos o máximo de potência no vermelho. Essa medida foi feita em diferentes comprimentos de onda obtidos através da mudança no posicionamento do etalon dentro do ressonador laser. Estudou-se novamente dois raios de feixe dentro do cristal não linear, o primeiro com $41\mu\text{m}$ e o segundo com $144\mu\text{m}$. Dessa forma, foi possível analisar o compor-

tamento da geração do segundo harmônico para um feixe que pode ser aproximado por uma onda plana dentro do cristal e comparar o comportamento dessa curva quando utilizado o feixe do tamanho próximo ao que seria usado posteriormente no ressonador laser, em torno de $50\mu\text{m}$.

Por último, mediu-se a eficiência de conversão do ppKTP para um feixe com raio de $41\mu\text{m}$, em uma configuração de passo único, dada por $\Gamma = P_{2w}/P_w^2$ (equação 2.2.39). Essa medida foi realizada utilizando um *glan-laser*, que nada mais é que dois blocos de calcita cortados em ângulo de 45° cimentados um no outro formando um cubo ou um paralelepípedo. Como o laser é linearmente polarizado, variando o ângulo entre a polarização do laser e o ângulo do *glan-laser* foi possível variar a potência incidente no cristal não linear e verificar a potência gerada no vermelho. A voltagem medida foi então transformada para watts utilizando o fator de correção de $7,7 \cdot 10^5 \text{V/W}$ do fotodetector. A seguir a potência foi corrigida devido a perda gerada pela absorção dos filtros de KG5 em 660nm.

4.2.2 Ressonador de Nd:YLF

O laser de Nd:YLF foi desenvolvido para o estudo da transição atômica de dois fótons $^2S_{1/2} \rightarrow ^2D_{5/2}$ na prata no comprimento de onda de 661,325nm. Esse comprimento de onda pode ser obtido através da geração do segundo harmônico da transição $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ do Nd^{3+} na polarização π em uma matriz de YLF em 1321nm. Para a obtenção de um laser estável, sintonizável foi utilizada a mesma configuração do ressonador em anel descrito na seção 4.1.

O cristal de Nd:YLF (Crystech Inc.) utilizado tem dimensões de $3 \times 3 \times 10 \text{mm}^3$ e dopagem de 0,8mol% de neodímio, com filme anti-refletor nas duas faces laser em 1321nm ($R < 0,5\%$), 806nm ($R < 2\%$) e com uma pequena refletividade em 1050nm ($R < 20\%$) para evitar a oscilação na transição de mais alto ganho. O eixo c do cristal foi disposto paralelamente ao plano da mesa óptica. O cristal foi montado em um suporte de cobre, mantido à 11°C através de um sistema de refrigeração a água e envolto em uma folha de índio para uma melhor transmissão de calor. Optou-se por bombear esse cristal em 806nm, ao invés de no pico de absorção do Nd:YLF em 792nm, para diminuir a carga térmica dentro do cristal, diminuindo assim o risco de fratura do mesmo. A absorção foi de aproximadamente 90% da potência incidente quando bombeado em 806nm. Uma vez que os fluoretos tem um baixo limiar de fratura foi utilizada uma potência absorvida menor que 15W para evitar possíveis danos no cristal.

A operação unidirecional foi mantida através do mesmo TGG utilizado no laser de

Nd:YVO₄ e foi utilizada uma placa de meia onda para o comprimento de onda de 1319nm (comprimento de onda entre as duas emissões do Nd:YLF, 1314nm e 1321nm).

Uma vez que essa cavidade já foi previamente estudada utilizando um etalon com uma refletividade de 40% (ver seção 3.2), optou-se por um etalon com mais baixa refletividade ($R = 25\%$ e $100\mu\text{m}$ de espessura) com a finalidade de obter mais altas potências de saída no vermelho.

Figura 4.3: Foto do laser de Nd:YLF com o cristal ppKTP intracavidade.

Para a geração do segundo harmônico foi utilizado o ppKTP descrito na seção 4.2.1. O cristal foi montado em um suporte $xyz - \theta - \phi$ e o controle de temperatura do mesmo foi feito através de um *peltier*. O cristal foi disposto entre os dois espelhos curvos M3 e M4 com $R = 10\text{cm}$, onde se tem o menor foco do ressonador ($\sim 50\mu\text{m}$). Uma das faces do cristal tem um pequeno ângulo de $0,08^\circ$, assim, uma sintonização contínua da banda de ganho do Nd:YLF foi possível movendo o cristal na vertical. Isso possibilitou a obtenção do comprimento de onda da transição atômica da prata.

A Figura 4.3 mostra uma foto da cavidade ressonante do laser de Nd:YLF com todos os elementos intracavidade.

Capítulo 5

Resultados e discussões

5.1 Projeto Nd:YVO₄

A maior dificuldade em se trabalhar com óxidos é a instabilidade gerada pela forte lente térmica dentro desse tipo de meio ativo. No ressonador desenhado o meio ativo não se encontra em um dos focos, portanto o ressonador se torna mais sensível a influência da lente térmica. Por esse motivo, tentou-se diminuir essa lente através da utilização de um cristal com uma baixa dopagem, tendo assim uma melhor distribuição do calor dentro do mesmo porém mais comprido mantendo assim uma alta absorção da potência de bombeamento. Primeiramente, determinou-se a potência máxima que poderia ser colocada nesse cristal sem que houvesse instabilidade na cavidade. Para isso, a potência de incidência foi aumentada gradativamente até o instante que a potência de saída começava a não crescer mais linearmente. Foi verificado que a potência máxima incidente no cristal antes da instabilidade foi de 11,7W, resultando em 10,8W de potência absorvida, Figura 5.1. Para comprovar que esse comportamento se dava devido a instabilidade gerada pela lente térmica, fizemos uma pequena cavidade ressonante (aproximadamente 2,5cm de comprimento) composta por dois espelhos planos em torno do cristal, com um espelho de saída com transmissão de 0,5%, e mediu-se a potência de saída do laser em função da potência incidente.

A Figura 5.1 mostra o comportamento das cavidades ressonantes linear e em anel função da potência de entrada. Uma vez que o ressonador linear é muito pequeno, a lente térmica tem que ser muito forte para causar uma instabilidade. O mesmo não acontece no ressonador em anel devido ao seu longo comprimento e ao fato de o cristal não estar posicionado em um dos focos da cavidade. Isso indica que a instabilidade vista no ressonador em anel se dá

Figura 5.1: Potência de saída no infravermelho em função da potência incidente no cristal quando utilizada uma cavidade ressonante linear pequena e uma configuração em anel.

realmente devido a lente térmica induzida dentro do cristal e, portanto a potência incidente no cristal foi limitada em 11,7W.

Figura 5.2: Potência de saída no infravermelho versus potência absorvida pelo cristal para espelhos com diferentes transmissões.

Definida a potência máxima de incidência, foi montado o ressonador com o TGG e a placa de meia onda para a operação unidirecional, porém sem o etalon, para a caracterização

do infravermelho. Na Figura 5.2 é possível verificar o comportamento do ressonador com os diferentes espelhos com transmissão parcial estudados, 1%, 2% e 5%. A maior potência no infravermelho obtida foi de 1,7W quando utilizado um espelho com transmissão de 2%, com uma *slope-efficiency* de 17,1%. Para os espelhos com transmissão de 1% e 5% foram obtidas potências máximas de saída de 1,41W e 1,59W respectivamente. Operação em frequência única foi obtida até uma potência absorvida de 9,7W devido a perda introduzida pela transmissão do espelho para os modos longitudinais de mais baixo ganho. Porém essa operação não foi estável e apresentou mudança constante entre diferentes modos longitudinais, efeito chamado de *mode-hops*. Quando a potência foi aumentada para 11,7W o laser oscilou em dois modos longitudinais, Figura 5.4b. Uma vez que não havia nenhum elemento seletivo para o modo longitudinal dentro do ressonador, o laser oscilou em torno do comprimento de onda de maior ganho nessa transição, 1342,5nm.

Figura 5.3: Potência de saída no infravermelho quando utilizado o espelho com transmissão de 2% e os dois etalons diferentes, um sem filme refletor e outro com filme refletor ($R = 40\%$).

Definida a melhor transmissão do espelho de saída no infravermelho, estudamos o comportamento do ressonador com dois etalons, um com filme refletor e $100\mu\text{m}$ de espessura ($\Delta\lambda = 6\text{nm}$) e outro sem filme refletor e com $200\mu\text{m}$ de espessura ($\Delta\lambda = 3\text{nm}$). Para isso, utilizou-se o espelho com 2% de transmissão, o TGG e o etalon. A Figura 5.3 mostra a potência de saída no infravermelho em função da potência absorvida para os dois etalons estudados. É possível verificar que o etalon sem coating introduz uma perda pequena dentro do ressonador, sendo possível obter 1,55W contra 1,7W obtidos sem etalon intracavidade.

Figura 5.4: Espectro dos modos longitudinais oscilando no ressonador obtido através de um Fabry-Perot: (a) Modos longitudinais ressonantes quando utilizado um etalon intracavidade e (b) sem etalon intracavidade. A varredura feita pelo Fabry-Perot é mostrada em preto.

Já o laser com o etalon com filme refletor forneceu 1,37W. Ambos os laser operaram em frequência única de maneira estável, mantida pela inserção do etalon, Figura 5.4a. A seguir, mediu-se o perfil do ganho do Nd:YVO₄ utilizando os dois etalons, Figura 5.5.

Com o etalon sem filme refletor não foi possível fazer uma varredura completa na curva de ganho do Nd:YVO₄. Isso porque o etalon sem filme tem uma espessura de 200 μ m, o que significa uma diferença entre dois picos adjacentes de $\Delta\lambda = 3\text{nm}$, menor que a largura do ganho da matriz estudada, $\Delta\lambda_{\text{ganho}} \approx 3,5\text{nm}$. Dessa forma, quando utilizamos o etalon sem filme, para comprimentos de onda abaixo de 1341,83nm o laser passa a oscilar em comprimentos de onda em torno de 1343,5nm, que têm maior ganho. Por esse motivo, foi possível sintonizar o laser somente de 1341,83nm a 1343,5nm. Uma sintonização em toda a curva de ganho do Nd:YVO₄ só foi possível quando utilizado o etalon com 100 μ m de espessura e com $\Delta\lambda = 6\text{nm}$.

O ganho do Nd:YVO₄ mostrou-se assimétrico sendo mais estreito para comprimentos de onda menores. Uma explicação para esse fato pode ser devido a absorção do estado excitado (*excited-state absorption* - ESA) existente na polarização π da matriz de YVO₄ dopada com neodímio. Fornasiero et al. demonstraram que há uma transição do estado superior laser $^4F_{3/2}$ para o estado excitado $^4G_{7/2}$ com comprimento de onda em 1339,5nm e largura de banda de 2nm [49]. Dessa forma, os comprimentos de ondas mais baixos na transição centrada em 1342nm sofrem com reabsorção do estado superior laser resultando em uma assimetria na

curva de ganho do Nd:YVO₄.

Figura 5.5: Curva de sintonização do Nd:YVO₄ utilizando os dois diferentes etalons, um com 100 μ m de espessura e com filme refletor e outro com 200 μ m de espessura e sem filme refletor.

Para a geração do segundo harmônico, o espelho M3 com transmissão parcial foi trocado por um espelho com alta refletividade em 1342nm. O cristal foi montado em um posicionador $\theta - \phi - xyz$ e inserido entre os dois espelhos curvos. Um recorde de 682mW no vermelho foi obtido em frequência única no comprimento de onda de maior ganho (671,1nm) para uma potência absorvida de 10,5W, sem a inserção de nenhum etalon intracavidade, Figura 5.6. A seleção de um único modo longitudinal oscilando sem a inserção do etalon só é possível devido a baixa quantidade de modos longituniais oscilando em uma configuração em anel. Uma vez que a soma de frequência entre dois modos longitudinais distintos sofre uma perda duas vezes maior que a GSH entre o mesmo modo longitudinal [15, 63], a introdução do cristal não linear é suficiente para suprimir a soma de frequência e manter uma operação em frequência única no comprimento de onda de mais alto ganho. Essa seleção de um único modo longitudinal é ainda favorecida pelo fato da razão $\gamma = \Delta\lambda_{NL}/\Delta\lambda_{ganho}$ ser próxima da unidade, uma vez que a largura do ganho do Nd:YVO₄ nessa transição é $\Delta\lambda_{ganho} = 3,5$ nm e a largura de aceitação espectral do BiBO é de $\Delta\lambda_{NL} = 3,9$ nm, condição essa necessária para a obtenção de um laser de frequência única sem a necessidade de um elemento seletivo como um etalon, como demonstrado teoricamente na ref. [15].

Esse mesmo ressonador já foi previamente estudado pelo grupo do Dr. Jean-Jacques

Figura 5.6: Potência de saída no vermelho quando utilizado o BiBO em função da potência absorvida pelo Nd:YVO₄, sem e com o etalon.

Zondy utilizando uma matriz de Nd:YLF emitindo em 1321nm. Utilizando o mesmo cristal não linear e com um etalon com uma refletividade de 25%, R. Sarrouf *et al.* demonstraram 0,7W em frequência única em 660,7nm para uma potência absorvida de 8,7W [60]. Uma vez que intensidade de saturação do Nd:YVO₄ é igual a do Nd:YLF, era esperado que os dois lasers fornecessem a mesma potência de saída no vermelho. Porém, comparando os dois resultados é possível verificar que o laser de Nd:YLF mostraria uma potência de saída no vermelho mais elevada que o Nd:YVO₄ nas mesmas circunstâncias. Apesar de ambos os lasers terem demonstrado uma potência semelhante, o laser de Nd:YLF tinha um etalon com refletividade de 25% intracavidade e obteve esse resultado para uma potência absorvida mais baixa que o Nd:YVO₄. Devido a este motivo, foi medida a perda no filme antirefletor do BiBO, uma vez que esse foi especificado para ser antirefletor no centro entre as duas emissões do Nd:YLF, 1319nm. Para isso, incidiu-se o laser de Nd:YVO₄ no filme antirefletor e mediu-se a reflexão gerada utilizando um fotodetector e um amplificador de sinais. Foi medida uma perda de, aproximadamente, 1% por face no filme em 1342nm. Como a geração do segundo harmônico foi feita intracavidade essa perda de 1% por face demonstrou ser muito significativa e portanto não obtivemos um aumento na potência no vermelho em relação à obtida com o Nd:YLF no laser sem o etalon intracavidade, como era esperado. R. Sarrouf *et al.* demonstraram no mesmo trabalho que quando substituído um dos espelhos altamente

refletor para o infravermelho por um espelho com transmissão parcial de 0,5% a potência máxima no vermelho diminui dos 0,7W citado anteriormente para 0,5W. Isso demonstra que uma perda linear de 0,5% nessa cavidade gera um decréscimo de quase 30%, o que justifica o motivo pelo qual o nosso laser de Nd:YVO₄/BiBO produziu uma potência abaixo do esperado. Dessa forma, a utilização de um BiBO com um filme antirefletor para o comprimento de onda de 1342nm poderia produzir potências maiores no vermelho.

Para determinar a eficiência da GSH ajustou-se a equação 2.2.56 ao conjunto de dados sem etalon intracavidade. Através do melhor ajuste, o que forneceu o menor valor de χ^2 , obteve-se um valor para a potência de limiar de 0,52(12)W, $\frac{K_i h\nu}{B\tau} = 0,10(4)$ W e $y = 0,05$, mostrando que a eficiência de conversão obtida nesse laser com o BiBO ainda é bastante baixa. Uma vez que a eficiência na conversão do SH é proporcional a $\frac{wl}{w_0}$, para obter uma maior potência no vermelho utilizando um BiBO como cristal não linear seria então necessário utilizar um cristal mais longo, ou aumentar a razão entre o diâmetro do feixe dentro do cristal laser e do cristal não linear. Outra opção é a utilização de outro cristal não linear com um coeficiente não linear efetivo (d_{eff}) maior e/ou um *walk off* nulo.

Figura 5.7: Potência de saída do vermelho e do infravermelho, com o laser operando em frequência única, em função do comprimento de onda para uma potência absorvida de 9,5W.

Para a sintonização do laser utilizou-se o etalon com refletividade de 40%. Com a inserção do etalon é possível verificar uma maior estabilidade no ressonador devido à seletividade entre

os modos longituniais introduzida pelo etalon, porém com uma perda significativa na potência de saída do laser, Figura 5.6. A maior potência no vermelho nesse caso foi de 380mW.

Modificando o posicionamento do etalon foi possível sintonizar o laser por mais de 2,5nm em torno do ganho máximo, $\sim 1342,5\text{nm}$. A Figura 5.7 mostra a potência de saída no vermelho e a potência de saída do infravermelho por um espelho altamente refletor em 1342nm em função do comprimento de onda no infravermelho para uma potência absorvida de 9,5W. Através da comparação entre as duas curvas é possível verificar que a curva de ganho do cristal é estreitada quando o BiBO é inserido no ressonador devido a perda introduzida por esse cristal.

Devido a assimetria no perfil de ganho do Nd:YVO_4 discutida anteriormente, a potência na transição do lítio foi menor que 200mW. A largura espectral do laser foi estimada como sendo menor que 10MHz.

5.2 Projeto Nd:YLF

5.2.1 Caracterização do cristal de ppKTP

Na Figura 5.8 mostra-se a potência de saída no vermelho normalizada em função da temperatura de operação do ppKTP para as cinturas de feixe de $30\mu\text{m}$, $41\mu\text{m}$ e $90\mu\text{m}$.

Figura 5.8: Potência de saída no vermelho normalizada em função da temperatura do ppKTP para três diferentes raios de feixes para o comprimento de onda de 1322,12nm.

O comportamento do casamento de fase para onda plana do tipo $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ só é obtido quando utilizamos o feixe de $90\mu\text{m}$. Quando utilizados feixes fortemente focalizados, ou seja, feixes com o parâmetro confocal $b = 2z_R$ menor que o comprimento do cristal não linear, verificou-se uma deformação nesse comportamento e um deslocamento na temperatura ótima de operação do cristal. Enquanto para o caso de uma onda plana a temperatura para o casamento de fase é de 40°C , para feixes fortemente focalizados o casamento de fase ocorre para $T \sim 36^\circ\text{C}$. Isso se dá devido ao fato de o casamento de fase em feixes fortemente focados não ocorrer mais para $\sigma = \Delta k z_R = 0$ e sim para $\sigma \sim -0,2$ como já demonstrado por Zondy *et al.* [38, 64, 65].

A largura de aceitação de temperatura do ppKTP pôde então ser medida à meia altura das curvas do casamento de fase mostrado na Figura 5.8. Através dessas curvas pode-se observar que a forte focalização do feixe dentro do cristal não linear causa um aumento na largura de aceitação do cristal, além de causar uma assimetria para baixas temperaturas. A largura de aceitação medida é de $\Delta T = 16^\circ\text{C}$ para um diâmetro de $41\mu\text{m}$ e $\Delta T = 12^\circ\text{C}$ para o feixe de $90\mu\text{m}$, próximo ao valor obtido pela teoria de onda plana para GSH nesse cristal ($\Delta T_{\text{teorico}} = 9,9^\circ\text{C}$) [60].

Figura 5.9: Temperatura de operação ótima do ppKTP para o casamento de fase em função do comprimento de onda do laser incidente no cristal.

A seguir foi estudada a relação entre o comprimento de onda incidente no cristal e a temperatura de operação do ppKTP para o casamento de fase. Para isso, utilizando uma configuração de passo único, foi medida a temperatura de operação do ppKTP para o casa-

mento de fase em função do comprimento de onda incidente para feixes com $41\mu\text{m}$ e $144\mu\text{m}$ de cintura, Figura 5.9. Pode-se verificar que para uma onda plana a temperatura de operação do cristal para o casamento de fase é mais alta que para feixes focalizados, como já havia sido constatado na figura 5.8. Porém em ambos os casos a temperatura obtida foi mais alta do que a obtida na figura 5.8. Isso pode ser um indicativo que um alinhamento perpendicular entre a face de entrada do ppKTP e o feixe laser é bastante crítico. A relação obtida entre a temperatura do ppKTP e o comprimento de onda do laser é linear no intervalo de temperatura medido e através dessa curva foi possível operar o ppKTP em uma temperatura próxima da correta para o casamento de fase antes de inserí-lo no ressonador laser. Uma ajuste fino da temperatura do ppKTP para gerar a maior potência no SH pode ser feita com o cristal intracavidade, variando lentamente a temperatura do cristal ou mudando o comprimento de onda do laser.

Figura 5.10: Potência obtida no SH em função do quadrado da potência no fundamental incidente no cristal não linear para a determinação da eficiência de conversão do ppKTP quando utilizado um feixe focalizado com uma cintura de $41\mu\text{m}$.

A eficiência de conversão do SH foi medida apenas para uma cintura de feixe de $41\mu\text{m}$ uma vez que essa cintura era próxima do valor utilizado no ressonador laser. Essa eficiência foi medida através de uma configuração em passo simples para um comprimento de onda de 1321nm , Figura 5.10. Como mostrado na seção 2.2.4 a eficiência de conversão do SH é dada por $\Gamma = P_{2\omega}/P_{\omega}^2$ e, portanto pode ser determinada através do coeficiente angular da reta ajustada aos pontos da potência no SH em função do quadrado da potência no fundamental

incidente no cristal. O valor obtido para a eficiência de conversão foi de $\Gamma = 0,037(3)W^{-1}$ e para o coeficiente linear foi $-1,9(10) \cdot 10^{-7}W$, portanto compatível com zero como o esperado.

5.2.2 Ressonador de Nd:YLF

Uma vez que a largura de aceitação espectral do ppKTP é muito pequena, a maior dificuldade na utilização desse cristal para a GSH reside na dificuldade em se obter um perfeito casamento entre o comprimento de onda de oscilação do laser e a temperatura de operação do cristal não linear. Para obter a GSH, primeiramente ajustou-se o posicionamento do etalon para a operação do laser de maneira estável em um comprimento de onda específico. Uma vez escolhido um comprimento de onda de operação, a temperatura de operação do ppKTP pôde ser determinada através da curva mostrada na Figura 5.9. O cristal foi então introduzido no ressonador laser já na temperatura ideal e a potência máxima no vermelho foi obtida através de um ajuste fino, para o perfeito casamento de fase, transladando o ppKTP e mudando o ângulo do etalon, quando necessário. Uma vez obtido o perfeito casamento de fase, uma potência máxima de 1,4W no vermelho na região de maior ganho foi obtida, Figura 5.11. Para obtermos o comportamento da potência no vermelho em função da potência absorvida pelo cristal, foi feito um pequeno realinhamento do etalon ou do ppKTP, uma vez que com a variação da potência de bombeamento o laser passava a oscilar em outro modo longitudinal, fazendo assim com que não fosse mais obtido o perfeito casamento de fase. Apesar da dificuldade em se obter esse casamento, uma vez atingido, o laser permaneceu estável com uma queda de apenas 1% na potência máxima em um período de uma hora.

Para determinar a eficiência da GSH ajustou-se a equação 2.2.56 ao conjunto de dados sem etalon intracavidade. Através do melhor ajuste, o que forneceu o menor valor de χ^2 , obteve-se um valor para a potência de limiar de 1,7W, $\frac{K_i h\nu}{B\tau} = 0,38W$ e $y = 1$, mostrando que a eficiência de conversão do SH desse laser é ótima, e portanto, a potência obtida no vermelho é a máxima que pode ser obtida nesse laser. Essa potência obtida é a mesma potência obtida para esse laser no infravermelho quando utilizado o mesmo etalon com refletividade de 25% e com um espelho de saída com transmissão de 2% [66]. Uma vez que o ppKTP tem um alto d_{eff} essa eficiência máxima pode ser obtida, o mesmo não pode ser verificado em trabalhos anteriores quando utilizados cristais não lineares com coeficiente efetivo não linear menor, como o BiBO e o LBO [60].

O feixe laser no vermelho apresentou uma ótima qualidade com um $M^2 = 1,05(4)$ e $1,03(8)$, na horizontal e vertical, respectivamente. Essa boa qualidade só pode ser obtida pelo fato de

Figura 5.11: Potência do laser operando em frequência única no vermelho em função da potência absorvida do bombeamento quando utilizado um etalon com refletividade de 25%.

o ppKTP possuir um *walk off* igual a zero. Quando utilizado o BiBO como cristal não linear a mesma qualidade não pôde ser observada [60].

Figura 5.12: Medida da qualidade de feixe do vermelho.

Devido a estreita largura de aceitação espectral do ppKTP, $\Delta\lambda_{ppKTP} = 0,9nm$, quando este era inserido no ressonador laser sem a presença do etalon ou fora da temperatura para o

casamento de fase, o laser se tornava bidirecional novamente e a potência de saída no vermelho era bem baixa, em torno de 100mW em cada saída. Uma operação unidirecional não pôde ser obtida mesmo rotacionando a placa de meia onda. O espectrômetro não conseguia mais determinar o comprimento de onda do laser e a cavidade de Fabry-Perot mostrou um espectro contínuo, Figura 5.13c, diferentemente do espectro obtido para o caso do laser operando multimodo ou em frequência única, Figura 5.13a e b. Esse espectro contínuo obtido pelo Fabry-Perot indica que o laser entra em um regime onde há um trem de pulsos tão curtos que não podem ser detectados pelo detector utilizado devido a baixa taxa de aquisição. Esse comportamento é devido a um processo em cascata do tipo $\chi^2 : \chi^2$ e não é observado quando utilizados cristais tais como, BBO, BiBO e LBO, que apresentam uma grande largura de aceitação se comparada com a largura do ganho do cristal laser e mais baixo coeficiente não linear efetivo. O comportamento desse laser em regime de *mode-locking* foi amplamente estudado pelo Dr. Jean-Jacques Zondy posteriormente a realização desse trabalho [66].

Figura 5.13: Espectro obtido com o Fabry-Perot. Em (a) é mostrado a operação em multimodo sem a presença do etalon intracavidade. Em (b) operação em frequência única obtida com um etalon com refletividade de 25%. Em (c), o regime temporal consiste em um trem de pulsos curtos que é registrado no Fabry-Perot de maneira contínua.

Uma vez que esse laser foi desenvolvido para espectroscopia atômica de alta resolução, foi verificado o comportamento da potência no vermelho em todo o ganho do cristal de Nd:YLF. Para isso, foi rotacionado o etalon e em seguida foi ajustada a temperatura do ppKTP para que se obtivesse o casamento de fase para o novo comprimento de onda oscilante no

Figura 5.14: Potência do laser operando em frequência única no vermelho em função do comprimento de onda do laser e da temperatura de operação do cristal não linear.

ressonador. O laser pôde ser sintonizado em toda a região de ganho com uma largura de $\Delta\lambda_{2w} \sim 1,5\text{nm}$, Figura 5.14. Através desse gráfico, é possível verificar que esse laser fornece mais de 0,7W na transição atômica de interesse na prata. A largura espectral do laser foi estimada em 2MHz.

Através do gráfico de sintonia do laser, Figura 5.14, foi possível determinar a temperatura de operação do ppKTP para o casamento de fase em função do comprimento de onda de oscilação do laser para o cristal intracavidade. Na Figura 5.15 é mostrada a temperatura de operação do cristal não linear em função do comprimento de onda do laser para uma configuração extracavidade e intracavidade. É possível observar que há uma diferença de aproximadamente 10°C entre as duas configurações porém a inclinação da curva é a mesma para ambos os casos. Vale ressaltar que essa diferença não pode ser explicada através dos erros experimentais da medida que não excedem 2°C . Uma possível explicação para esse comportamento é a complexa dinâmica da geração de segundo harmônico intracavidade de lasers através da utilização de cristais não lineares com uma largura de aceitação pequena se comparada com o ganho do laser ($\gamma = \Delta\lambda_{NL}/\Delta\lambda_{ganho} < 1$). A dinâmica desses lasers já foi estudada teórica e experimentalmente por S. Greenstein e M. Rosenbluh e foi demonstrado que a competição entre modos longitudinais faz com que o laser oscile em um modo longitudinal diferente do observado na configuração extracavidade fazendo com que a temperatura

para o casamento de fase seja mais alta no caso da GSH intracavidade [67, 68].

Figura 5.15: Temperatura de operação do ppKTP extracavidade e intracavidade para o casamento de fase.

Capítulo 6

Conclusões

Utilizando uma cavidade óptica com configuração em anel operando unidirecionalmente, demonstrou-se o funcionamento de dois lasers sintonizáveis em frequência única na região do vermelho.

Quando utilizado um meio ativo de Nd:YVO₄, demonstrou-se um recorde de 680mW em frequência única em 671nm utilizando um BiBO como cristal não linear para a geração do segundo harmônico sem a necessidade de um elemento seletivo intracavidade. Porém a eficiência na geração do segundo harmônico foi baixa nesse laser ($\eta = 0,05$). Esta eficiência poderia ser aumentada utilizando um cristal não linear mais longo ou com um coeficiente efetivo não linear maior e com um *walk off* nulo, como por exemplo, um ppKTP. Ou ainda, variando a relação entre os raios do feixe laser dentro do YVO₄ e do BiBO. Uma maior potência poderia também ser obtida através de uma configuração com bombeamento duplo, diminuindo assim a lente térmica no Nd:YVO₄ e possibilitando uma maior potência de bombeamento. Utilizando um etalon intracavidade conseguiu-se sintonizar o laser em todo o ganho do cristal, com 350mW no comprimento de onda de maior ganho.

Para a obtenção de um laser na região do 660nm, utilizou-se um cristal de Nd:YLF como meio ativo laser e um cristal não linear de ppKTP. Na região de maior ganho, obteve-se 1,4W no vermelho. Através do etalon foi possível sintonizar o laser em todo o ganho, $\Delta\lambda_{2\omega} \sim 1,5\text{nm}$. Utilizando um ppKTP de 10mm foi possível obter o máximo de potência que pôde ser extraída dessa cavidade ressonante, demonstrando assim eficiência máxima de conversão ($\eta = 1$).

Apêndice A

Espectro de transmissão do filtro KG5, Newport Corporation.

Figura 6.1: Espectro de transmissão do filtro utilizado para bloquear a emissão em $1,3\mu\text{m}$ fornecido pelo fabricante (Newport Corp.).

Referências Bibliográficas

- 1 STUDENIKIN, P. et al. GdVO₄ as a new medium for solid-state lasers: some optical and thermal properties of crystals doped with Cd³⁺, Tm³⁺, and Er³⁺ ions. *Quantum Electronics*, v. 24, p. 1162 – 1165, Dec 1995.
- 2 PENG, X. et al. Study of the mechanical properties of Nd:YVO₄ crystal by use of laser interferometry and finite-element analysis. *Appl. Opt.*, v. 40, p. 1396–1403, Mar 2001.
- 3 MA, Z. et al. Opt. comm. *Thermal effects of the diode end-pumped Nd:YVO₄ slab*, v. 275, p. 179–185, Jul 2007.
- 4 KOECHNER, W. Thermal lensing in a nd:yag laser rod. *Appl. Opt.*, v. 9, p. 2548–2553, Nov. 1970.
- 5 POLLNAU, M. et al. Upconversion-induced heat generation and thermal lensing in Nd:YLF and Nd:YAG. *Phys. Rev. B*, v. 58, p. 16076–16092, Dec. 1998.
- 6 GHOTBI, M.; EBRAHIM-ZADEH, M. Optical second harmonic generation properties of BiB₃O₆. *Opt. Exp.*, v. 12, p. 6002–6019, Nov. 2004.
- 7 TARGAT, R. L.; ZONDY, J.-J.; LEMONDE, P. 75%-efficiency blue generation from an intracavity PPKTP frequency doubler. *Opt. Comm.*, v. 247, p. 471–481, Mar. 2005.
- 8 WANG, C.; LIN, S. Performance of a large-bore high-power argon ion laser. *J. Appl. Phys.*, v. 44, p. 4681–4682, Oct 1973.
- 9 BLOOM, A. Gas laser. *Appl. Opt.*, v. 5, p. 1501–1514, Oct 1966.
- 10 YARBOROUGH, J. Cw dye laser emission spanning the visible spectrum. *Appl. Phys. Lett.*, v. 24, p. 629–630, Jun 1974.
- 11 JONHSTON, T.; BRADY, R.; PROFFITT, W. Powerful single-frequency ring dye laser spanning the visible spectrum. *Appl. Opt.*, v. 21, p. 2307–2316, Jul 1982.

- 12 HASSE, M. et al. *Blue-Green Laser Diodes*. Mar 1994.
- 13 PASCHOTTA, R. et al. 230mw of blue light from a thulium-doped upconversion fiber laser. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, v. 3, p. 1100–1102, Aug 1997.
- 14 SANDROCK, T. et al. High-power continuous-wave upconversion fiber laser at room temperature. *Opt. Lett.*, v. 22, p. 808–810, Jun 1997.
- 15 ZHENG, Y. et al. Four watt long-term stable intracavity frequency doubling Nd:YVO₄ laser of single-frequency operation pumped by a fiber-coupled laser diode. *Appl. Opt.*, v. 46, p. 5336–5339, Aug 2007.
- 16 HARDMAN, P.; CLARKSON, W.; HANNA, D. High-power diode-bar-pumped intracavity-frequency-doubled Nd:YLF ring laser. *Opt. Comm.*, v. 156, p. 49–52, Nov 1998.
- 17 LOUYER, Y. et al. Nd:YLF laser at 1.3 μm for calcium atom optical clocks and precision spectroscopy of hydrogenic systems. *Appl. Opt.*, v. 42, p. 4867–4870, Aug 2003.
- 18 FORTIER, T. et al. Kilohertz-resolution spectroscopy of cold atoms with an optical frequency comb. *Phys. Rev. Lett.*, v. 97, p. 163905, Oct. 2006.
- 19 UHLENBERG, G.; DIRSCHERL, J.; WALTHER, H. Magneto-optical trapping of silver atoms. *Phys. Rev. A*, v. 62, p. 063404, Nov 2000.
- 20 CARR, A. *Hyperfine Studies of Lithium Vapor using saturated absorption spectroscopy*. Dissertação (Mestrado) — University of Arizona, 2007.
- 21 LOUYER, Y. et al. Efficient cw operation of diode-pumped Nd:YLF lasers at 1321.0 and 1322.6nm for silver atom optical clock. *Opt. Comm.*, v. 217, p. 357–362, Mar 2003.
- 22 AGNESI, A.; GUANDALANI, A.; REALI, G. Efficient 671-nm pump source by intracavity doubling of a diode-pumped Nd:YVO₄ laser. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 19, p. 1078–1082, May 2002.
- 23 OGILVY, H. et al. Efficient diode double-end-pumped Nd:YVO₄ laser operation at 1342nm. *Opt. Exp.*, v. 11, p. 2411–2415, Sep 2003.
- 24 YAO, A. et al. High-power cw 671nm output by intracavity frequency doubling of a double-end-pumped Nd:YVO₄ laser. *Appl. Opt.*, v. 44, n. 33, p. 7156–7160, Nov 2005.

- 25 ZAYHOWSKI, J. J. Limits imposed by spatial hole burning on the single-mode operation of standing-wave laser cavities. *Opt. Lett.*, v. 15, p. 431–433, Apr. 1990.
- 26 BOYD, R. *Nonlinear Optics*. [S.l.]: Academic Press, 1992.
- 27 SUTHERLAND, R. L. *Handbook of Nonlinear Optics*. 2° edição. ed. [S.l.]: Marcel Dekker Inc, 2003.
- 28 MARTINELLI, M. *Compressão de ruído quântico e efeitos transversos em osciladores paramétricos óticos*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, 2002.
- 29 YARIV, A.; YEH, P. *Optical waves in crystal - propagation and control of laser radiation*. [S.l.]: John Wiley & Sons, 1984.
- 30 KOECHNER, W.; BASS, M. *Solid-State Laser - A graduate text*. [S.l.]: Springer, 2003.
- 31 BOYD, G. et al. Second-harmonic generation of light with double refraction. *Phys. Rev.*, v. 137, p. A1305–A1320, Feb. 1965.
- 32 KARLSSON, H.; LAURELL, F. Electric field poling of flux grown KTiOPO₄. *Appl. Phys. Lett.*, v. 71, p. 3474–3476, Dec. 1997.
- 33 HOUE, M.; TOWNSEND, P. An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation. *J. Phys. D*, v. 28, p. 1747–1763., Jun 1995.
- 34 ROSENMAN, G. et al. Low temperature periodic electrical poling of flux-grown KTiOPO₄ and isomorphic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, v. 73, p. 3650–3652, Dec 1998.
- 35 FEJER G.A. MAGEL, D. J. M.; BYER, R. Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances. *IEEE J. Quantum Electron.*, v. 28, p. 2631–2654, Nov. 1992.
- 36 KLEINMAN, D. Theory of second harmonic generation of light. *Phys. Rev.*, v. 128, p. 1761–1775, Nov. 1962.
- 37 BOYD, G.; KLEINMAN, D. Parametric interaction of focused gaussian light beams. *J. Appl. Phys.*, v. 39, p. 3597–3639, Jul. 1968.
- 38 ZONDY, J.-J. Comparative theory of walkoff-limited type-ii versus type i second harmonic generation with gaussian beams. *Opt. Comm.*, v. 81, p. 427–440, Mar 1991.

- 39 KLEINMAN, D.; ASHKIN, A.; BOYD, G. Second- harmonic generation of light by focused laser beams. *Phys. Rev.*, v. 145, p. 338–378, May 1966.
- 40 POLLONI, R.; SVELTO, O. Optimum coupling for intracavity second harmonic generation. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-4, p. 528–530, Sept 1968.
- 41 SMITH, R. Theory of intracavity optical second-harmonic generation. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-6, p. 215–223, Apr 1970.
- 42 SARROUF, R. et al. Watt-level single-frequency tunable Nd:YLF/periodically poled KTiOPO₄ red laser. *Opt. Lett.*, v. 32, p. 2732–2734, Sep 2007.
- 43 LIETO, A. di et al. 7w diode-pumped Nd:YVO₄ cw laser at 1,34 μ m. *Appl. Phys. B*, v. 73, p. 463–466, Oct 2002.
- 44 PAVEL, N.; LUPEI, V.; TAIRA, T. 1,34 μ m efficient laser emission in highly-doped Nd:YAG under 885nm diode pumping. *Opt. Exp.*, v. 13, p. 7948–7953, Oct 2005.
- 45 ZHOU, R. et al. 26,3w continuous-wave, diode-doubled-end-pumped all solid state Nd:GdVO₄ laser operating at 1,34 μ m. *Opt. Comm.*, v. 281, p. 3510–3513, Jul 2008.
- 46 CHANG, Y. et al. Comparison of thermal lensing effects between single-end and double-end diffusion-bonded Nd:YVO₄ crystals for $^4f_{3/2} \rightarrow ^4i_{11/2}$ and $^4f_{3/2} \rightarrow ^4i_{13/2}$ transitions. *Opt. Exp.*, v. 16, p. 21155 – 21160, Dec 2008.
- 47 EGGLESTON, J. et al. The slab geometry laser-part i: Theory. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-20, p. 289–301, Mar 1984.
- 48 KRENNRICH, D. et al. A comprehensive study of Nd:YAG, Nd:YAlO₃, Nd:YVO₄ and Nd:GdVO₄ lasers operating at wavelengths of 0.9 and 1.3 μ m. part 1: cw-operation. *Appl. Phys. B*, v. 92, p. 165–174, Jun 2008.
- 49 FORNASIERO, L. et al. Excited state absorption and stimulated emission of Nd³⁺ in crystals. Part 2: YVO₄, GdVO₄ and Sr(PO₄)₃F. *Appl. Phys. B*, v. 67, p. 549–553, May 1998.
- 50 JENSEN, T. et al. Spectroscopic characterization and laser performance of diode-laser-pumped Nd:GdVO₄. *Appl. Phys. B*, v. 58, p. 373–379, Jan 1994.
- 51 DING, X. et al. High-efficiency direct-pumped Nd:YVO₄ laser operating at 1.34 μ m. *Opt. Exp.*, v. 16, p. 11247–11252, Jul 2008.

- 52 Lü, Y.-F. et al. High-efficiency Nd:GdVO₄ laser at 1341nm under 880nm diode laser pumping into the emitting level. *Opt. Comm.*, v. 282, p. 3565–3567, Sep 2010.
- 53 LENHARDT, F. et al. High-power 888nm-pumped Nd:YVO₄ 1342nm oscillator operating in the TEM₀₀ mode. *Appl. Phys. B*, v. 96, p. 803–807, May 2009.
- 54 FORNASIERO, L. et al. Excited state absorption and stimulated emission of Nd³⁺ crystals III: LaSc₃(BO₃)₄, CaWO₄, and YLiF₄. *Appl. Phys. B*, v. 68, p. 67–72, Jan. 1999.
- 55 Lü, Y. et al. High-efficiency direct-pumped Nd: YLF laser operating at 1321 nm. *Appl. Phys. B*, v. 98, p. 305–309, Feb. 2010.
- 56 FRADKIN, K. et al. Tunable midinfrared source by difference frequency generation in bulk periodically poled KTiOPO₄. *Appl. Phys. Lett.*, v. 74, p. 914–916, Feb 1999.
- 57 THORLABS. <http://www.thorlabs.com/catalogPages/693.pdf>. [S.l.].
- 58 DU, C. et al. High-power intracavity second-harmonic generation of 1.34 μm in BiB₃O₆ crystal. *Opt. Exp.*, v. 13, p. 8591–8595, Oct. 2005.
- 59 BALEMBOIS, F. et al. Efficient diode-pumped intracavity frequency-doubled cw Nd:YLF laser emitting in the red. *Opt. Las. Tech.*, v. 38, p. 626–630, Nov. 2006.
- 60 SARROUF, R.; BADR, T.; ZONDY, J.-J. Intracavity second-harmonic generation diode-pumped continuous-wave, single-frequency 1.3 μm Nd:YLiF₄ lasers. *J. Opt. A. Pure Appl. Opt.*, v. 10, p. 104011 (10p), Maio 2008.
- 61 AGNESI, A.; REALI, G.; GOBBI, P. 430-mw single-transverse-mode diode pumped Nd:YVO₄ laser at 671nm. *IEEE J. Quantum Electron.*, v. 34, p. 1297–1300, Jul. 1998.
- 62 SENNAROGLU, A. Efficient continuous-wave operation of a diode-pumped Nd:YVO₄ laser at 1342nm. *Opt. Comm.*, v. 164, p. 191–197, Jun 1999.
- 63 MARTIN, K. I.; CLARKSON, W. A.; HANNA, D. C. Self-suppression of axial mode-hopping by intracavity second-harmonic generation. *Opt. Lett.*, v. 22, p. 375–377, Mar 1997.
- 64 ZAVELANI-ROSSI, M.; CERULLO, G.; MAGNI, V. Mode-locking by cascading of second-harmonic nonlinearities. *IEEE J. Quantum Electron.*, v. 34, p. 61–70, Jan. 1998.

- 65 ZONDY, J.-J. et al. Second-harmonic generation with monolithic walk-off-compensating periodic structures. II Experiments. *J. Opt. Soc. Am. B*, v. 20, p. 1695–1707, Aug 2003.
- 66 ZONDY, J.-J. et al. Observation of strong cascaded kerr-lens dynamics in an optimally-coupled cw intracavity frequency-doubled Nd:YLF ring laser. *Opt. Exp.*, v. 18, p. 4796–4815, Mar. 2010.
- 67 GREENSTEIN, S.; ROSENBLUH, M. Dynamics of cw intra-cavity second harmonic generation by ppKTP. *Opt. Comm.*, v. 238, p. 319–327, Apr. 2004.
- 68 GREENSTEIN, S.; ROSENBLUH, M. The influence of nonlinear spectral bandwidth on single longitudinal mode intra-cavity second harmonic generation. *Opt. Comm.*, v. 248, p. 241–248, Apr. 2005.