UNIVERSIDADE FEDERAL DA PARAÍBA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA – CCEN

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

ESTUDO EXPERIMENTAL DA REFRAÇÃO NÃO LINEAR EM VAPOR DE CÉSIO UTILIZANDO A TÉCNICA Z-SCAN

por

VALDECI MESTRE DA SILVA JÚNIOR

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da Universidade Federal da Paraíba como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre em Física.

Banca Examinadora:

Prof.ª Martine Chevrollier (Orientadora-UFPB)

Prof. Thierry M. Passerat de Silans (DF-UFPB)

Prof. Tomaz Catunda (IFSC-USP)

João Pessoa – PB, Brasil
Outubro - 2011

ESTUDO EXPERIMENTAL DA REFRAÇÃO NÃO LINEAR EM VAPOR DE CÉSIO UTILIZANDO A TÉCNICA Z-SCAN

por

VALDECI MESTRE DA SILVA JÚNIOR

Dissertação apresentada ao Departamento de Física da Universidade Federal da Paraíba como para dos pré-requisitos para obtenção do título de Mestre em Física.

Área de concentração: Física Atômica e Molecular

Aprovada por:

Prof.ª Martine Chevrollier (DF-UFPB)
Orientadora

Prof. Thierry M. Passerat de Silans (DF-UFPB)

Prof. Tomaz Catunda (IFSC-USP)

AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO, PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA.

S586e Silva Júnior, Valdeci Mestre da.
Estudo experimental da refração não linear em vapor de césio utilizando a técnica z-scan / Valdeci Mestre da Silva Júnior.-- João Pessoa, 2011.
136f. : il.

Orientadora: Martine Chevrollier

Dissertação (Mestrado) – UFPB/CCEN

1. Física Atômica e Molecular. 2. Técnica z-scan. 3. Ótica não-linear. 4. Varredura z. 5. Césio.

UFPB/BC CDU: 539.1(043)

“A vida é como andar de bicicleta:
Para manter o equilíbrio é preciso se manter em movimento.”

Albert Einstein, em 5/2/1930

AGRADECIMENTOS

Quero agradecer a Deus pelo presente da vida, por ter me dado saúde para desfrutar plenamente desse presente.

Aos Professores Oriá e Martine pela orientação, paciência, ensinamentos, amizades e confiança depositada em mim. Sendo uma honra desenvolver este trabalho sobre a orientação de pessoas de muitas virtudes.

Aos professores do Departamento de Física da UFPB, especialmente a Fernando Moraes, Alexandre Rosas, Dionísio Bazeia e Cláudio Furtado. Aos professores Orlando Di Lorenzo, Luimar Cavalcanti e Paulo Cesar pelo apoio. Aos Professores Tomaz Catunda e Thierry pela participação na minha defesa de dissertação. Ao técnico Manoel Brasileiro pela ajuda indispensável na parte eletrônica. Ao técnico Eduardo Macedo da oficina mecânica pelo apoio na parte de fabricação de peças.

Aos colegas Weliton e Fabiano pela amizade, pelos ensinamentos do dia a dia de trabalho no laboratório, pelas sugestões durante o desenvolvimento desse trabalho e pela colaboração quanto à discussão dos resultados obtidos. Suas contribuições foram de suma importância para realização desse trabalho. Aos amigos de laboratório: Taciano Sorrentino, Bertúlio, Cesar Soares, Rubens, Marcos, Gilson, Samuel e Eduardo pelos momentos de discussão e descontração. A todos vocês desejo muito sucesso.

À minha família por sempre me apoiar de forma direta ou indireta. Agradeço a todos os meus parentes, em especial aos meus primos Sivaldo e Josenildo e meu tio João e tia Gloria, que sempre me incentivaram a lutar para realizar os meus sonhos. Agradeço aos meus pais, em especial à minha querida mãe, pelo carinho e ensinamentos de vida. Agradeço ainda a minhas irmãs Fabrícia e Flávia e ao meu cunhado Júnior pelo apoio fornecido nos momentos mais difíceis durante a realização deste trabalho.

Agradeço a minhas amigas Adjane, Alane, Cida, Elaine, Elizangela, Erica, Gabriela, Gissele, Jessica, Juliana, Kamila, Mara, Meiryele, Mirleide, Monique, Patricia, Pollyanna, Simone, Sinara e Soraya pela amizade, incentivos e momentos de descontração.

À minha namorada Rayssa Anc'ley por todo o carinho, a paciência e o apoio fornecido na realização deste trabalho.

Aos professores Jobson Francisco e Arnaldo Vilela pelo apoio na parte de fabricação (mecânico e eletrônico) do 1º sistema de translação.

Ao meu sobrinho, Daniel Mestre de Lucena, que me proporciona muita alegria e diversão.

E todos aqueles que direta ou indiretamente contribuíram para o andamento deste trabalho.

Agradeço a CAPES pelo suporte financeiro.

Enfim, agradeço a todos os que me ajudaram.

ÍNDICE

RESUMO 3

ABSTRACT 4

LISTA DE FIGURAS 5

LISTA DE TABELAS 11

INTRODUÇÃO 12

CAPÍTULO 1: ESPECTROSCOPIA LASER 15

1.1 BREVE INTRODUÇÃO DO LASER 15

1.2 ÓTICA GAUSSIANA. 25

1.3 O CÉSIO. 31

1.4 MATRIZ DENSIDADE 38

CAPÍTULO 2: FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA 45

2.1. CONCEITOS DE ÓTICA NÃO-LINEAR 45

2.2. DESCRIÇÃO TEÓRICA DA TÉCNICA Z-SCAN DE TRANSMISSÃO 53

2.2.1 *Refração não-linear* 59

CAPÍTULO 3: MONTAGEM EXPERIMENTAL 70

3.1 INTRODUÇÃO 70

3.2 EQUIPAMENTOS 71

3.2.1 *Fonte laser*. 71

3.2.2 *A Célula* 77

3.2.3 *Transladador*. 80

3.2.4 *Ajuste do feixe para ter um perfil gaussiano* 81

CAPÍTULO 4: RESULTADOS OBTIDOS 86

4.1. O Meio Não-Linear 86

4.2. Temperatura 87

4.3. A Potência 89

CAPÍTULO 5: CONCLUSÕES 107

APÊNDICES 109

APÊNDICE A – *"Knife-EdgeTechnique"* 110

APÊNDICE B – A Preparação do *Vácuo na Célula* 115

APÊNDICE C – Redução à Forma *SVEA (Slowly Varying Envelope Approximation* 117

APÊNDICE D – Absorção Saturada 119

APÊNDICE E – *ANGELLS* 124

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS 129

RESUMO

A técnica de z-scan (varredura–z) consiste na medição da variação da intensidade de um feixe laser Gaussiano induzida por auto-focalização ou auto-desfocalização quando o feixe se propaga através de um meio não-linear. Estas variações são medidas através da detecção do feixe transmitido por uma abertura pequena, fixa. Após o trabalho seminal de Sheik-Bahae e outros [30] em 1990, muitos trabalhos foram feitos estudando a não-linearidade de sólidos com esta técnica. Por comparação, muito pouco tem sido feito com vapores atômicos ressonantes, mas resultados ricos foram obtidos devido às susceptibilidades atômicas muito elevadas na ressonância [33,42].

Neste trabalho relatamos nossas medições utilizando um feixe laser focalizado enviado através de um vapor térmico de césio. Nós realizamos muitas varreduras z para diferentes freqüências do laser nas asas da transição D_2 com alargamento Doppler do césio ($6S_{1/2}$ – $6P_{3/2}$ em 852 nanômetros) e observamos as mudanças na radiação transmitida através de uma abertura fixa.

ABSTRACT

The z-scan technique consists in measurement of the variation of the radial intensity of a Gaussian laser beam induced by self-focusing or self-defocusing while propagating through a nonlinear medium. These variations are deduced through detection of the beam transmitted through a small, fixed aperture. After the seminal work by Sheik-Bahae *et al*. [30] in 1990, a lot of work has been done studying the nonlinearity of solids. By comparison, very little has been done with resonant atomic vapors, but rich results were obtained due to the very high atomic susceptibilities at resonance [33, 42].

In this work we report our measurements using a focused laser beam sent through a thermal cesium vapor. We have carried out many runs of z-scan for different frequencies of the laser tuned in the wings of the cesium Doppler-broadened D_2 transition ($6S_{1/2}$-$6P_{3/2}$ at 852 nm) and observed the changes in the radiation transmitted through a fixed aperture.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1. Primeiro laser de Rubi.....17

Figura 2. Configuração esquemática de um laser.....19

Figura 3. a, b. Princípio simplificado de um laser semicondutor. (a) Estrutura de um diodo laser (b) O regime do nível da banda de valência com a de condução e a recombinação radioativa de elétrons com buracos.....25

Figura 4. Distribuição da intensidade de um feixe laser gaussiano.....28

Figura 5. Propagação de um feixe laser gaussiano.....29

Figura 6. Focalização de um feixe laser gaussiano.....31

Figura 7. Ampola de césio no estado líquido na temperatura ambiente.....32

Figura 8. Estrutura hiperfina da transição D_2 do césio, com os deslocamentos em freqüência entre os níveis de energia hiperfinos.....35

Figura 9. Pressão de vapor do césio em função da temperatura. A linha vertical tracejada indica o ponto de fusão [19].....37

Figura 10. Sistema de dois níveis interagindo com um campo eletromagnético de freqüência ω, sendo $|0\rangle$ o estado fundamental, $|1\rangle$ o estado excitado e ω_{10} a freqüência de transição do átomo. Δ_{10} é a dessintonia da freqüência ótica do campo em relação à freqüência da transição atômica.....39

Figura 11. Comportamento das partes real e imaginária do índice de refração complexo em função da freqüência.....50

Figura 12. Autofocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano (frente de onda $\approx$ esférica) por um material no qual o índice de refração aumenta com a intensidade. b) O aumento do caminho ótico para o centro do feixe é semelhante ao resultante da passagem por uma lente convergente.....52

Figura 13. Autodesfocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano por um material no qual o índice de refração diminui com a intensidade. b) A redução do caminho ótico para o centro do feixe é semelhante ao resultante da passagem por uma lente divergente.....53

Figura 14. Montagem básica da técnica Z-scan. DF= Divisor de Feixe, (D1, D2)= Detectores.....54

Figura 15. Montagem básica de um feixe laser colimado sem a lente. O detector irá medir as variações de fase que são pequenas provocadas pelo efeitos óticos não-lineares.....55

Figura 16. Montagem básica da técnica de Varredura Z. O detector irá medir as variações de fase provocadas pelo efeitos óticos não-lineares. A cintura do feixe define a posição z=0.....56

Figura 17. Efeito lente para o caso $(n_2 > 0)$. (a) Quando a amostra está antes do foco o feixe aparece mais expandido na posição do diafragma. (b) Quando está após o foco, o feixe tende a ser colimado.....56

Figura 18. Transmitância normalizada T(z) em função da posição da amostra ao longo do eixo z para um coeficiente não linear $(n_2 > 0)$.....57

Figura 19. Efeito lente para o caso $(n_2 < 0)$. (a) Quando a amostra está antes do foco a divergência provocada pela amostra produz um aumento na intensidade medida. (b) Quando está após o foco, a divergência provocada pela amostra produz uma redução na intensidade medida.....58

Figura 20. Transmitância normalizada T(z) em função da posição da amostra ao longo do eixo z para um coeficiente não linear $(n_2 < 0)$.....58

Figura 21. (A) Vista lateral do suporte do laser de diodo. O feixe de saída, fortemente divergente é colimado por uma objetiva de 8 mm. Estão representados também o conjunto de conectores de corrente e peltier-termistor de estabilização ativa da temperatura. (B) Cápsula do laser. (C) Detalhe da janela da cápsula do laser.....72

Figura 22. Diagrama do circuito elétrico da ponte de Wheatstone.....74

Figura 23. Corte esquemático da cápsula do laser.....75

Figura 24. Foto do laser utilizado.....77

Figura 25. A célula com vapor de césio.....78

Figura 26. Componentes necessários para o aquecimento da célula.....79

Figura 27. Foto do forno.....79

Figura 28. 1º Sistema de translação (Motor de passo acoplado a uma correia dentada e uma base de alumínio).....80

Figura 29. O novo sistema de translação.....81

Figura 30. Vista lateral e de cima do transladador.....81

Figura 31. Esquema do filtro espacial.....82

Figura 32. Padrões de interferência do feixe laser.....83

Figura 33. Vista lateral do pinhole e das duas lentes.....84

Figura 34. Montagem experimental. DL: Diodo Laser; OI: Isolador Ótico; DF: Divisor de Feixe; E: Espelho; L: Lente; FE: Filtro Spacial; ST: Sistema de Translado; PD1: Detector -

Referência da Absorção Saturada; PD2: Detector – Sem a abertura (Absorção); PD3: Detector – Com a abertura.....84

Figura 35. Espectro de absorção linear na linha D_2 do césio.....88

Figura 36(b). Uma pequena contribuição poisitiva da transmitância normalizada da varredura z para δ= -1.1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm com 1 mm de espessura e potência no vapor de 18.4 μW. Não observando nenhum efeito não-linear refrativo.....90

Figura 36 (c). Sinal (ruído) para duas freqüências diferentes do laser, longe da ressonância.....90

Figura 37(a). Sinal z-scan obtido para dessintonizações negativas, $P = 3.53$ mW, $\mathrm{I}_0 = 0.16$ kW/cm^2. **(b)** Sinal z-scan obtido para dessintonizações positivas, $P = 3.32$ mW, $\mathrm{I}_0 = 0.16$ kW/cm^2.....93

Figura 38(a). Sinal z-scan obtido para dessintonizações negativas, $P = 3.23$ mW, $\mathrm{I}_0 = 0.12$ kW/cm^2. **(b)** Sinal z-scan obtido para dessintonizações positivas, $P = 2.97$ mW, $\mathrm{I}_0 = 0.12$ kW/cm^2.....94

Figura 39(a). Transmitância normalizada da varredura z para δ=–1,1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 2{,}39 \times 10^{-5}$ m^{-1}), S=0,8 e $w_0 = 38\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,53 mW, $\mathrm{I}_0 = 0{,}16$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = -5{,}7 \times 10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan.O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).....96

Figura 39(b). Transmitância normalizada da varredura z para δ=1,1 GHz no azul de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 2{,}39 \times 10^{-5}$ m^{-1}), S=0,8 e $w_0 = 33\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,32 mW, $\mathrm{I}_0 = 0{,}16$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = 2{,}6 \times 10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan. O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).....97

Figura 40(a). Transmitância normalizada da varredura z para δ=–1,1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 5{,}1\times10^{-5}$ m^{-1}), S=0,6 e $w_0 = 41$ μm ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,23 mW, $I_0 = 0{,}12$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = -9{,}2\times10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan.O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).....98

Figura 40(b). Transmitância normalizada da varredura z para δ=1,1 GHz no azul de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 5{,}1\times10^{-5}$ m^{-1}), S=0.6 e $w_0 = 39$ μm ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 2,97 mW, $I_0 = 0{,}12$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = 3{,}9\times10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan. O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).....99

Figura 41(a). Curva de dispersão quando a amostra aproxima-se do foco (em direção ao fotodetector).....104

Figura 41(b). Curva de dispersão quando a amostra afasta-se do foco (em direção ao fotodetector).....104

Figura 42. Curva dispersiva: (a) antes do foco; (b) após o foco.....105

Figura 43. Esquema experimental simplificado para medida do raio de um feixe laser gaussiano, usando a técnica ponta de faca. A área escura representa o bloqueio do feixe causado pela lâmina.....110

Figura 44. Registros dos dados experimentais com o fit teórico.....112

Figura 45. Diagrama que representa o valor do raio em função da posição da secção do corte do laser. Tal esquema é importante para visualização e determinação da cintura mínima do feixe e sua posição.....113

Figura 46. Esquema da "árvore" para obtenção da célula ótica utilizada em nossa experiência.....115

Figura 47. Esquema experimental da absorção saturada. DF: Divisor de Feixe; E: Espelho; PD1: Detector - Referência da Absorção Saturada.....119

Figura 48. Átomo interagindo com um campo eletromagnético de freqüência ω e vetor de onda k 120

Figura 49. Diminuição da absorção no centro da linha $\omega = \omega_0$ de um alargamento Doppler, devido à saturação por um laser de bombeio.....121

Figura 50. A formação de uma ressonância crossover. Um átomo de três níveis com duas transições permitidas em freqüências angular ω_1 e ω_2 123

Figura 51. Espectro de absorção saturada obtido para a linha D_2 ($F = 4 \rightarrow F'$) do césio.....123

LISTA DE TABELAS

Tabela 1. Exemplos de lasers de estado sólido que podem ser operados em um modo contínuo ou pulsado.....20

Tabela 2. Dados característicos de alguns tipos importantes de lasers de gás.....21

Tabela 3. Propriedades físicas do átomo de césio. Os números entre parênteses representam a precisão dos valores experimentais.....33

Tabela 4. Dados espectroscópios da linha D_2 do césio [19].....36

Tabela 5. Tabela de referência de um termopar tipo K (Nickel-Chromium vs. Nickel-Aluminum) [28].....79

Tabela 6. Temperatura do forno.....87

Tabela 7. Comparação de n_2 em dessintonizações ±1.1 GHz, em unidades de $10^{-7}\ cm^2/W$; dados experimentais e valores calculados a partir dos dois modelos teóricos.....102

Tabela 8. As colunas acima são um exemplo de pontos experimentais (posição z, em centímetro) com seus respectivos raios ajustados pelo programa Origin8.....113

INTRODUÇÃO

A caracterização de materiais por técnicas de ótica não-linear é muito importante para a seleção deles para possíveis aplicações tecnológicas. Existem diversas formas de determinar a resposta não-linear, dependendo do material e do coeficiente não-linear que se esteja procurando. Por exemplo, para materiais com simetria de inversão, como é o caso de vapores atômicos, os coeficientes não lineares de terceira ordem podem ser determinados a partir de várias experiências, de mistura de ondas, por exemplo. A seleção da técnica a ser empregada está relacionada com a componente do tensor susceptibilidade que queremos medir. No caso de excitação com ondas monocromáticas em meios com não-linearidades de terceira ordem, a polarização não linear induzida na mesma freqüência da onda incidente pode ser determinada usado-se a técnica de varredura z, que é conceitualmente simples e permite a determinação, com precisão, do índice de refração e coeficiente de absorção não-linear.

Neste trabalho de pesquisa foi desenvolvido e utilizado um sistema de medição de índice de refração não-linear para um vapor atômico em torno de uma transição ressonante de largura Doppler. Para isso utilizou-se a técnica não-linear de varredura z, que se baseia na proposta original por Sheik- Bahae *et al*. [28]. Essa técnica será utilizada em todas as experiências realizadas.

Objetiva-se apresentar e demonstrar a técnica espectroscópica, onde variando-se a posição do meio ressonante gera-se resultados sobre a resposta espectral de vapor de césio.

A presente dissertação está dividida em cinco capítulos. Inicialmente apresentaremos uma introdução ao laser, os princípios físicos básicos, e as classes mais importantes; algumas características de feixes gaussianos; algumas propriedades espectroscópicas do átomo de césio; o formalismo matriz densidade que é o mais adequado para descrever a interação entre o meio material e a luz. No segundo capítulo apresenta-se a fundamentação teórica desse trabalho com a descrição da técnica de varredura z, dos aspectos teóricos envolvidos e da forma de obtenção do coeficiente de refração não-linear a partir de medidas. No terceiro capítulo, está apresentado o arranjo experimental empregado nas medidas de

efeitos óticos não-lineares em um vapor atômico de césio; Em seguida, no capítulo quatro, estão apresentados os resultados obtidos com o vapor atômico de césio, e a comparação com resultados teóricos, obtido a partir de um modelo no alargamento inhomogêneo (Doplller) e para um sistema de dois níveis [33,34]. Por fim, no quinto capítulo, apresentam-se as principais conclusões e discutem-se as perspectivas para continuação desses trabalhos.

Capítulo 1

Capítulo 1

ESPECTROSCOPIA LASER

1.1 BREVE INTRODUÇÃO AO LASER

Os lasers são fontes de radiação cuja emissão abrange toda a faixa espectral do infravermelho distante até a região do ultravioleta. Eles provaram ser ferramentas valiosas, não só para a solução de muitos problemas científicos, mas também para inúmeras aplicações técnicas. Nesta seção, apresentaremos uma introdução ao laser, os seus princípios físicos básicos, e as classes mais importantes. Discussões mais detalhadas da física do laser podem ser encontradas na vasta literatura sobre lasers (ver, por exemplo, [1,2]).

A invenção do laser foi possível graças a várias contribuições, a começar pela introdução do conceito de quantização da energia a partir de 1900, com a teoria de Planck para a radiação do corpo negro, no qual a interação entre a matéria e o campo eletromagnético ocorre pela troca de quantidades determinadas de energia. O conceito de fóton como menor quantidade de energia que pode ser trocada entre a matéria e o campo em uma dada freqüência foi introduzido por Einstein em 1905 na descrição do efeito fotoelétrico [3]. Em 1917, Einstein [4] publicou um artigo intitulado *"Sobre a Teoria Quântica da Radiação"*, onde introduz a idéia do processo de emissão estimulada, base teórica fundamental para o desenvolvimento do laser. Einstein percebeu que, além da emissão espontânea de fótons por átomos excitados, deveria existir uma emissão forçada quando os átomos são expostos à radiação ressonante. A probabilidade deste efeito aumenta com a densidade espectral da radiação na freqüência da transição atômica. Se essa for a única componente da radiação que promove a emissão estimulada, os fótons emitidos têm todos exatamente a mesma freqüência, direção e fase dos fótons que os estimularam. O processo pode então ser repetido se os próprios fótons emitidos por

sua vez forem usados para estimular a emissão de mais fótons. Essa realimentação dos fótons estimulados é obtida colocando-se o meio de ganho dentro de uma cavidade ressonante. O resultado é um processo em cascata, formando um feixe coerente (mesma direção e fase) de fótons monocromáticos (mesma freqüência). Este é o princípio do laser.

O primeiro passo concreto na realização do laser aconteceu em 1953, com a realização do maser, um amplificador de microondas introduzido pela primeira vez por Charles Townes, James Gordon e Zeiger Herbert [5]. Eles conseguiram obter uma inversão de população isolando moléculas de amônia excitadas e extraindo-as para uma cavidade ressonante a 24 GHz, fazendo portanto, uso de dois níveis de energia. No entanto, nessas condições não se conseguia manter continuamente a emissão estimulada. Para a emissão estimulada manter-se como processo dominante frente à absorção e a emissão espontânea, é necessária uma inversão de população no meio, ou seja, a transição radioativa deve acontecer entre dois níveis tais que a população no nível superior (de maior energia) é maior que no nível inferior. Para contornar essa dificuldade, os cientistas da URSS, Nikolai Basov e Alexander Prokhorov, trabalharam em sistemas multi-níveis bombeados oticamente, que podem manter a inversão de população.

Em 1957, Charles Townes e Artur Schawlow, no laboratório Bell começam também a trabalhar sobre a idéia de um “maser ótico”, ou seja, um “maser” emitindo radiação de freqüência na faixa ótica (UV-visível-Infravermelho), em oposição ao maser que emite radiação na faixa de microondas. Um ano depois publicaram-se os conceitos teóricos de radiação em comprimentos de onda visível [6]. Foi Gordon Gould que introduziu em 1959 o termo laser (palavra acrônimo de *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*) durante uma conferência onde especulou-se sobre possíveis aplicações deste dispositivo, tais como espectroscopia, interferometria por radar e fusão nuclear [7].

A primeira realização do laser foi feita em 16 de maio de 1960, no Laboratório de Investigação Hughes, na Califórnia, por T.H. Maiman [8]. Maiman foi o primeiro a apresentar um laser operacional usando uma lâmpada tipo “flash” de alta potência em forma de espiral para estimular a emissão em um cilindro de rubi sintético revestido com prata (Figura 1).

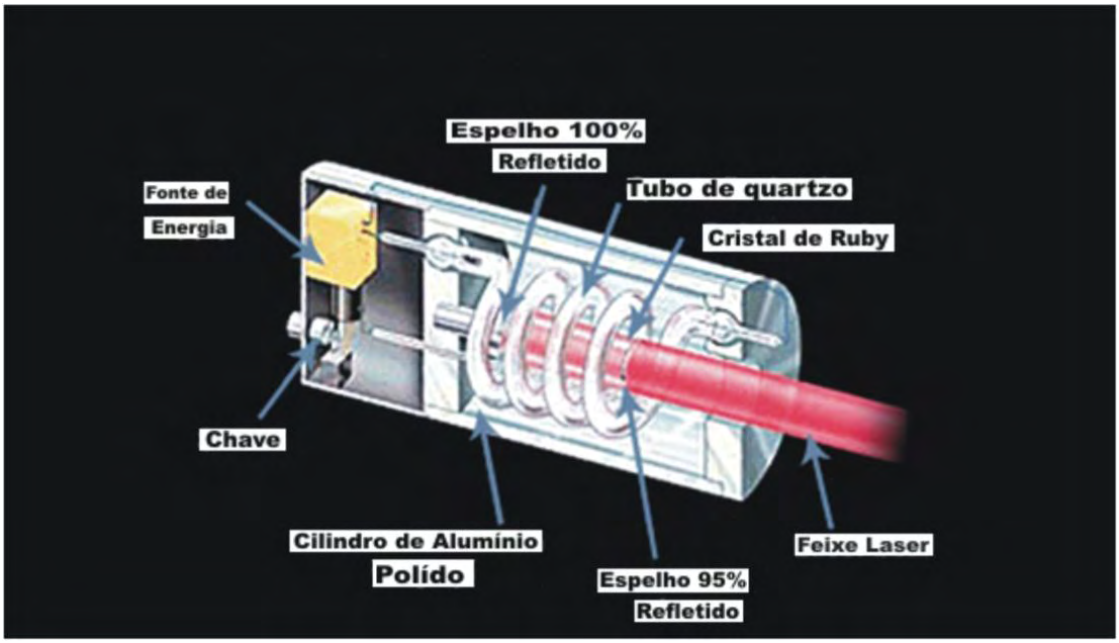

Figura 1 – Primeiro laser de rubi.

Em um laser de rubi, o cristal de rubi tem um formato de um cilindro com um espelho 100% refletor colocado em uma extremidade e um espelho parcialmente refletor na outra. Uma lâmpada de alta intensidade é espiralada em torno do cilindro de rubi para fornecer um flash de luz branca que desencadeia a ação do laser. Esse modelo de laser ainda é nos dias de hoje bastante usado. Principalmente como fonte de luz para procedimentos médicos e cosméticos, etc.

Esta realização é considerada pela comunidade científica como um grande avanço científico e tecnológico e marco para a realização de novas descobertas e experimentos. Logo depois da realização desse primeiro dispositivo laser, que funcionava em regime pulsado com um meio de ganho sólido, foram obtidos o primeiro laser de gás (Hélio-Neônio, Javan *et al*, Dezembro de 1960 [9]), o primeiro laser de estado sólido contínuo (Rubi, Boyle *et al*, 1961 [10]) e o primeiro laser de CO_2 (Patel, 1964) [11].

A invenção do laser permitiu um fenomenal salto quantitativo e qualitativo nos estudos experimentais em física atômica e molecular e em física do estado sólido.

Com o advento da espectroscopia laser em geral e da ótica não-linear em particular, fizeram-se grandes progressos: como fonte de radiação quase monocromática, o laser permitiu estudar linhas atômicas e moleculares com uma

resolução superior a $\Delta\upsilon/\upsilon = 10^{6}/10^{14} = 10^{-8}$ e constitui então uma ferramenta privilegiada para estudos de espectroscopia de alta resolução. A grande densidade espectral dessas fontes permitiu também se estudar a resposta não-linear da polarização de meios atômicos e moleculares ao campo elétrico da luz incidente, ou seja, ótica não-linear. No caso de vapores atômicos ressonantes, que nós vamos abordar nesta dissertação, efeitos não lineares podem ser estudados com lasers de potências baixas a médias, explorando-se as fortes não-linearidades ressonantes destes meios atômicos.

Com o uso de lasers observou-se assim que determinados materiais, quando submetidos a campos eletromagnéticos intensos, têm algumas de suas propriedades óticas modificadas, tais como, seu índice de refração e/ou seu coeficiente de absorção. Quando isso acontece, a luz que provocou a mudança nas propriedades do material também pode ter sua propagação afetada de uma maneira não-linear.

Esses efeitos de ótica não-linear puderam ser estudados a partir de 1961, quando ocorreu a primeira aplicação prática, na experiência realizada por Franken *et al*. [12]. Nessa experiência, o feixe de luz vermelho gerado por um laser de rubi (694.2 nm) incide sobre um cristal de quartzo (SiO_2). A análise espectral da luz emergente do cristal mostra que, além do feixe incidente, emerge também um feixe de intensidade muito menor, cujo comprimento de onda (347.1 nm) é igual à metade do comprimento de onda de excitação. O descobrimento deste efeito ótico não-linear, chama-se Geração de Segundo Harmônico, sendo considerado o marco inicial da ótica não-linear.

Um laser é basicamente composto por três componentes (Figura 2):

- O ***meio ativo*** que é o meio material que emite os fótons da radiação laser e os amplificam, graças à inversão de população criada pelo bombeio.
- A ***energia de bombeio*** (fonte externa como descarga de gás, outro laser ou corrente elétrica), que produz a inversão de população num meio ativo por transferência de energia para o meio.
- O ***ressonador ótico*** que é uma cavidade de realimentação em geral constituida de dois espelhos cujo papel é refletir os fótons emitidos pelo meio ativo de volta neste mesmo meio ativo que os amplifica. A cavidade também

seleciona os fótons em modos espaciais e espectrais determinados. Nesses modos o número de fótons cresce, $N_{phot} >> 1$. Portanto, nesses modos, a emissão induzida torna-se muito maior do que a emissão espontânea. A realimentação e a amplificação da radiação levam à oscilação laser.

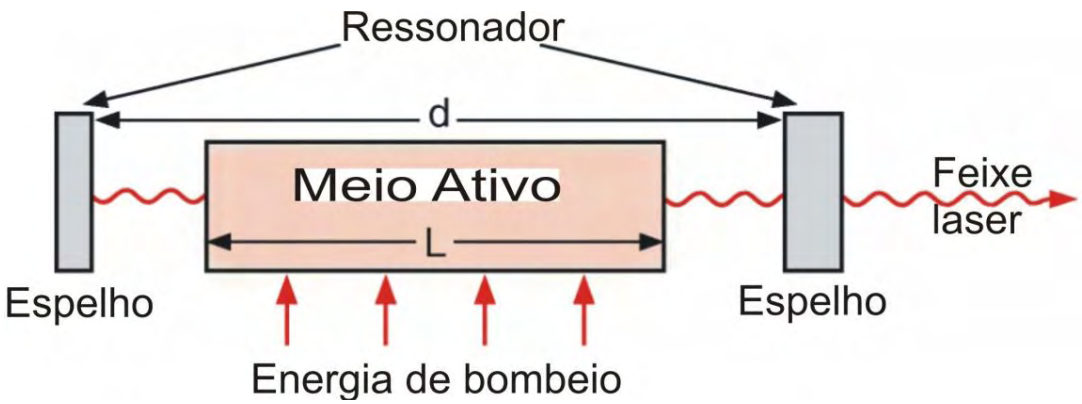

Figura 2 – Configuração esquemática de um laser.

Os diferentes tipos de lasers podem ser divididos em três grupos principais de acordo com o seu meio ativo:

- Laser de estado sólido
- Laser líquido
- Laser a Gás

Para cada um destes tipos de lasers, encontra-se modelos que podem ser operados no modo pulsado ou contínuo (cw). Dependendo do tipo de transferência de energia a partir do bombeio para o meio ativo é possível distinguir entre os lasers de bombeamento óptico, onde a fonte de energia externa para produzir a inversão de população no meio ativo é uma radiação eletromagnética. Por exemplo, o laser de rubi e outros lasers de estado sólido, como o laser de Nd:YAG (neodymium-doped yttrium aluminium garnet; Nd:$Y_3Al_5O_{12}$) ou o laser de titânio-safira, e o laser de corante-líquido, e lasers de bombeamento elétrico (laser semicondutor e na maior parte lasers de gás bombeado por uma descarga elétrica). A seguir, discutiremos brevemente alguns dos tipos de laser mais usados.

Sólido

O meio ativo de lasers de estado sólido consiste, na maioria dos casos, em barras cilíndricas de vidro ou de monocristais, que são dopados com átomos, íons ou moléculas que possam ser bombeados oticamente para um estado excitado. A concentração de dopagem varia entre 0,1% a cerca de 3%, dependendo do tipo da matriz cristalina. Os lasers semicondutores são um caso à parte e serão descritos mais adiante. Na Tabela 1, estão compilados alguns exemplos de lasers de estado sólido com dados característicos.

Tipos	**Meio Ativo**	**Cristal da Matriz**	**Comprimento de onda** (μm)
Laser de Ruby	**Cr^{+++}**	**Al_2O_3**	**0.6943**
Laser Neodímio-YAG	**Nd^{+++}**	**$Y_3Al_5O_{12}$,** **CaF_2, CaF_3**	**1.06** **0.9 – 1.1**
Titânio-Safira	**Ti^{+++}**	**Al_2O_3**	**0.65 – 1.1**

Tabela 1 – Exemplos de lasers de estado sólido que podem ser operados em um modo contínuo ou pulsado.

Corantes

Os representantes mais importantes de lasers líquidos são os lasers de corantes com várias configurações, que podem ser operados em modo pulsado, bem como no modo cw. Os meios ativos são grandes moléculas de corante dissolvidas em uma solução líquida (por exemplo, o glicol de etileno) ou na forma sólida.

Muitos lasers de corante são constituídos por moléculas orgânicas misturado com um solvente, tendo uma ampla radiação de freqüência na faixa ótica (do ultravioleta à região do Infravermelho próximo) que podem ser tratados como diferentes lasers de corantes. Geralmente uma fonte de luz de alta energia é necessária para "bombear " o meio ativo. Uma descarga rápida de um “flash” de luz branca ou um laser externo é normalmente usado para este fim. Por exemplo, o laser de corante com a solução Rodamina 6G (R6G) emitindo em torno de 590 nm e, normalmente bombeado na região espectral verde. A intensidade de bombeio é bastante elevada com feixes de alguns watts de potência. O ressonador laser contém um sintonizador birrefringente (ou às vezes uma grade de difração em configuração Littrow), que permite ajuste de comprimento de onda em uma escala de dezenas de nanômetros. O espelho de saída é normalmente cerca de 80% de reflexão, enquanto todos os outros espelhos são normalmente mais de 99% de reflexão.

Gás

Os lasers de gás têm como meio ativo gases. Os lasers de gás mais importantes são mostrados na Tabela 2.

Tipo de laser	**Comprimento de onda do Laser ( )**	**Potência de saída**
He-Ne	**0.54 – 3.39**	**0.1 – 100 mW**
Argônio	**0.35 – 0.53**	**1 W – 1 kW**
CO_2	**9.5 – 10.3**	**Contínuo: 1W – 10 kW** **Pulsado: ≤ 1 MW**

Tabela 2 – Dados característicos de alguns tipos importantes de lasers de gás.

O laser He-Ne é um tipo de laser de gás, cujo o meio de ganho é composto por uma mistura de gases, hélio e neônio, usualmente contido em tubo de vidro. Frequentemente são usado no modo cw e seu fucionamento está baseado em um sistema de quatro níveis. O bombeio é fornecido por uma alta descarga elétrica que passa através do gás entre os eletrodos (ânodo e cátodo) dentro do tubo.

Já o laser de CO_2 opera em regime cw. O meio ativo é uma mistura de He, N_2 e CO_2 e o bombeio é através de descarga de gás, que pode ser operada em regime DC ou AC.

Semicondutores

Os lasers semicondutores, também conhecidos como lasers de diodo (ou junção p-n, como mostrado na Figura 3). São constituídos basicamente de um diodo que se localiza no interior de uma cavidade ressonante e emite luz coerente quando atravessado por uma corrente elétrica, produzindo a inversão da população dos portadores de carga responsável pela amplificação. Tornaram-se nas últimas décadas os mais importantes lasers em termos econômicos, sendo usados em uma vasta área de aplicações, desde artigos de eletrônica, como os "*CD-players*", às aplicações em comunicações por fibras óticas. Seu surgimento veio logo após a descoberta dos LEDs (Light Emitting Diode) no início da década de 60.

As principais características que os distinguem dos demais lasers são:

1. Pequeno tamanho, tipicamente 300 μm x 200 μm x 100 μm, permitindo que sejam inseridos em outros instrumentos (Figura 3-a).
2. Corrente de bombeio baixa (em geral, variando entre 15 e 100 mA).
3. Comprimento de onda situado tipicamente no vermelho e no infravermelho. Quando na região de 1300 a 1500 nm, possui as menores perdas para as fibras óticas de sílica. Existem também diodos lasers emitindo no visível e no azul.
4. A cavidade ressonante é relativamente pouco seletiva. Enquanto na maioria dos lasers a oscilação só pode ocorrer em cavidades extremamente seletivas para compensar ganhos relativamente

pequenos, nos lasers de diodo, o ganho é muito grande e a cavidade é constituída não de espelhos com alto coeficiente de reflexão mas simplesmente pelas faces clivadas do semicondutor: a reflexão da luz nessas faces ocorre devido à diferença de índice de refração entre o semicondutor $(n \approx 3)$ e o ar $(n = 1)$, resultando em um coeficiente de reflexão efetivo da ordem de apenas 30%.

5. Do ponto de vista da radiação emitida os lasers semicondutores diferem dos demais em alguns aspectos importantes:
   I. Nos lasers a gás convencionais as transições quânticas se dão entre níveis discretos de energia enquanto nos lasers semicondutores as transições ocorrem entre bandas contínuas de energia.
   II. Em virtude de suas pequenas dimensões, principalmente da região ativa, a divergência do feixe laser é maior que nos demais lasers, devido à difração na saída do meio ativo.
   III. Suas características espaciais e espectrais são definidas pelas propriedades da junção (band gap, índice de refração).

Uma razoável compreensão das exigências para a existência de lasers semicondutores só foi possível após Bernard e Duraffourg [13] estabelecerem as condições necessárias para a emissão laser nestes materiais, ou seja, utilizar o semicondutor como material laser.

Os primeiros lasers semicondutores consistiam de um único tipo de semicondutor (GaAs ou GaP_xAs_{1-x}), por isso chamados *lasers de homoestrutura*. Mas devido à sua densidade de corrente de limiar ser muito alta à temperatura ambiente, impedindo a operação em regime contínuo, fezse o interesse nesses lasers diminuir a partir de 1965.

Nesta época, uma nova classe de lasers semicondutores começava a chamar a atenção: os *lasers de heteroestrutura*. No início de 1963 foi sugerido por *Kroemer* [14] e independentemente por *Alferov* [15] a construção de lasers através de uma camada de semicondutor “sanduiche” entre dois outros semicondutores diferentes com gaps de energia maiores. A junção de dois semicondutores diferentes, chamada de *heterojunção*, origina uma barreira de potencial que confina os elétrons

injetados nessa região. Além disso, o material de gap de energia maior possui índice de refração menor, criando uma descontinuidade no índice que confina a luz na região em que ocorre a emissão laser (chamada de região ativa). Com isso, tornam-se possível trazer a operação dos lasers semicondutores à temperatura ambiente. Os primeiros lasers de heteroestrutura operando continuamente (cw) à temperatura ambiente foram desenvolvidos em 1969 por *Kressel* e *Nelson* [16], e *Hayashi* e *Panish* [17], ambos com lasers de GaAs/AlGaAs.

Para compreendermos a física dos semicondutores é necessário discutir um pouco as propriedades eletrônicas dos sólidos, que são devidas à estrutura da rede cristalina destes. Todos os elétrons obedecem ao princípio de exclusão de Pauli, significando que apenas dois elétrons (com spins contrários) podem ocupar um possível estado e que os elétrons são excitados somente para estados não ocupados.

À temperatura zero absoluto e em equilíbrio termodinâmico todos os níveis de energia eletrônicos abaixo de um dado nível estão completamente ocupados e todos os níveis acima deste nível estão vazios. Este nível de energia divisório é conhecido por nível de Fermi. A mecânica quântica prediz que os níveis de energia em uma banda periódica cristalina (como é o caso dos sólidos) estão distribuídos em bandas de energia. Entre estas existem intervalos de energia proibidos, os “band gaps”. A banda de energia mais alta preenchida é a banda de valência e a banda vazia ou parcialmente ocupada, vizinha à de valência é chamada de banda de condução. Se a banda de valência está ocupada e a de condução está vazia e o gap entre elas é tão grande que a excitação térmica não consegue popular esta última, este material é um isolante. Num condutor as bandas de condução e de valência se interceptam, existindo elétrons livres na banda de condução. Se o material possui “band gap” pequeno, da ordem da energia de excitação térmica, a condutividade é intermediária entre os isolantes e os condutores, trata-se de um semicondutor. Quando um elétron é excitado da banda de valência para a banda de condução, um estado desocupado permanece na banda de valência. Tal estado é conhecido por buraco (Figura 3-b).

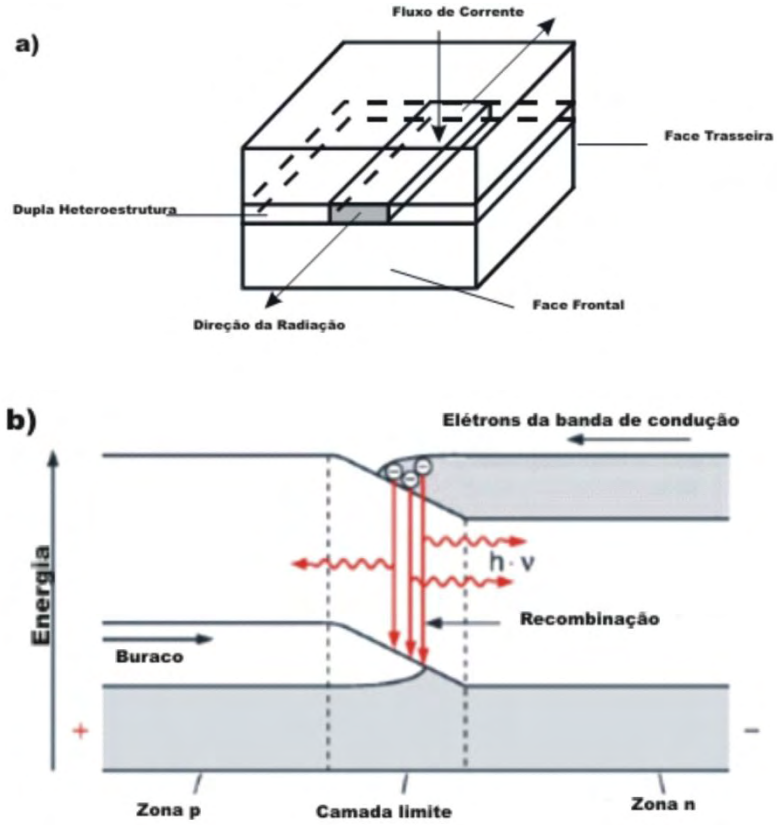

Figura 3 - a, b. Princípio simplificado de um laser semicondutor. (a) Estrutura de um diodo laser (b) O regime do nível da banda de valência com a de condução e a recombinação radioativa de elétrons com buracos.

1.2 ÓTICA GAUSSIANA

Devido às dimensões finitas das cavidades ressonantes dos feixes lasers são geralmente feixes gaussianos, ou seja, sua distribuição de intensidade nos planos normais à direção de propagação é gaussiana. Essa característica espacial dos feixes lasers tem uma importância fundamental nas experiências que descrevemos nesta dissertação, iremos então discutir brevemente algumas características de feixes gaussianos. Para isto começamos com as equações de Maxwell em um meio isotrópico e livre de cargas [2].

$$\nabla \times \mathrm{H} = \varepsilon \frac{\partial \mathrm{E}}{\partial t} \qquad \nabla \times \mathrm{E} = -\mu \frac{\partial \mathrm{H}}{\partial t} \qquad \nabla \bullet \left(\varepsilon \mathrm{E}\right) = 0 \quad (1.2.1)$$

Como uma onda eletromagnética obedece à equação de onda geral

$$\nabla^2 \mathrm{E} + k^2(r)\mathrm{E} = 0 \tag{1.2.2}$$

então, podemos assumir que um feixe laser que viaja na direção z pode ser representado pela amplitude do campo

$$\mathrm{E}(x, y, z, t) = \mathrm{E}(x, y, z)e^{-i(kz-\omega t)}. \tag{1.2.3}$$

Enquanto a amplitude $\mathrm{E}(x, y, z)$ é constante para uma onda plana, ela é uma função complexa de variação (da radiação de propagação) lenta para um feixe gaussiano.

A solução da equação de onda (equação 1.2.2) é aquela obtida ao se utilizar o Laplaceano em coordenadas cilíndricas, o qual é importante para nossas medidas devido o meio possuir condições de contorno com simetria azimutal, que modifica o índice de refração na direção radial, produzindo o efeito de uma lente.

Substituindo a equação (1.2.3) na equação (1.2.2) e assumindo que a variação na direção de propagação z é lenta o suficiente para que

$$k\frac{d\mathrm{E}}{dz} >> \frac{d^2\mathrm{E}}{dz^2} << k^2\mathrm{E},$$

a uma solução de E na seguinte forma

$$\mathrm{E} = \exp\left\{-i\left[P(z) + \frac{kr^2}{2q(z)}\right]\right\} \tag{1.2.4}$$

Onde $r^2 = x^2 + y^2$, e $P(z)$ representa uma mudança da fase complexa. O parâmetro $q(z)$ complexo é representado em termos de dois parâmetros reais $w(z)$ e $R(z)$ [2].

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i\frac{\lambda}{\pi n w^2(z)}. \qquad (1.2.5)$$

Desta forma, sabendo como $q(z)$ varia com z, a parte real de $1/q(z)$ dará $R(z)$, enquanto que a parte imaginária está ligada a $w(z)$.

Portanto, a partir da equação (1.2.5) que foi obtida da equação (1.2.2) a amplitude do campo $\mathrm{E}(x, y, z)$ pode ser escrito em termos de R, w e $P(z)$, obtendo assim

$$\mathrm{E}(x, y, z) = \exp\left(\frac{-r^2}{w^2(z)}\right)\exp\left[-iP(z) - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right], \qquad (1.2.6)$$

$R(z)$ representa o raio de curvatura da frente de onda , e $w(z)$ dá a distância $r = \left(x^2 + y^2\right)^{1/2}$ a partir do eixo z onde a amplitude do campo elétrico diminui de $1/e$ e conseqüentemente a intensidade tem diminuído de $1/e^2$ em relação ao máximo no eixo z $(r = 0)$ do seu valor (Figura 4). Ou seja, $w(z)$ representa a dimensão (extensão radial) do feixe gaussiano na posição z.

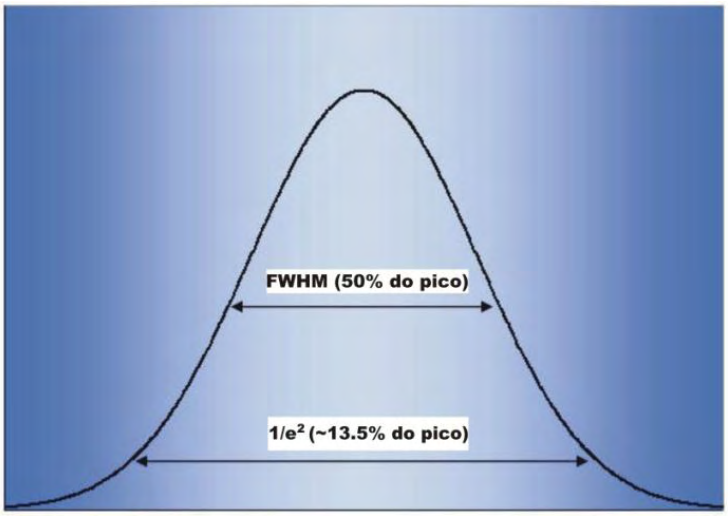

Figura 4 – Distribuição da intensidade de um feixe laser gaussiano.

Substituindo equação (1.2.4) em (1.2.2) e comparando os termos de potências iguais a r retorna as relações

$$\frac{dq}{dz} = 1 \qquad \frac{dP}{dz} = -\frac{i}{q} \tag{1.2.7}$$

que pode ser integrado e dar, com $R(z=0) = \infty$

$$q = q_0 + z \qquad P(z) = -i \ln\left(1 + \frac{z}{q_0}\right) \tag{1.2.8}$$

onde q_0 é uma constante de integração arbitrária. Tomamos $q_0 = iz_0$ ser puramente imaginário (com z_0 real) e reexpressamos em termos de uma nova constante w_0 como

$$q_0 = i\frac{\pi w_0^2 n}{\lambda} \qquad z_0 = \frac{\pi w_0^2 n}{\lambda} \tag{1.2.9}$$

onde $w_0 = w(z = 0)$ (Fig. 5).

Se conhecermos w_0, podemos encontrar, z_0 e $q_0 = iz_0$. Substituindo as equações (1.2.8) e (1.2.9) na equação (1.2.5) obtemos a eq. (1.2.10).Quando medimos z a partir da cintura do feixe em $(z = 0)$, obtemos

$$w^2(z) = w_0^2\left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)\right]$$

$$R(z) = z\left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)\right] \qquad (1.2.10)$$

A razão de se considerar q_0 imaginário é que esta é a única maneira de se obter uma solução de significado físico, cuja densidade de energia da onda está confinada em torno do eixo z; caso contrário, o campo elétrico se estenderia exponencialmente até o infinito e esta é uma solução que não nos interessa.

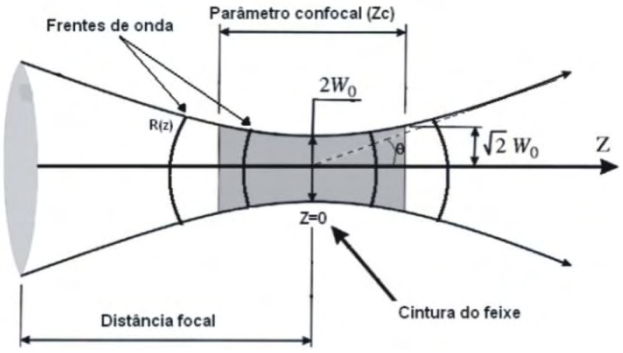

Figura 5 – Propagação de um feixe laser gaussiano.

Podemos combinar as equações (1.2.8) e (1.2.9) em (1.2.6) e, lembrando que $\mathrm{E}(x, y, z, t) = \mathrm{E}(x, y, z)e^{-ikz}e^{i\omega t}$, obtemos

$$\mathrm{E}(x, y, z, t) = \mathrm{E}_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(\frac{-r^2}{w^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) \exp\left\{-i\left[kz - \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_0}\right)\right]\right\} e^{i\omega t}. \qquad (1.2.11)$$

Como a propagação de um feixe gaussiano não segue as leis da ótica geométrica (devido à difração da luz no ponto focal), mas sim da ótica ondulatória, onde o fenômeno de difração é importante, então devemos utilizar o formalismo da matriz (lei ABCD).

O que devemos fazer para caracterizar o feixe gaussiano é determinar como $w(z)$ e $R(z)$ variam conforme a onda se propaga.

Entretanto, um dado sistema ótico pode conter componentes tais como lentes, sistemas óticos, etc. Neste caso, a variação do parâmetro $q(z)$ é dada pela lei ABCD [2]:

$$q_2 = \frac{\mathrm{A}\, q_1 + \mathrm{B}}{C q_1 + D} \tag{1.2.12}$$

onde q_1 e q_2 são os raios complexos em dois planos quaisquer perpendiculares ao eixo ótico (z), enquanto que A, B, C, e D são os elementos da matriz que caracteriza a propagação geométrica de um raio de luz entre os planos 1 e 2. Nas experiências de z-scan descrita mais adiante nesta dissertação, conseguimos obter informações sobre um meio não linear analisando variações na distribuição espacial de intensidade de um feixe gaussiano. Para tanto, é importante determinar a evolução dessa distribuição de intensidade na sua propagação **fora** do meio não linear como anteriormente. Os elementos do circuito percorrido pelo feixe são essencialmente lentes e propagação no espaço livre. As matrizes correspondentes são $A = 1$, $B = 0$, $C = -1/f$, $D = 1$ para as lentes de distância focal f e $A = 1$, $B = d$, $C = 0$, $D = 1$ para a propagação livre. No caso da propagação livre, obtemos $q_2 = q_1 + d$ onde d é a distância entre os planos 1 e 2.

No caso de um feixe de diâmetro $2w_1$ incidente em uma lente fina de distância focal f, podemos determinar a cintura w_0 do feixe de saída ilustrado na Figura 6, pela expressão:

$$\frac{w_0}{w_1} = \frac{f/z_1}{\sqrt{1+(f/z_1)^2}}, \tag{1.2.13}$$

onde

$$z_1 \equiv \frac{\pi w_1^2 n}{\lambda}$$

e a distância l entre a posição dessa cintura e a lente, no eixo z:

$$l = \frac{f}{1+(f/z_1)^2},$$

Essas expressões serão úteis na análise dos nossos resultados experimentais.

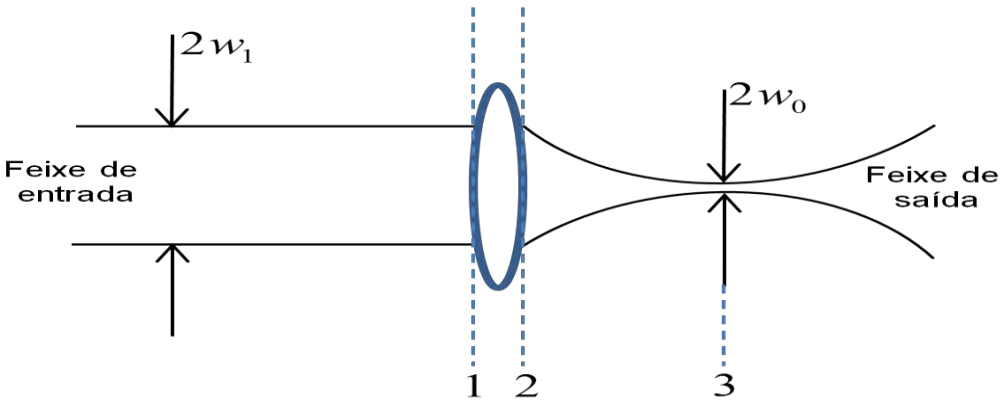

Figura 6 – Focalização de um feixe laser gaussiano.

1.3 O CÉSIO

Realizamos as nossas experiências usando como meio não linear um vapor diluído de átomos de césio. O césio é um elemento químico representado pelo símbolo Cs , cujo número atômico é 55. O seu nome vem do termo latino caesius, que significa “azul celeste” em função tanto do metal quanto de seus compostos

emitirem uma luminosidade de coloração azul. Um átomo de césio que tenha 55 prótons, 55 elétrons e 78 nêutrons é o césio de massa 133 $\left(Cs^{133}\right)$ estável, que é encontrado na natureza, apresentando uma coloração metálica amarela claro levemente prateada (Figura 7). Artificialmente foram obtidos isótopos radioativos deste elemento, sendo o mais importante deles o de massa 137 $\left(Cs^{137}\right)$ que se desintegra emitindo radiação gama.

O césio é um dos poucos metais que se encontram no estado líquido à temperatura ambiente, e reage muito facilmente, de forma explosiva, com a água e também com o oxigênio produzindo óxidos.

Figura 7 – Ampola de césio no estado líquido na temperatura ambiente.

Na tabela periódica está localizado no grupo dos alcalinos, o qual apresenta uma configuração eletrônica terminada em ns^1. O único elétron existente na camada de valência está relativamente afastado do núcleo, por isso esse elétron pode ser removido com facilidade.

O césio foi descoberto por Robert Wilhelm Bunsen e Gustav Kirchhoff em 1860, numa água mineral de Durkhiein, Alemanha, através de análise espectroscópica [18].

Na tabela 3 apresentamos algumas propriedades físicas do $\left(Cs^{133}\right)$ [19].

Massa Atômica	A	$132.905(27)u$ $2.206(11)\times10^{-25}\,Kg$
Número Atômico	Z	55
Número de Nêutrons	N	78
Spin Nuclear	I	$7/2$
Tempo de Vida Nuclear	τ_n	*estável*
Densidade a 25°C	ρ_m	$1.93\ g/cm^3$
Pressão de Vapor a 25°C	P_v	$1.488(74)\times10^{-6}\,torr$
Ponto de Fusão	T_F	$28.5°C$
Ponto de Ebulição	T_E	$671\ °C$
Energia de Ionização	E_1	$3.893(96)eV$

Tabela 3 – Propriedades físicas do átomo de césio. Os números entre parênteses representam a precisão dos valores experimentais.

Das transições entre níveis de energia do átomo de césio a mais importante é a transição entre os níveis $6^2S_{1/2} - 6^2P_{3/2}$ (também chamada de linda D_2 do césio) da estrutura fina (Figura 8), e cada um desses níveis, adicionalmente tem estrutura hiperfina. A estrutura fina é um resultado do acoplamento entre o momento angular orbital L do elétron externo e o momento angular de spin S desse átomo. O momento angular total do elétron é então dado por

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$$

e o correspondente número quântico J deve estar no intervalo.

$$\left|L - S\right| \leq J \leq \left|L + S\right|$$

Para o estado fundamental do césio n=6, $L = 0$ e $S = 1/2$, então $J = 1/2$ (nível $6S_{1/2}$). Para o primeiro estado excitado, n=6, $L = 1$ então $J = 1/2$ ou $J = 3/2$ (níveis $6^2P_{1/2}$ e $6^2P_{3/2}$). O significado da notação espectroscópica para os níveis de energia é a seguinte: O primeiro número é o número quântico principal do elétron externo, o expoente é $2S + 1$, a letra refere-se a L (isto é, $S \leftrightarrow L = 0$, $P \leftrightarrow L = 1$, etc.), e o sobrescrito dá o valor de $\vec{J}$.

A estrutura hiperfina é o resultado do acoplamento de $\vec{J}$ com o momento de spin nuclear $\vec{I}$. O momento angular atômico $\vec{F}$ é então dado por

$$\vec{F} = \vec{J} + \vec{I}.$$

Como no caso da estrutura fina, a magnitude de F pode levar valores

$$\left|J - I\right| \leq F \leq \left|J + I\right|.$$

Para o estado fundamental do césio, $J = 1/2$ e $I = 7/2$, então $F = 3$ ou $F = 4$. Para o estado excitado da linha D_2 $(6^2P_{3/2})$, F pode levar qualquer um dos valores 2,3,4 ou 5.

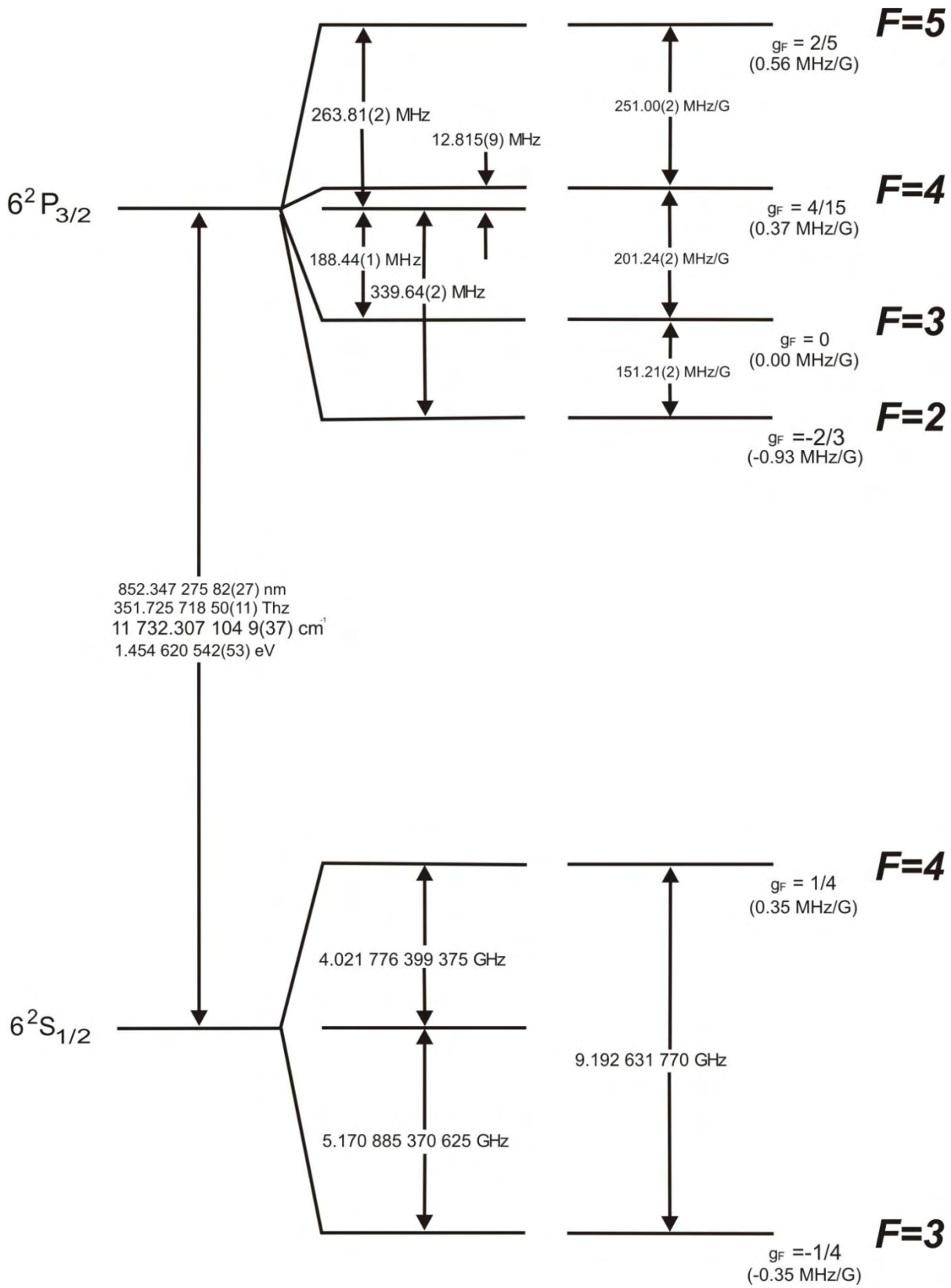

Figura 8 – Estrutura hiperfina da transição D_2 do césio, com os deslocamentos em freqüência entre os níveis de energia hiperfinos.

A seguir apresentamos alguns dados espectroscópicos da linha D_2 do césio [19].

Frequência	ω_0	$2\pi \times 351.725(11) THz$
Comprimento de onda (vácuo)	λ	$852.347(27) nm$
Comprimento de onda (ar)	λ_{ar}	$852.120(26) nm$
Tempo de Vida	τ	$30.405(77) ns$
Taxa de Decaimento	Γ	$32.889(84) \times 10^6 s^{-1}$
Largura de Linha Natural	$\Gamma / 2\pi$	$5.234(66) MHz$
Largura Doppler	$\Delta\nu_{Doppler}$	$21.8 \times T^{1/2} MHz$ T(temperatura em °K)

	Momento de Dipolo μ_{12}	Intensidade de Saturação I_{sat}
Luz com Polarização Isotrópica	$1.7157(31) \times 10^{-29} C.m$	$2.7119(49) mW/cm^2$
Luz com Polarização Linear (π)	$2.1947(40) \times 10^{-29} C.m$	$1.6573(30) mW/cm^2$
Luz com Polarização Circular $(\sigma^{\pm})$	$2.688(48) \times 10^{-29} C.m$	$1.1049(20) mW/cm^2$

Tabela 4 - Dados espectroscópicos da linha D_2 do césio [19].

E para finalizar, é apresentada na figura 9 a curva da evolução da pressão de vapor do césio em função da temperatura [19].

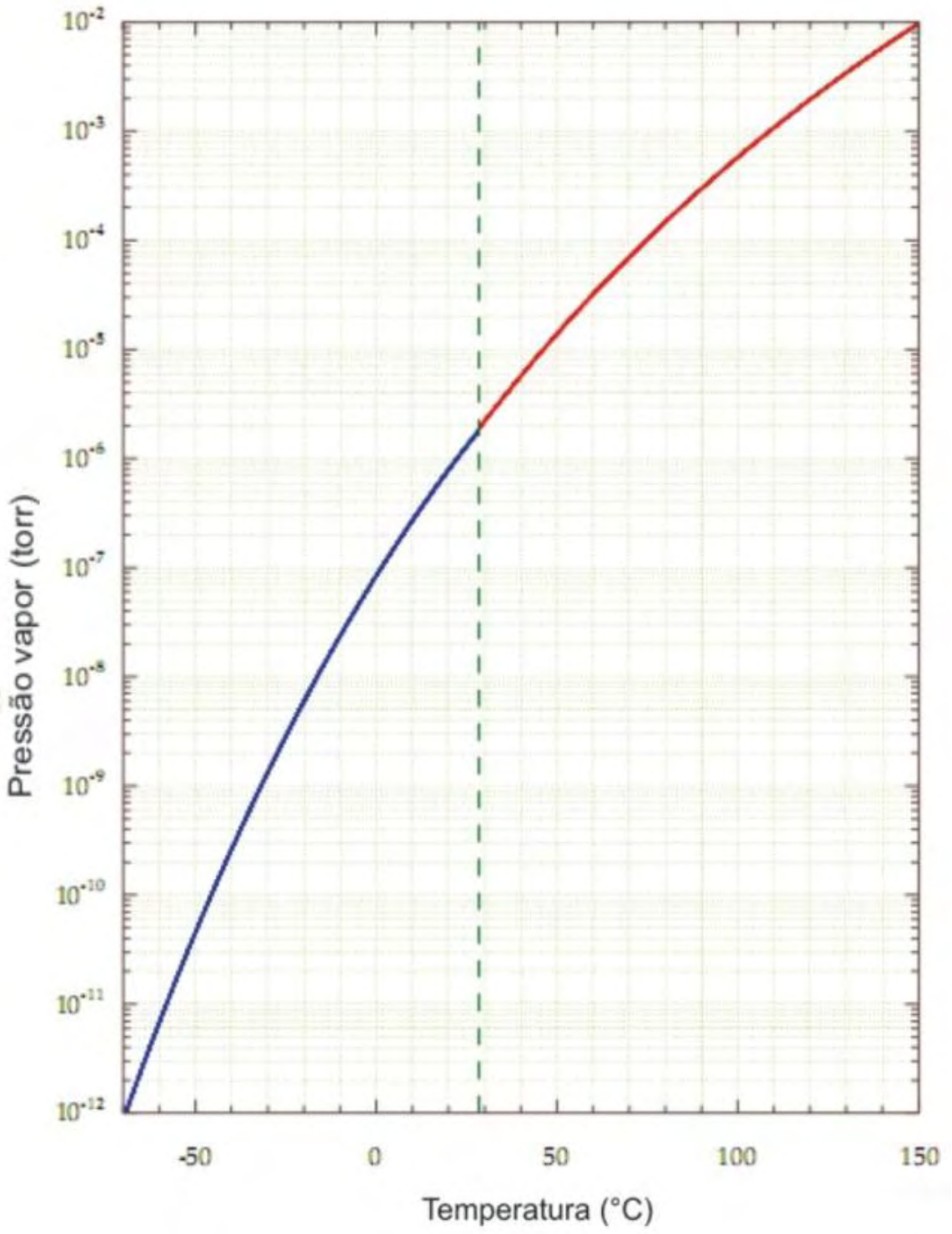

Figura 9 - Pressão de vapor do césio em função da temperatura. A linha vertical tracejada indica o ponto de fusão [19].

Nas nossas experiências, podemos variar a densidade atômica do vapor controlando a temperatura de um pequeno reservatório de césio líquido em equilíbrio com o vapor. A medição da temperatura permite determinar a pressão de vapor e conseqüentemente a densidade atômica.

1.4 MATRIZ DENSIDADE

Para interpretar os nossos resultados experimentais, necessitamos de um modelo teórico permitindo calcular o coeficiente não-linear n_2 em função dos parâmetros do sistema. O modelo mais simples de interação radiação-matéria é o do elétron elasticamente ligado, que nos leva a resultados corretos e permite uma interpretação física simples dos fenômenos de ressonância e de índice de refração.

Entretanto, o formalismo mais adequado para descrever a interação entre um meio material constituído de um grande número de sistemas quânticos (átomos, moléculas) e a luz é o da **matriz densidade**.

Portanto iremos descrever a interação átomo-campo, em especial de um átomo de dois níveis com formalismo da matriz densidade, e a partir deste exemplo simples seremos capazes de deduzir a polarização microscópica (valor médio do momento dipolar atômico) a partir do formalismo da matriz densidade.

Um dos problemas mais simples envolvendo interação átomo-campo é o acoplamento de um átomo de dois níveis com o campo eletromagnético. Segundo a descrição da Mecânica Quântica, um dado sistema físico pode ser descrito através de um vetor de estado $|\psi\rangle$ que contém toda a informação do sistema, porém não sabemos em alguns casos toda esta informação contida no vetor de estado devido ao fato de o sistema estar em uma mistura estatística de estados quânticos

Apresentaremos resumidamente essa teoria semi-clássica para a interação de um átomo de dois níveis com o campo eletromagnético (ver a Figura 10), supondo que o átomo é um sistema quântico enquanto o campo é clássico. Seja $|\psi\rangle$ o vetor de estado do átomo, com os estados $|1\rangle$ e $|0\rangle$ representando os estados de maior e menor energia, ou seja, os autoestados da hamiltoniana do átomo na ausência do campo. Este vetor de estado é então dado por:

$$\left|\psi\right\rangle = c_1\left|1\right\rangle + c_0\left|0\right\rangle, \tag{1.4.1}$$

onde c_1 e c_2 são as amplitudes de probabilidade de encontrar o átomo nos estados $\left|1\right\rangle$ e $\left|0\right\rangle$, respectivamente.

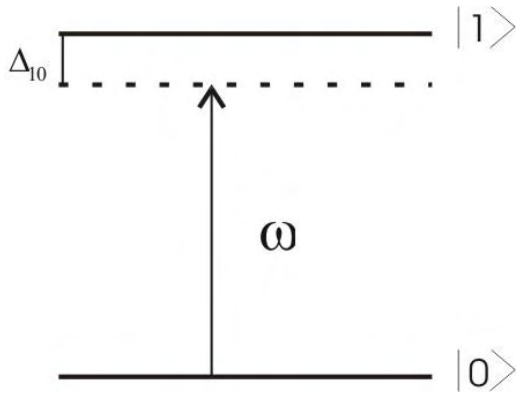

Figura 10 – Sistema de dois níveis interagindo com um campo eletromagnético de freqüência ω, sendo $\left|0\right\rangle$ o estado fundamental, $\left|1\right\rangle$ o estado excitado e ω_{10} a freqüência de transição do átomo. Δ_{10} é a dessintonia da freqüência ótica do campo em relação à freqüência da transição atômica.

No formalismo da matriz densidade, o operador densidade descreve o estado do sistema, e é dado por [20]:

$$\rho = \left|\psi\right\rangle\left\langle\psi\right|. \tag{1.4.2}$$

No caso em que desejamos extrair informações do sistema devemos usar o valor esperado do observável associado aquela medida, sendo este resultado proveniente de medidas realizadas em *ensembles* preparados da mesma forma, representando assim o mesmo estado a ser medido. Para um observável qualquer, o valor esperado é dado por:

$$\left\langle \hat{A} \right\rangle_{MQ} = \left\langle \varphi \left| \hat{A} \right| \varphi \right\rangle. \tag{1.4.3}$$

Na Mecânica Quântica trabalhamos com probabilidades P_φ do átomo ser encontrado no estado $|\psi\rangle$, portanto não podemos somente tomar a média, mas sim a média do *ensemble* de muitos sistema idênticos, o que nos fornece a seguinte equação para o valor esperado:

$$\left\langle \left\langle \hat{A} \right\rangle_{MQ} \right\rangle_{ensemble} = Tr\left(\hat{A}\hat{\rho}\right) \tag{1.4.4}$$

onde o operador densidade $\hat{\rho}$ é definido como $\rho = \sum_{\varphi} P_\varphi \left|\varphi\right\rangle\left\langle\varphi\right|$.

Nós podemos obter a equação de movimento para a matriz densidade a partir da equação de *Schrödinger* ,

$$\frac{d}{dt}\left|\varphi\right\rangle = -\frac{i}{\hbar} H \left|\varphi\right\rangle. \tag{1.4.5}$$

Utilizando a equação (1.4.2), obtemos :

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho} = -\frac{i}{\hbar}\left[H, \rho\right]. \tag{1.4.6}$$

Onde $\left[H, \rho\right] = H * \rho - \rho * H$. Esta é a equação de Liouville ou Von Neumann de movimento para a matriz densidade que descreve a evolução do operador densidade submetido a uma interação dada pela Hamiltoniana do sistema. Esta descrição é mais geral que aquela que utiliza a equação de devido ao fato de usar o operador densidade ao invés do vetor de estado específico.

Além disso, nos fornece informações tanto de Mecânica Quântica quanto de Mecânica Estatística.

Podemos escrever a matriz densidade para sistema atômico representado pelo estado da equação (1.4.1) como sendo:

$$\rho = \begin{pmatrix} |c_1(t)|^2 & c_1(t)c_0^*(t) \\ c_0(t)c_1^*(t) & |c_0(t)|^2 \end{pmatrix}, \tag{1.4.7}$$

sendo os elementos diagonais ρ_{11} e ρ_{00}, representando as probabilidades de encontrarmos os átomos nos estados $|1\rangle$ e $|0\rangle$, respectivamente. Já os elementos não diagonais determinam a coerência atômica no meio quando este está interagindo com um campo eletromagnético.

Na equação (1.4.6) ainda não incluímos as constantes de relaxação dos níveis atômicos devido a processos de emissão espontânea ou outros fenômenos como os termos fontes (colisões entre os átomos, cascata radioativa a partir de níveis superiores, etc), mas estes termos podem ser incluídos nesta equação fenomenologicamente. Então a equação de movimento para a matriz densidade será dada por:

$$i\hbar \frac{d}{dt}\hat{\rho} = [H, \rho] + relaxação \quad + termos \quad fontes \tag{1.4.8}$$

Nós podemos derivar as equações de movimento para os elementos da matriz densidade da equação (1.4.8) substituindo a Hamiltoniana

$$H = H_0 + H_1 \tag{1.4.9}$$

com

$$H_0 = E_0 \left|0\right\rangle\left\langle 0\right| + E_1 \left|1\right\rangle\left\langle 1\right| \tag{1.4.10}$$

sendo a Hamiltoniana do átomo livre e

$$H_1 = -\vec{d} * \vec{E} = -\left(\vec{d}_{01} \left|0\right\rangle\left\langle 1\right| + \vec{d}_{10} \left|1\right\rangle\left\langle 0\right| \right) \vec{E} \quad , \tag{1.4.11}$$

a hamiltoniana de interação entre esses átomos e o campo clássico. $\vec{d}_{01}$ e $\vec{d}_{10}$ são as amplitudes de momento de dipolo. Onde $\vec{d}$ são os elementos da matriz representado na base $\{|0\rangle, |1\rangle\}$ não nulos:

$$\left\langle 0\left|\vec{d}\right|0\right\rangle = \left\langle 1\left|\vec{d}\right|1\right\rangle = 0. \tag{1.4.12}$$

E os elementos não diagonais, suposto reais:

$$\vec{d}_{01} = \left\langle 1\left|\vec{d}\right|0\right\rangle = \left\langle 0\left|\vec{d}\right|1\right\rangle. \tag{1.4.13}$$

Podemos escrever o hamiltoniano de interação:

$$H_1 = \hbar \frac{(-\vec{d}_{01} * \vec{E})}{\hbar} \left(\left|0\right\rangle\left\langle 1\right| + \left|1\right\rangle\left\langle 0\right| \right) \tag{1.4.14}$$

$$H_1 = \hbar\Omega \left(\left|0\right\rangle\left\langle 1\right| + \left|1\right\rangle\left\langle 0\right| \right) \quad , \tag{1.4.15}$$

com $\Omega = \frac{(-\vec{d}_{01} * \vec{E})}{\hbar}$.

Essa grandeza, que tem dimensão de uma freqüência, caracteriza a intensidade do acoplamento do momento dipolar $\vec{d}$ entre o átomo e o campo eletromagnético $\vec{E}$ e é chamada de freqüência de Rabi.

A polarização, que é a resposta do meio ao interagir com um campo elétrico, é definida a partir do operador de momento de dipolo $\vec{d}$ em um átomo de dois níveis como:

$$P(t) = \mathrm{N}\left\langle \vec{d} \right\rangle = \mathrm{N}\,Tr\,(\rho d) = \mathrm{N}\left(\vec{d}_{01}\ \rho_{01} + \vec{d}_{10}\ \rho_{10} \right), \qquad (1.4.16)$$

onde N é a densidade de átomos.

Capítulo 2

Capítulo 2

FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

2.1 CONCEITOS DE ÓTICA NÃO-LINEAR

Uma forma bastante instrutiva de visualizar as propriedades ópticas de um meio é obtida através de uma descrição clássica. Neste modelo clássico, em cada átomo, um elétron ligado sofre a ação de uma força restauradora proporcional à distância da carga ao ponto de equilíbrio e seu movimento é amortecido por uma força proporcional à sua velocidade.

Trata-se assim de um modelo estritamente clássico com a equação de movimento dos elétrons correspondendo à equação de um oscilador harmônico amortecido e forçado pelo campo elétrico da onda eletromagnética. A seguir, apenas explicitaremos de forma resumida as equações de interesse. Supomos que as interações são isotrópicas e a notação vetorial não será usada. A força F_E exercida sobre o elétron de carga $(-e)$ pelo campo elétrico E é então dada por:

$$F_E = -eE \tag{2.1.1}$$

A ligação, aproximada por um potencial harmônico (aproximação massa-mola), exercerá uma força restauradora nos elétrons dada por:

$$F_R = -m\omega_0^2 x \tag{2.1.2}$$

onde m é a massa do elétron, x o deslocamento da posição de equilíbrio, e ω_0 é a freqüência natural do oscilador.

Adicionamos um termo de amortecimento ao oscilador, com $\gamma > 0$ devido à emissão de radiação pelo elétron acelerado.

$$F_A = -\gamma \frac{dx}{dt}. \tag{2.1.3}$$

Então, em seguida podemos usar a segunda lei de Newton. Considerando um oscilador em uma dimensão para este sistema, temos a equação de movimento

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = -\frac{e}{m} \mathrm{E}_0 e^{i\omega t}, \tag{2.1.4}$$

onde o campo elétrico oscilante é escrito como

$$\mathrm{E} = \mathrm{E}_0 e^{i\omega t}. \tag{2.1.5}$$

A solução da equação de movimento (2.1.4) é da forma:

$$x = x_0 e^{i\omega t}. \tag{2..1.6}$$

Substituindo a equação (2.1.6) em (2.1.4), encontramos:

$$x = -\frac{e\mathrm{E}_0 e^{i\omega t}}{m\left(\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma\right)}. \tag{2.1.7}$$

Em vapores atômicos (de Cs , por exemplo), a interação da luz com a matéria é tratada como se fosse um dielétrico sujeito a um campo elétrico. Esta aproximação é muitas vezes denominada aproximação de dipolo uma vez que a distribuição de carga induzida na molécula ou átomo pelo campo em muito se aproxima daquela de um dipolo induzido. O campo elétrico aplicado polariza as moléculas no meio, deslocando as cargas de suas posições de equilíbrio e induzindo um momento dipolar μ_{ind} dada por:

$$\mu_{ind} = -ex \tag{2.1.8}$$

Onde e é a carga eletrônica e x o deslocamento de carga induzido pelo campo.

Quando uma radiação eletromagnética incide sobre um material, o campo eletromagnético oscilante exerce uma força sobre os elétrons do meio. Como os elétrons estão fortemente ligados ao núcleo, a maior resposta a este estímulo vem dos que estão na camada de valência. Enquanto a intensidade da radiação incidente for inferior à intensidade necessária para quebrar a ligação do elétron com o resto do átomo, a polarização do meio pode ser escrita:

$$\vec{\mathrm{P}} = \varepsilon_0 \chi \vec{\mathrm{E}} \tag{2.1.9}$$

Com ε_0 a permissividade elétrica do vácuo e χ a susceptibilidade do meio, que representa a resposta deste a um campo elétrico E aplicado. De um ponto de vista microscópico, um meio material é um sistema formado por partículas carregadas. A origem da polarização está relacionada com o surgimento de momentos de dipolos elétricos devido à existência destas partículas carregadas: a força associada com o campo elétrico aplicado produz um deslocamento relativo entre estas partículas. Deste deslocamento de cargas resulta o aparecimento de momentos de dipolos elétricos.

Com fontes de luz de baixas intensidades, o campo de radiação é muito menor que o campo intra-atômico (da ordem de 10^{10} V/m) e age como uma pequena perturbação a este campo. As cargas do meio com N elétrons por unidade de volume (elasticamente ligados e com mesma freqüência própria ω_0) comportam-se como osciladores harmônicos e a polarização (macroscópica) induzida P têm um comportamento linear como função da amplitude do campo elétrico E. Neste caso a polarização, no S.I, pode ser escrita como [21],

$$\mathrm{P} = -\mathrm{N}ex = \varepsilon_0 \chi \mathrm{E} \,. \tag{2.1.10}$$

Substituindo a eq. (2.1.7) na eq. (2.1.10) (e usando a equação (2.1.5)), obtemos a relação da susceptibilidade complexa

$$\chi = \frac{\mathrm{N}e^2}{m\varepsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma}. \tag{2.1.11}$$

Para freqüência da radiação, ω, próximas da freqüência de ressonância ω_0, ou seja, para $\left|\omega_0 - \omega\right| << \omega_0$,

$$\omega_0^2 - \omega^2 = \left(\omega_0 - \omega\right)\left(\omega_0 + \omega\right) \approx 2\omega_0\left(\omega_0 - \omega\right).$$

Então,

$$\chi \approx \frac{\mathrm{N}e^2}{2m\varepsilon_0\omega_0} \frac{1}{\omega_0 - \omega + i\left(\gamma/2\right)}. \tag{2.1.12}$$

Em um meio dielétrico com momento elétrico de dipolo gerado por um campo elétrico E, o campo de deslocamento elétrico D é definido por

$$D \equiv \varepsilon_0 \mathrm{E} + \mathrm{P} = \varepsilon \mathrm{E} \tag{2.1.13}$$

Então, de (2.1.10) e (2.1.13) temos

$$\chi = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} - 1 = \varepsilon_r - 1$$

Sendo ε_r a constante dielétrica do meio.

Podemos introduzir um índice de refração complexo $n = n' + in''$:

$$\varepsilon_r = n^2 = 1 + \chi$$

Onde $\varepsilon_r = \frac{\varepsilon}{e_0}$.

Em um meio diluído $\chi << 1$, podemos escrever

$$n = (1 + \chi)^{1/2} \approx 1 + \frac{\chi}{2}. \tag{2.1.14}$$

Assim, usando as equações (2.1.10) e (2.1.12) as partes real e imaginária do índice de refração têm as seguintes dependências com a freqüência:

$$n' = 1 + \frac{1}{2}\mathrm{Re}(\chi) = 1 + \frac{\mathrm{N}e^2}{4m\varepsilon_0\omega_0} \frac{\omega_0 - \omega}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} \tag{2.1.15}$$

$$n'' = -\frac{1}{2}\mathrm{Im}(\chi) = \frac{\mathrm{N}e^2}{4m\varepsilon_0\omega_0} \frac{\gamma/2}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\gamma/2)^2} \tag{2.1.16}$$

O comportamento dessas expressões é mostrado esquematicamente na figura 11. Podemos observar na figura que o coeficiente de absorção, dado pela

parte imaginária de n, é máximo na freqüência de ressonância ω_0. Já o índice de refração dado pela parte real de n, é maior do que 1 para baixas frequências e aumenta à medida que ω aproxima-se de ω_0. Este é o caso de dispersão normal, que é exibida por muitos materiais transparentes. Nas proximidades da ressonância, a dispersão torna-se anômala, pois o índice de refração diminui com o aumento da freqüência.

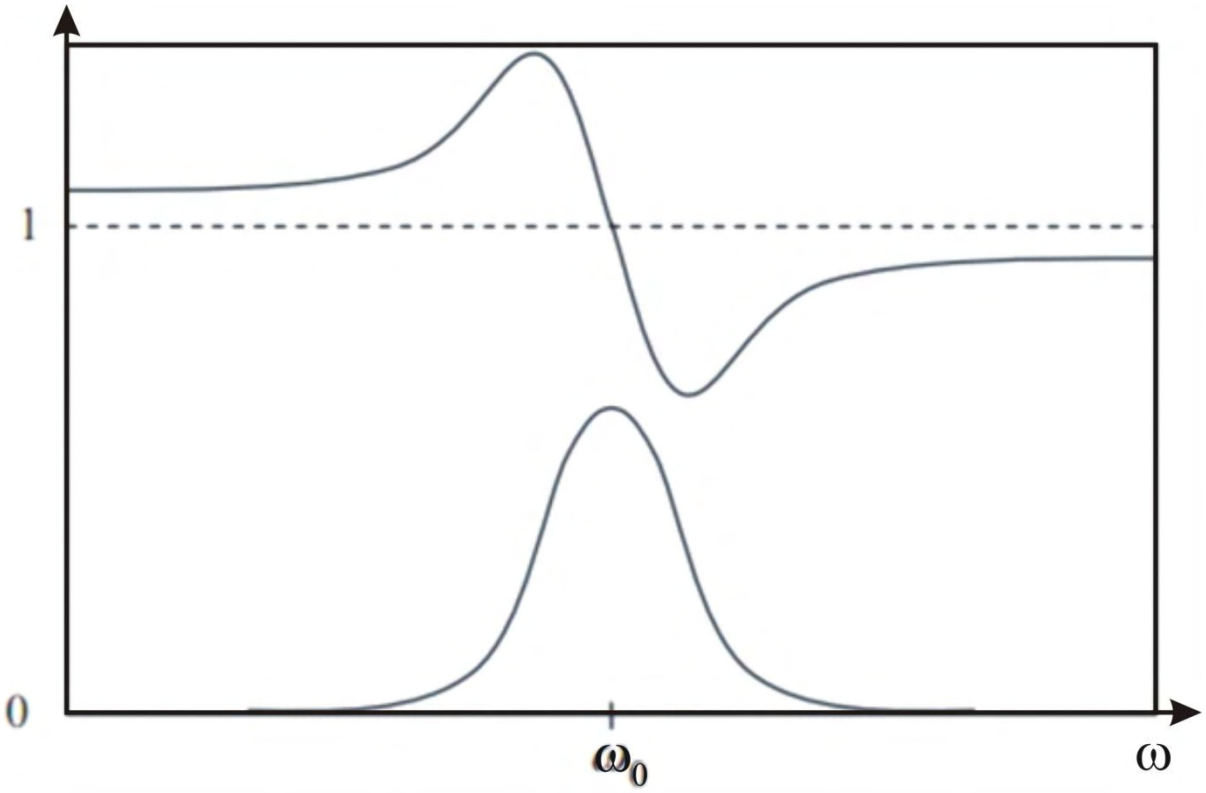

Figura 11 – Comportamento das partes real e imaginária do índice de refração complexo em função da freqüência.

Quando a intensidade da luz é alta, como aquela emitida por um laser, tal que o campo da radiação é comparável com o campo intra-atômico, as cargas do meio comportam-se como osciladores não harmônicos e a polarização induzida tem um comportamento não linear como função da amplitude do campo.

A polarização pode então ser expressa como uma expansão em série de potências do campo elétrico E:

$$\mathrm{P} = \varepsilon_0 \chi(\mathrm{E})\mathrm{E} = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} + \chi^{(2)}\mathrm{E} + \chi^{(3)}\mathrm{E}^2 + \ldots)\mathrm{E} \,. \qquad (2.1.17)$$

Os termos que variam não-linearmente com o campo passam a ter uma contribuição significativa. As susceptibilidades não-lineares ($\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \ldots$) representam não linearidades de ordens superiores da resposta do meio material. Por simplicidade, consideramos aqui que E e P são grandezas escalares. Portanto, da forma como as equações (2.1.9) e (2.1.17) estão escritas, descrevem somente as interações ópticas lineares e não lineares que ocorrem em um meio material sem perdas, sendo $\chi^{(n)}$ $(n = 1,2,3,\ldots)$ grandezas reais, escalares e constantes.

Entretanto, numa descrição mais geral, ou seja, considerando um meio com perdas e/ou dispersão, e levando em conta a natureza vetorial dos campos, as susceptibilidades do material são grandezas tensoriais e, portanto, dependem da natureza estrutural dos átomos constituintes do meio, e suas componentes são quantidades complexas dependentes das freqüências dos campos elétricos incidentes.

Nos meios centrosimétricos (caso dos vapores atômicos), a inversão do campo deve corresponder a uma inversão na polarização. Para que a condição de simetria seja válida, devemos ter necessariamente $\chi^{(2n)} = 0$.

Portanto, efeitos de variação do índice de refração estão ligados ao coeficiente do terceiro termo, $\chi^{(3)}$, da expressão (2.1.17) da polarização do meio. Entre os efeitos provocados pela mudança do índice de refração do material com a intensidade do campo incidente, está o efeito de auto-focalização [22] da onda que se propaga no meio.

Este efeito é produzido pela variação do índice de refração com a intensidade do feixe laser aplicado no material:

$$n(\mathrm{I}) = n_0 + \frac{n_2}{2}\left|\mathrm{E}\right|^2 \qquad (2.1.18)$$

Onde n_0 é o índice de refração linear, n_2 é o coeficiente de índice de refração não linear e $|E|^2 \sim \mathrm{I}$ é a intensidade da luz dependente da posição. Consideremos um feixe laser monomodo com um perfil transverso gaussiano propagando-se em um meio não-linear com índice dado pela equação (2.1.18). Se $n_2 > 0$, isto faz com que o feixe autofocalize, porque o aumento da intensidade provoca um aumento do índice de refração, provocando um atraso na propagação do centro do feixe, comparado à borda do mesmo. Esse aumento do caminho óptico para o centro do feixe fará com que ele saia da amostra com uma distorção de fase muito semelhante à que ocorreria com uma lente convergente (Figura 12). É como se o feixe criasse na amostra uma lente convergente, provocando uma alteração da fase e fazendo com que ele passe a convergir.

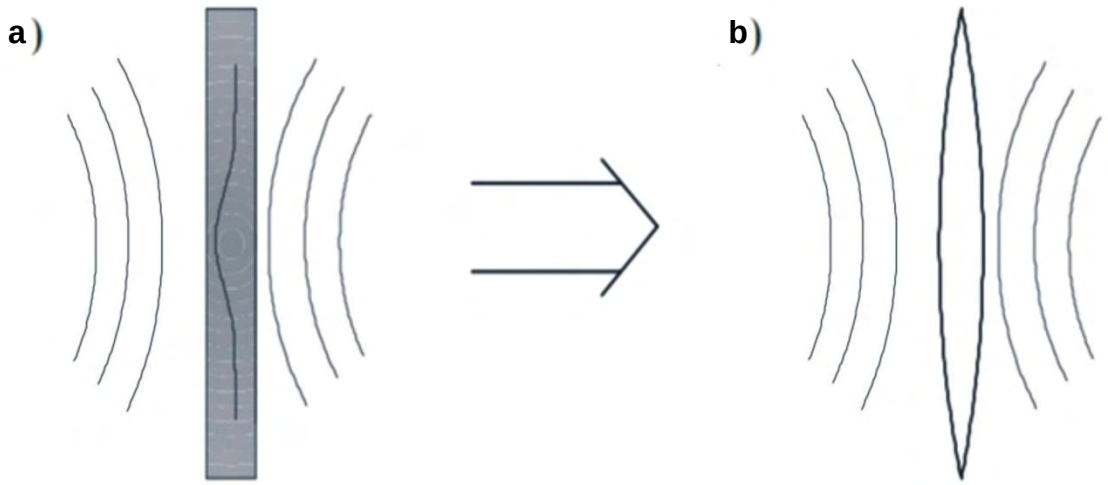

Figura 12 – Autofocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano (frente de onda $\approx$ esférica) por um material no qual o índice de refração aumenta com a intensidade. b) O aumento do caminho ótico para o centro do feixe é semelhante ao resultante da passagem por uma lente convergente.

Já para $n_2 < 0$, acontecerá o efeito oposto, ou seja, o meio agirá como uma lente divergente desfocalizando o feixe laser. A diminuição do índice de refração no centro do feixe resultará em uma velocidade de propagação da onda maior nessa região, onde a luz se adiantará com relação às bordas do feixe.

Este avanço da frente de onda no centro do feixe será semelhante à ação de uma lente divergente. É como se o feixe criasse na amostra uma lente divergente,

provocando uma alteração da fase e fazendo com que ele passe a divergir (Figura 13).

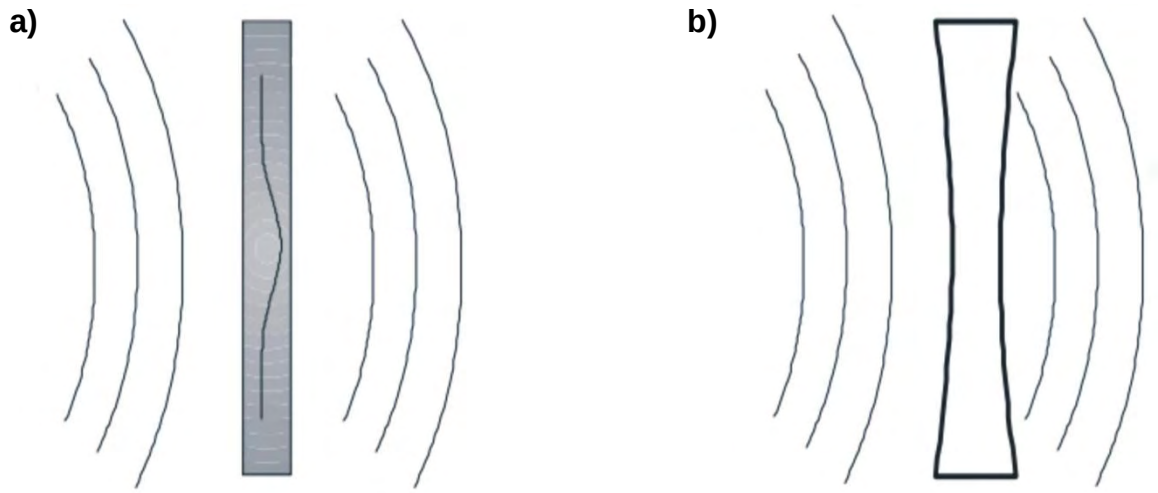

Figura 13 – Autodesfocalização de um feixe gaussiano: a) Transmissão de um feixe gaussiano por um material no qual o índice de refração diminui com a intensidade. b) A redução do caminho ótico para o centro do feixe é semelhante ao resultante da passagem por uma lente divergente.

2.2 DESCRIÇÃO TEÓRICA DA TÉCNICA Z-SCAN DE TRANSMISSÃO

Nos últimos anos o interesse no desenvolvimento de dispositivos puramente óticos, que possuem grande utilidade para os sistemas modernos de comunicação e chaveamento de sinais, vem aumentando o número de investigações e experimentações acerca dos efeitos não lineares proporcionados pela ótica não linear.

Várias técnicas experimentais podem ser empregadas para a investigação dos efeitos não-lineares. Quando a técnica utilizada é sensível, possibilitando a medição do índice de refração com alto grau de precisão, há a necessidade de uma montagem experimental mais complexa, empregando elementos como espelhos, divisores de feixe, lentes, dentre outros, o que requer um alinhamento cuidadoso, especialmente por empregar vários feixes na medida. De outra forma, quando o arranjo experimental é simples, necessita-se de uma detalhada análise da propagação da onda no interior da amostra, resultando em pouca sensibilidade.

Como exemplo de técnicas sensíveis tem-se a interferometria não-linear [23], a mistura degenerada de quatro ondas [24] e a mistura quase degenerada de três

ondas [25]. No que concerne às técnicas pouco sensíveis podem ser citadas a rotação elipsoidal [26] e medidas de distorção de feixe [27].

Em 1989 Sheik-Bahae *et al*. [28] desenvolveram uma técnica para determinar o sinal e a magnitude do índice de refração não-linear de materiais óticos, denominada de Varredura Z ("z-scan"). O método está baseado na distorção espacial do feixe ao atravessar um meio não-linear.

A técnica mostrou-se de fácil implementação no estudo de materiais transparentes, pois combina uma montagem simples, de feixe único, com uma grande sensibilidade da medida.

Uma de suas principais características é a capacidade de estimar o índice de refração não-linear através de uma relação simples entre a variação da transmitância observada durante a varredura da amostra na direção de propagação do feixe gaussiano e a distorção de fase induzida, sem a necessidade de ajustes teóricos detalhados.

A Figura 14 mostra um esquema da montagem experimental para aplicação da técnica de varredura z. A quantidade medida é a potência transmitida através de uma abertura de raio r_a quando um feixe laser atravessa uma amostra que se move ao longo do eixo de propagação do feixe.

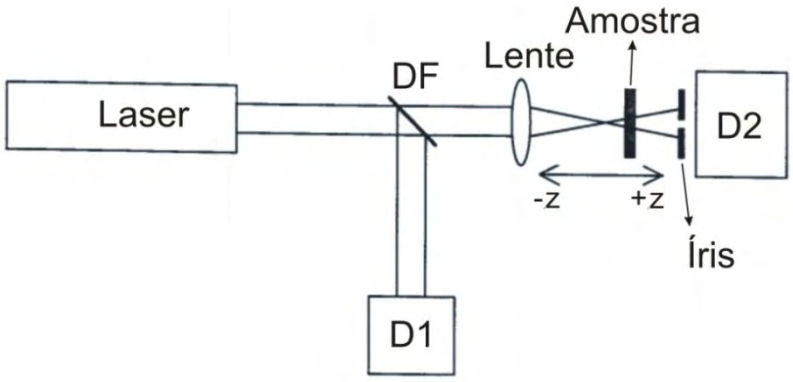

Figura 14 – Montagem básica da técnica Z-scan. DF= Divisor de Feixe, (D1, D2)= Detectores.

O resultado obtido é expresso pela transmitância normalizada, definida como a razão entre a potência transmitida quando a amostra está numa dada posição z

pela potência transmitida quando a amostra está longe do foco. A divisão das potências permite eliminar os efeitos lineares.

A Varredura Z de Transmissão (Z-Scan) emprega um feixe gaussiano [29] gerado por um laser. O feixe gaussiano é adequado para o estudo de efeitos não-lineares como o efeito Kerr dinâmico em varredura z, porque apresenta um perfil de intensidade homogênea com simetria radial (ver capítulo I, seção 1.3), que permite então medir esse efeito através do detector com uma abertura circular colocada antes do detector.

Se a amostra tiver uma variação positiva do índice de refração com a intensidade $n_2 > 0$, o índice de refração é maior no eixo do feixe laser e diminui radialmente, de maneira que o vapor atômico comporta-se como uma lente convergente. Se o feixe laser incidente estiver colimado (Figura 15), sua transmissão através da abertura sofrerá então um aumento de intensidade.

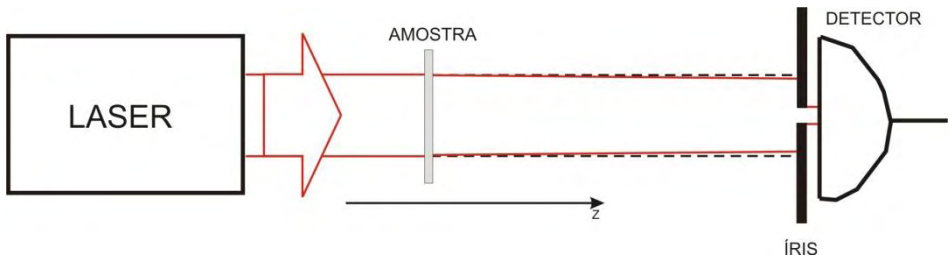

Figura 15 – Montagem básica com um feixe laser colimado. O detector irá medir as pequenas variações de fase provocadas pelos efeitos óticos não-lineares.

Para que esse efeito não-linear possa ser detectado, é necessária uma intensidade suficiente para que o termo não-linear no índice de refração se torne importante em relação ao termo linear.

Usa-se então um feixe focalizado por uma lente convergente. Neste caso o meio não linear constitui uma segunda lente convergente no caminho do feixe laser, se $n_2 > 0$, e o efeito na potência transmitida pela íris depende da posição da amostra em relação ao foco do feixe.

Se a amostra tiver uma variação positiva do índice de refração com a intensidade $(n_2 > 0)$ e for colocada inicialmente numa posição distante aquém do foco (-z) de uma lente, como mostrado na figura 16, o efeito não será detectável

devido à intensidade luminosa ser insuficiente para provocar efeitos não lineares no vapor. Por conseguinte a transmitância T(z) permanecerá constante em torno desta posição.

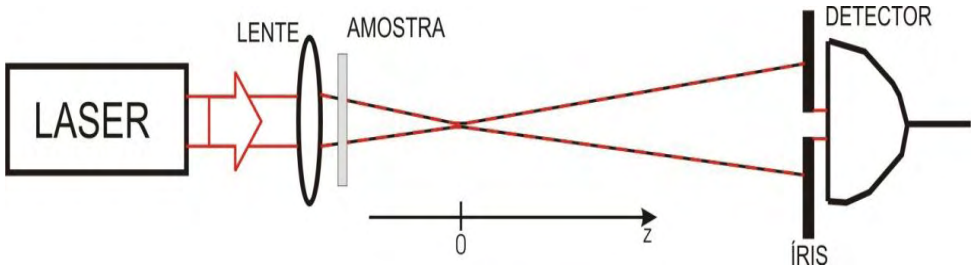

Figura 16 – Montagem básica da técnica de Varredura Z. O detector irá medir as variações de fase provocadas pelo efeitos óticos não-lineares. A cintura do feixe na ausência da amostra define a posição z=0.

Movendo a amostra em direção ao foco (Figura 17), o efeito de autofocalização será maior devido ao aumento da intensidade incidente. Conseqüentemente a transmitância neste caso tende a diminuir, como mostra a Figura 17a. Por outro lado, a convergência introduzida pela amostra após o foco $z > 0$ tende a colimar o feixe, provocando com isto um aumento da transmitância medida, como se vê na Figura 17b. Para finalizar a varredura, a amostra é levada longe do foco e a transmitância retorna ao valor linear.

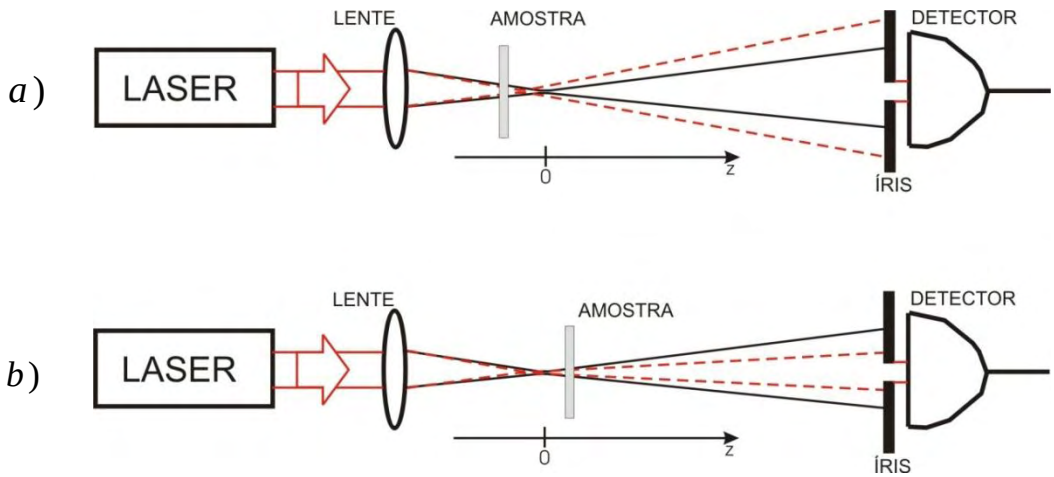

Figura 17 – Efeito lente para o caso $(n_2 > 0)$. (a) Quando a amostra está antes do foco o feixe aparece mais expandido na posição do diafragma. (b) Quando está após o foco, o feixe tende a ser colimado.

Ao traçar-se uma curva da transmitância medida pelo detector em função da posição da amostra, observa-se um mínimo de transmitância pré-focal (vale), seguida por um máximo de transmitância pós-focal (pico) mostrado na Figura 18.

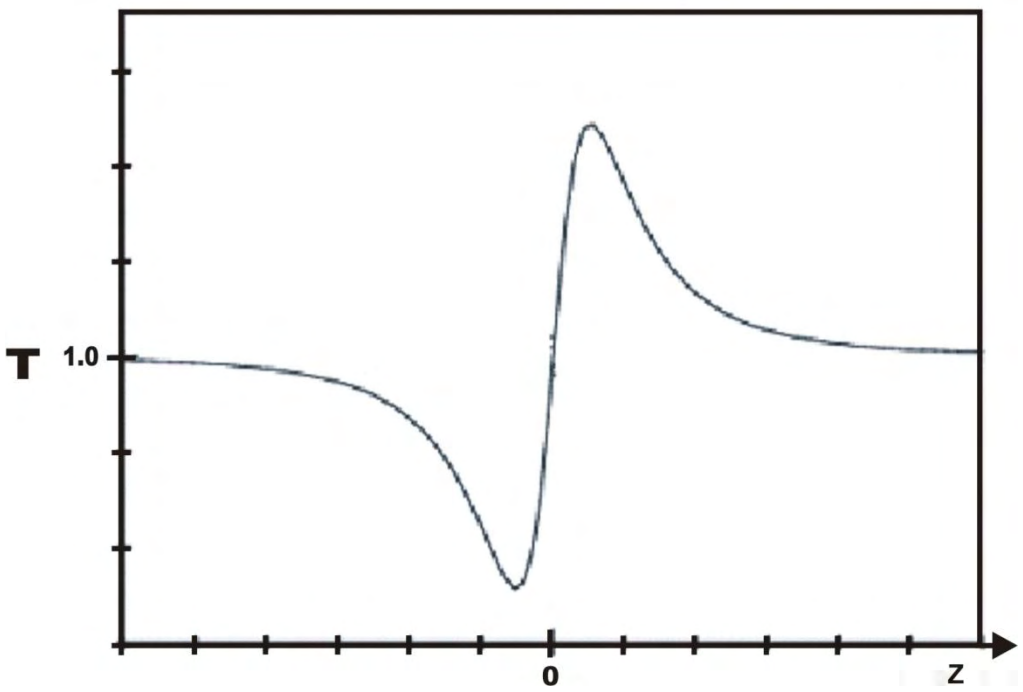

Figura 18 – Transmitância normalizada T(z) em função da posição da amostra ao longo do eixo z para um coeficiente não linear $n_2 > 0$.

Considerando uma amostra com uma variação negativa no índice de refração não linear com o aumento da intensidade $(n_2 < 0)$, o efeito de autodefocalização será maior devido ao aumento da intensidade incidente.

Com a amostra situada antes da cintura (Figura 19), mas distante desta, o efeito de autodefocalização será pequeno devido à baixa intensidade. Quando a mesma é aproximada da cintura tem-se um aumento da autodefocalização e a divergência que a amostra irá introduzir no feixe resultará em uma concentração do feixe sobre a abertura, produzindo um aumento na intensidade medida, como mostra a Figura 19a.

Logo além da cintura, a divergência do feixe introduzida pela amostra irá fazer com que a intensidade atravessando a íris seja menor, resultando assim em um

mínimo de intensidade, como se vê na Figura 19b. Quando a amostra é levada para longe do foco, a transmitância retorna ao valor linear.

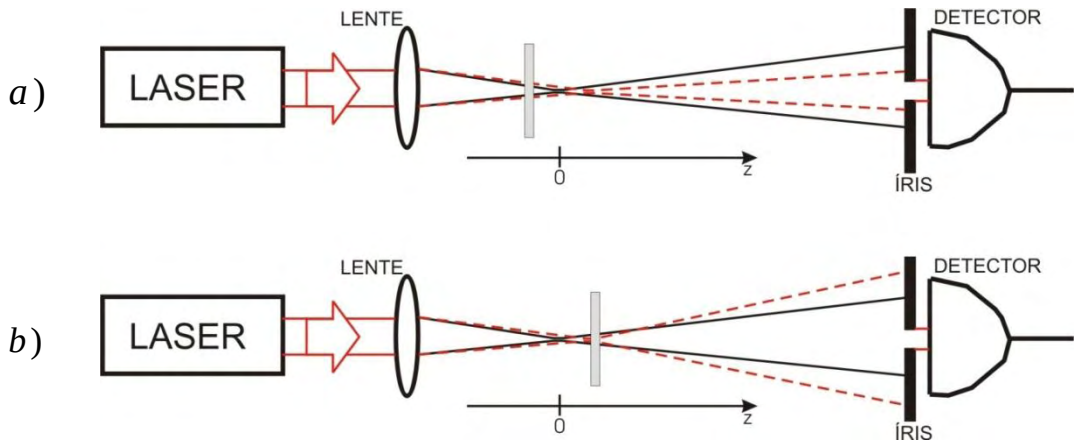

Figura 19 – Efeito lente para o caso $(n_2 < 0)$. (a) Quando a amostra está antes do foco à divergência provocada pela amostra produz um aumento na intensidade medida. (b) Quando está após o foco, à divergência provocada pela amostra produz uma redução na intensidade medida.

Ao traçar-se uma curva da transmitância medida pelo detector D em função da posição da amostra, observa-se um máximo de transmitância pré-focal (pico), seguida por um mínimo de transmitância pós-focal (vale) mostrado na Figura 20.

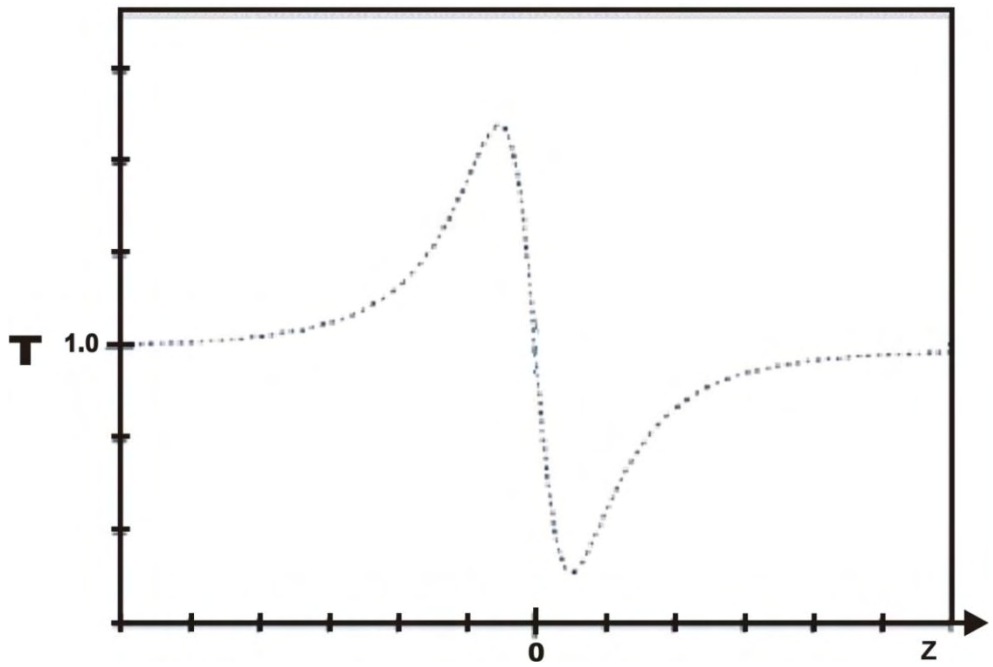

Figura 20 – Transmitância normalizada T(z) em função da posição da amostra ao longo do eixo z para um coeficiente não linear $n_2 < 0$.

A descrição qualitativa da técnica de varredura z acima descrita permite entender a origem física das curvas de forma dispersiva obtidas da aplicação desta técnica a amostras não-lineares.

Vamos agora entrar nos detalhes formais da técnica, de maneira a deduzir uma expressão matemática dessas curvas, permitindo a determinação de grandezas físicas do sistema (índice de refração não-linear).

2.2.1 *Refração não-linear*

O desenvolvimento do formalismo matemático da Varredura z será apresentado com base na teoria desenvolvida por M. Sheik-Bahae no seu artigo de 1990 [30].

Consideramos um feixe de luz com perfil espacial gaussiano, deslocando-se na direção +z, incidindo na amostra numa posição z e que pode ser escrito como (ver seção 1.2):

$$\mathrm{E}(r,z) = \mathrm{E}_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)} \right] e^{-i\phi(z)}, \qquad (2.2.1)$$

Onde E_0 representa a amplitude do campo elétrico no foco, w_0 é a cintura do feixe, $k = 2\pi/\lambda$, λ é o comprimento de onda e $\phi(z)$ contém as variações de fase independentes da distância ao eixo de propagação do feixe. A geometria do feixe é descrita por:

$$w^2(z) = w_0^2 \left(1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right) \qquad (2.2.2)$$

$$R(z) = z\left(1 + \left(\frac{z_0}{z}\right)^2\right) \tag{2.2.3}$$

Sendo $z_0 = \frac{kw_0^2}{2}$ é o comprimento de Rayleigh e representa a distância na qual a intensidade do feixe no eixo diminui de um fator 2 a partir do foco $\mathrm{I}(r = 0, z = z_0) = \frac{1}{2}\mathrm{I}(r = 0, z = 0)$.

Se a espessura da amostra é suficientemente pequena, tal que mudanças no diâmetro do feixe devido à difração ou à refração não linear sejam desprezíveis **no interior da amostra**, ou seja, $L << z_0$ diz-se que a amostra é fina. Com esta condição, simplifica-se o problema. A amplitude e a fase do campo como funções de z' são governadas, no regime SVEA (palavra acrônimo de Slowly Varying Envelope Approximation) (ver Apêndice C) por:

$$\frac{d\left|\mathrm{E}\right|}{dz'} = -\frac{\alpha}{2}\left|\mathrm{E}\right| \tag{2.2.4}$$

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta n \quad , \tag{2.2.5}$$

onde z' é a coordenada de propagação dentro da amostra, $\Delta n = n_2\mathrm{I}$, com I sendo a intensidade de pico no foco que está relacionado o índice de refração não linear definido na equação (2.1.18) e o coeficiente de absorção α contêm o termo de absorção linear.

A variação de fase acumulada na amostra é, na saída da amostra (em $z' = L$)

$$\Delta\phi_e = \frac{2\pi}{\lambda}\int_z^{z+L}\Delta n(z')dz' = \frac{2\pi}{\lambda}\frac{n_2}{2}\int_z^{z+L}\left|\mathrm{E}(z')\right|^2 dz'$$

Usando a eq. (2.2.1)

$$\Delta\phi_e = \frac{2\pi}{\lambda}\frac{n_2}{2}\left|\mathrm{E}_0\right|^2 w_0^2\int_z^{z+L}\frac{1}{w^2(z')}\exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z')}\right]dz' \qquad (2.2.6)$$

No caso de um meio com absorção não linear desprezível, e usando a condição $L << z_0$, podemos desprezar as mudanças "gaussianas" do diâmetro do feixe na sua propagação na amostra, ou seja, podemos considerar $w(z'=0) = w(z) \sim w(z'=L)$, onde z é a posição da face de entrada da amostra. Na face de saída, a defasagem acumulada é assim somente função da coordenada radial do campo incidente em z, do coeficiente de índice de refração não linear n_2, e da absorção sofrida no meio não linear:

$$\left|\mathrm{E}(r,z')\right|^2 = \left|\mathrm{E}(r,z)\right|^2 e^{-\alpha(z'-z)} \qquad (2.2.7)$$

A variação da fase ao longo da amostra é

$$\Delta\phi(r,z+L) \approx \frac{2\pi}{\lambda}\frac{n_2}{2}\left|\mathrm{E}(r,z)\right|^2\int_0^{L} e^{-\alpha z'}dz' \qquad (2.2.8)$$

$$\Delta\phi_e(r,z+L) \approx \frac{2\pi}{\lambda}\frac{n_2}{2}\left|\mathrm{E}_o\right|^2\frac{w_0^2}{w^2(z)}\exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right)\left(\frac{1-e^{-\alpha L}}{\alpha}\right). \qquad (2.2.9)$$

Usando

$$\Delta n_0 = \frac{n_2}{2}\left|\mathrm{E}_0\right|^2 \quad , \tag{2.2.10}$$

o índice de refração não linear na posição da cintura, e a eq. (2.2.2) podemos reescrever a defasagem na superfície de saída da amostra:

$$\Delta\phi_e(z,r) = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta n_0 \frac{1-e^{-\alpha L}}{\alpha}\frac{1}{1+\frac{z^2}{z_0^2}}\exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad , \tag{2.2.11}$$

$$= \Delta\Phi_0(z)\exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad , \tag{2.2.12}$$

com

$$\Delta\Phi_0(z) = \frac{\Delta\phi_0}{1+\frac{z^2}{z_0^2}} \tag{2.2.13}$$

a defasagem no eixo na posição z e

$$\Delta\phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta n_0 \frac{1-e^{-\alpha L}}{\alpha}$$

$$= \frac{2\pi}{\lambda}\Delta n_0 L_{eff} \tag{2.2.14}$$

a distorção de fase no foco.

O campo E_e no plano de saída da amostra tem então a seguinte forma

$$\mathrm{E}_e(z,r) = \mathrm{E}(z,r)e^{-\alpha L/2}e^{-i\Delta\phi_e(z,r)} \tag{2.2.15}$$

onde a variação de fase dada pela eq. (2.2.11) foi introduzida.

Podemos ver que o último termo da equação (2.2.15) é uma exponencial de exponencial. Então para se obter o padrão do feixe no campo distante no plano de abertura utilizou-se o método de decomposição gaussiana (DG), método desenvolvido por Weaire et al. [31], no qual eles decompõem o campo elétrico no plano de saída da amostra em uma somatória de feixes gaussianos através de uma expansão em série de Taylor do termo de fase não linear, i.e.,

$$e^{Y} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{Y^m}{m!} \quad .$$

Assim,

$$e^{i\Delta\phi_e(r,z)} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\left[i\Delta\phi_e(r,z)\right]^m}{m!} \quad .$$

Usando a equação (2.2.12) obtemos:

$$e^{i\Delta\phi_e(r,z)} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\left[i\Delta\phi_0(r,z)\right]^m}{m!} e^{-2mr^2/w^2(z)} \quad . \tag{2.2.16}$$

Reintroduzindo a equação (2.2.16) em (2.2.15) e usando (2.2.1), o campo na saída da amostra é,

$$\mathrm{E}_a(r,z) = \mathrm{E}_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left[\frac{-r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R_m}\right] e^{-\alpha L/2} \sum_{m=o}^{\infty} \frac{\left[i\Delta\phi_0(z)\right]^m}{m!} \exp\left[-\frac{2mr^2}{w^2(z)}\right]. \quad (2.2.17)$$

Ou seja, o campo elétrico é agora expresso como uma soma de campos gaussianos. Reorganizando os termos e reescrita como:

$$\mathrm{E}_a(r,z) = \mathrm{E}(r=0,z) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=o}^{\infty} \frac{\left[i\Delta\phi_0(z)\right]^m}{m!} \exp\left[\frac{-r^2}{w_m^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R_m(z)}\right], \quad (2.2.18)$$

onde

$$\mathrm{E}(r=0,z) = \mathrm{E}_0 \frac{w_0}{w(z)}$$

o campo no eixo do feixe laser, e

$$W_m^2(z) = \frac{w^2(z)}{2m+1}$$

a largura do modo **m** em **z**, no plano de saída da amostra.

Cada feixe gaussiano pode agora ser propagado para o plano de abertura onde eles serão somados para reconstruir o feixe. Assim o campo resultante no plano da abertura pode ser escrito, usando as equações (2.2.1,2.2.2,2.2.3) da seguinte forma.

$$\mathrm{E}_a(r) = \mathrm{E}(r=0,z) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=o}^{\infty} \frac{\left[i\Delta\phi_0(z)\right]^m}{m!} \frac{W_{m0}}{w_m} \exp\left[\frac{-r^2}{w_m^2(z+d)} - \frac{ikr^2}{2R_m(z+d)} + i\theta_m\right], \quad (2.2.19)$$

definindo d como a distância de propagação no espaço livre da amostra em relação ao plano de abertura e $g = 1 + \frac{d}{R(z)}$, os demais parâmetros na equação (2.2.19) são expressos como

$$w_m^2 = w_{m0}^2 \left[g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right],$$

$$R_m = d \left[1 - \frac{g}{g^2 + d^2 / d_m^2} \right]^{-1},$$

$$d_m = \frac{k w_{m0}^2}{2},$$

$$\theta_m = \tan^{-1} \left[\frac{d / d_m}{g} \right].$$

A potência transmitida através da abertura é obtida integrando a função:

$$dP_a(r) = I_a(r) \times 2\pi r dr$$

com

$$I_a(r) = \frac{1}{2\mu_0 c} n_0 \left| E_a(r) \right|^2 = \frac{1}{2} n_0 \varepsilon_0 c \left| E_a(r) \right|^2, \qquad (2.2.20)$$

a intensidade no plano de abertura.

A potência transmitida pela abertura de raio r_a é então

$$\mathrm{P}_T = \int_0^{r_a} d\mathrm{P}_a(r) = \int_0^{r_a} \mathrm{I}_a(r) 2\pi r dr = \pi n_0 \varepsilon_0 c \int_0^{r_a} \left|\mathrm{E}_a(r)\right|^2 r dr \quad . \quad (2.2.21)$$

No regime linear, o campo é escrito da seguinte forma

$$\mathrm{E}(r, z_a) = \mathrm{E}_0 \frac{w_0}{w_a} \exp\left[-\frac{r^2}{w_a^2} - \frac{ikr^2}{2R_a} \right] e^{-i\phi(z_a)},$$

onde z_a é a posição do plano de abertura e w_a o raio do feixe em z_a no regime linear.

A potência na abertura é

$$\mathrm{P}_{linear,a}(z_a) = \pi \varepsilon_0 c \left|\mathrm{E}_o\right|^2 \frac{w_0^2}{w_a^2} \int_0^{r_a} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_a^2} \right) r dr$$

$$= \pi \varepsilon_0 c \left|\mathrm{E}_o\right|^2 \frac{w_0^2}{w_a^2} \left(-\frac{w_a^2}{4} \right) \left[e^{-\frac{2r_a^2}{w_a^2}} - 1 \right]$$

$$= \frac{1}{4} \pi \varepsilon_0 c \left|\mathrm{E}_o\right|^2 w_0^2 S$$

$$= \frac{1}{2} \pi w_0^2 I_0 S$$

$$= S\mathrm{P}_i,$$

onde

$$\mathrm{P}_i = \frac{1}{2} \pi w_0^2 I_0,$$

é a potência de entrada,

$$I_0 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c \left|\mathrm{E}_0\right|^2,$$

e

$$S = 1 - e^{-\frac{2r_a^2}{w_a^2}},$$

a transmitância linear da abertura.

A transmitância normalizada da varredura z é definida como

$$T(z) = \frac{\mathrm{P}_T}{SP_i}. \tag{2.2.22}$$

Como se pode notar, o tamanho da abertura S é um importante parâmetro visto que, ao se aumentar o tamanho da abertura, as variações em $T(z)$ são reduzidas. O efeito desaparece para uma abertura muito grande ou na ausência de abertura onde $(S = 1)$ e, $T(z) = 1$ para todo z e $\Delta\phi_0$.

Para aproximações em que a variação de fase $\Delta\phi_0$ é pequena $|\Delta\phi_0| << 1$, assumindo que a íris e o fotodetector se situam no campo distante, $d >> z_0$ e que a abertura da íris seja pequena comparada ao diâmetro do feixe no campo distante, $(r_a << w_a)$, a transmitância normalizada se reduz a uma equação dada por [30]:

$$\mathrm{T}(z, \Delta\phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0 x}{\left(x^2 + 1\right)\left(x^2 + 9\right)} \tag{2.2.23}$$

onde $x = \frac{z}{z_0}$.

Definindo Δz_{PV} como a distância entre as posições de pico e vale na assinatura Z-scan e ΔT_{PV} como a variação da transmitância normalizada entre o pico e vale da assinatura, pode-se chegar a uma relação bem simples entre ΔT_{PV} e

o valor de n_2, que permite obter de forma rápida o valor de n_2 para uma dada amostra em estudo [30].

Derivando a expressão (2.2.23) com relação à x e igualando a zero, podemos obter a distância entre os dois extremos $\frac{dT}{dx} = 0$ da transmitância:

$$\Delta z_{PV} \approx 1.7 z_0 . \tag{2.2.24}$$

Uma grandeza facilmente medida num experimento de Z-scan é ΔT_{PV}, que é a diferença de transmitância entre o pico e o vale, $T_P - T_V$. A variação desta quantidade em função de $|\Delta\phi_0|$ para várias aberturas S, exibe uma relação linear do tipo:

$$\Delta \mathrm{T}_{PV} = 0.406 \times (1 - S)^{0.25} |\Delta\phi_0| \quad \text{para} \quad |\Delta\phi_0| \leq \pi . \tag{2.2.25}$$

Portanto, pode-se determinar o índice de refração não-linear através de uma medida de ΔT_{PV}, com alguns parâmetros experimentais medidos. Substituindo a eq.(2.2.14) na equação acima encontramos a expressão para n_2, que no sistema internacional de unidades (SI) tem a forma dada por:

$$n_2 = \frac{\Delta \mathrm{T}_{P-V} \lambda}{0.406\,(1 - S)^{0.25}\, 2\pi \mathrm{I}_0 L_{eff}} . \tag{2.2.26}$$

Capítulo 3

Capítulo 3

MONTAGEM EXPERIMENTAL

Apresenta-se neste capítulo uma descrição do aparato experimental para realização de espectroscopia do tipo “varredura-z” (z-scan) em vapor ressonante. Utilizamos essa montagem para a obtenção de medidas de não linearidades ópticas em vapor de Cs . Esse capítulo é dividido em tópicos correspondendo às varias partes da montagem experimental.

3.1 INTRODUÇÂO

Abaixo estão detalhados ambas a montagem experimental e a realização das experiências. O sistema estudado é um vapor atômico de césio, contido em uma célula ótica. A densidade de átomos no vapor é baixa (vapor diluído), de maneira que átomos estão em um regime onde os efeitos de pressão são desprezíveis, ou seja, os átomos são isolados, não interagindo entre si. Este sistema atômico é iluminado por um feixe, emitido por um laser de diodo monocromático de distribuição de freqüência estreita, estabilizado em corrente e temperatura. O feixe laser passa por um filtro espacial transmitindo um modo espacial gaussiano e é focalizado por uma lente fina. A amostra é deslocada ao longo do eixo de propagação do feixe focalizado.

Descrevemos nas seções 1.1 e 1.3 do Capítulo 1 os fundamentos do funcionamento de um laser de diodo assim como a estrutura e as propriedades do átomo de césio em vapor. Vamos a seguir completar a descrição da nossa experiência e de seus componentes.

3.2 EQUIPAMENTOS

3.2.1 Fonte *LASER*

Técnicas precisas de dopagem de semicondutores permitem que eles sejam confeccionados para operar em freqüência bem definidas (sintonizáveis em alguns nm) sendo possível então se escolher lasers emitindo em torno da freqüência de ressonância de transições atômicas.

Para a realização das medidas foi utilizado um laser de diodo do tipo AlGaAs com heteroestrutura (modelo SDL-SPECIAL AV 222), operando tipicamente com uma corrente de aproximadamente 0.1 A e emitindo cerca de 50 mW de potência ótica em modo contínuo (cw).

O laser opera em torno do comprimento de onda de 852 nm, sendo tal comprimento de onda escolhido por estar próximo da ressonância D_2 do átomo de césio, tendo um esquema de estabilização dinâmica da freqüência do laser, que usa refletores de Bragg. Nesse refletor a refletividade é função do comprimento de onda, ele só reflete certos comprimentos de onda, o que favorece os modos da cavidade que correspondem a esses comprimentos de onda. Ele é do tipo DBR (Distributed Bragg Reflector).

A montagem experimental do diodo laser está esquematizada na figura 21.

Como explicado no Capítulo 1, a freqüência de emissão de um diodo laser depende da temperatura e da corrente, portanto na junção p-n a corrente e a temperatura são estabilizadas de maneira a limitar derivas de freqüências. Está estabilização é chamada de primária, em relação a outras técnicas de controle de emissão, em geral óticas.

Um circuito eletrônico de estabilização de corrente é utilizado para fornecer corrente estável ao diodo laser, com possibilidade de varredura e modulação. Para proteger o diodo laser contra transientes de corrente indesejados a alimentação é provida por uma fonte de corrente de baixo ruído, ligada a uma bateria química de 12 V. Desta forma obtem-se uma estabilidade relativa de 10^{-4} na corrente de alimentação do diodo.

Além da estabilização primária é fundamental garantir a estabilidade mecânica da montagem do laser de diodo.

O controle da temperatura é efetuado através de um circuito que analisa as variações de temperatura em relação a um determinado valor de referência e as corrige através de um elemento peltier integrado ao módulo laser DBR.

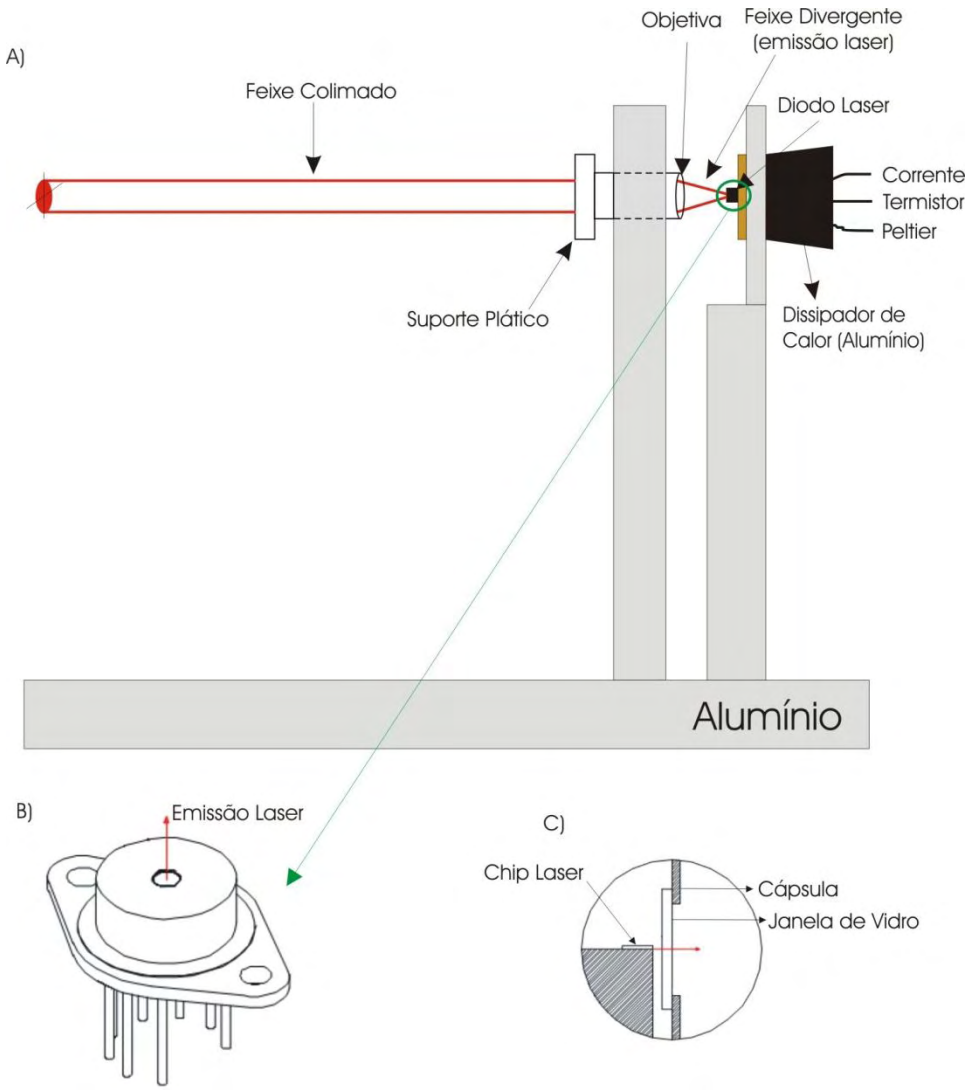

Figura 21 – (A) Vista lateral do suporte do laser de diodo. O feixe de saída, fortemente divergente é colimado por uma objetiva de 8 mm. Estão representados também o conjunto de conectores de corrente e peltier-termistor de estabilização ativa da temperatura. (B) Cápsula do laser. (C) Detalhe da janela da cápsula do laser.

A temperatura é ativamente estabilizada através da injeção de um sinal de erro, obtido de um termistor NTC montado junto ao diodo, na corrente de alimentação de um elemento peltier (fixo ao diodo). Os elementos NTC utilizados

nos nossos laboratórios têm tipicamente uma resistência de 10 kΩ a temperatura ambiente (25ºC).

Como o comprimento de onda emitido por esse laser à temperatura ambiente está alguns nanometros abaixo do comprimento de onda da linha D_2 do césio (852 mn) é necessário aquecer a junção semicondutora de alguns graus, sabendo que a dependência de λ com a temperatura é aproximadamente Δλ= 0.3 nm/K.

O elemento peltier é um dispositivo que gera um gradiente de temperatura entre suas faces quando sujeito a uma corrente elétrica. Essa corrente é controlada ativamente por um circuito com ponte (ponte de Wheatstone) de resistores que compara o sinal da temperatura do diodo (ver a Figura 22), obtido do termistor, com a temperatura necessária à junção, estabelecida pelo pesquisador no circuito.

A ponte de Wheatstone é um circuito elétrico usado como medidor de resistências elétricas. O circuito é composto por uma fonte de tensão, um galvanômetro e uma rede de quatro resistores, sendo dois destes conhecidos (normalmente $\mathbf{R_1}$ e $\mathbf{R_3}$ são iguais), um ajustável $\mathbf{R_2}$ (estabelecido pelo pesquisador) e $\mathbf{R_T}$ o termistor.

Com este propósito, entre A e D se estabelece a alimentação da fonte de tensão, e entre B e C é conectado um galvanômetro como um indicador de corrente. Quando houver uma diferença de potencial entre os pontos B e C, o galvanômetro acusará a passagem de corrente. Essa diferença de potencial poderá ser anulada através de um ajuste conveniente do valor da resistência do termistor. Quando esta situação for obtida, tem-se $V_B=V_C$ e, consequentemente, a diferença de potencial entre os pontos A e B deve ser a mesma que entre A e C, e então

$$i_3 R_3 = i_1 R_1 \tag{3.1.1}$$

e, de maneira idêntica:

$$i_T R_T = i_2 R_2 \tag{3.1.2}$$

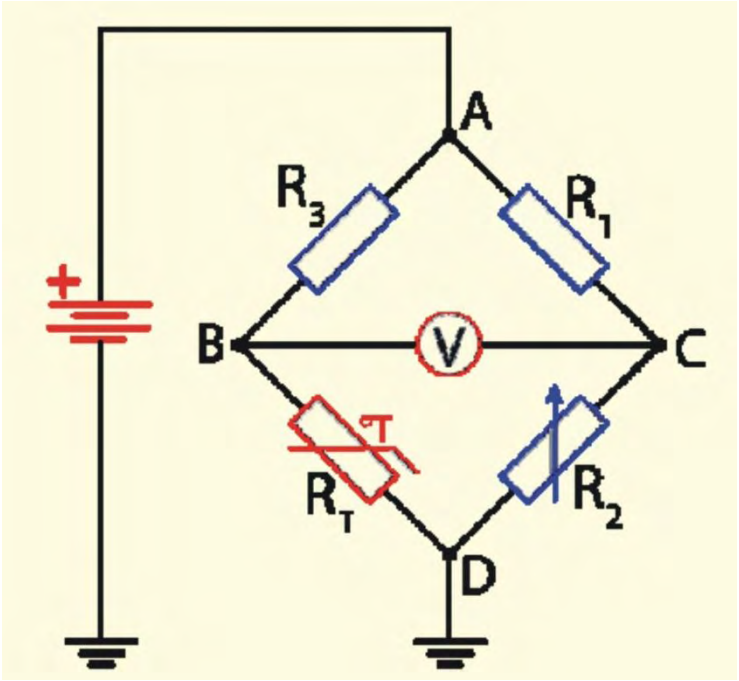

Figura 22 – Diagrama do circuito elétrico da ponte de Wheatstone.

Dividindo a equação (3.1.1) pela equação (3.1.2), tem-se:

$$\frac{i_3 R_3}{i_T R_T} = \frac{i_1 R_1}{i_2 R_2}$$

Como não passa corrente pelo galvanômetro, situação denominada de equilíbrio da ponte, $i_1 = i_2 = i_3 = i_T$, resultando em

$$\frac{R_3}{R_T} = \frac{R_1}{R_2} \quad .$$

A condição de equilíbrio de uma ponte de Wheatstone é então dada pela relação de proporcionalidade onde os produtos das resistências de resistores alternados são iguais:

$$R_1 R_T = R_3 R_2$$

A resistência elétrica do termistor diminui com o aumento de temperatura. Então quando essas temperaturas são diferentes, a fonte de temperatura muda o

processo de alimentação do peltier de modo a igualá-las. Essa realimentação pode ser positiva ou negativa (resfriamento ou aquecimento).

No nosso experimento $\mathbf{R_T}$=10 KΩ para a temperatura ambiente (25ºC), então o pesquisador ajusta a resistência $\mathbf{R_2}$ da ponte para que o laser depois de ligado opere a uma determinada temperatura, de forma que quando houver uma diferença de temperatura em relação à estabelecida, a resistência do termistor muda desequilibrando a ponte de Wheatstone e gerando um sinal de erro para corrigir o desvio de temperatura, através da corrente no elemento peltier.

De modo a garantir a correção eficiente da temperatura, uma das faces do peltier fica em contato com uma placa de alumínio e a outra face com uma placa de metal (bronze), onde esta colocado o diodo laser (Figura 23). Ambas as placas e o diodo são reservatórios de calor, cujas dimensões e características térmicas influenciam a estabilidade da temperatura.

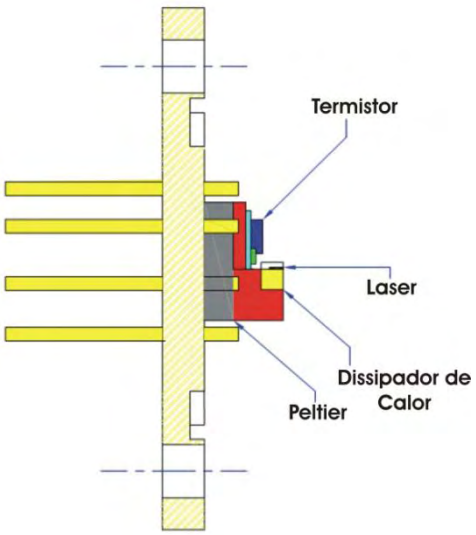

Figura 23 – Corte esquemático da cápsula do laser.

Uma objetiva plano-convexa (que é na realidade um dubleto de lentes tratadas com filme anti-refletor) de distância focal 8 mm é usada para colimar o feixe de saída do diodo, amplamente divergente (de 10º na horizontal e 30º na vertical) devido à dimensão da região emissora ser extremamente pequena (3 μm por 1 μm).

A objetiva de colimação do feixe é fixa a um suporte de plástico, o qual está fixado por um parafuso junto à saída do diodo. A face menos curva da lente esta

virada para o laser. Sua posição final é tal que o foco coincida com a posição do diodo e o feixe que a atravessa se propague paralelamente ao plano da mesa. Como trabalhamos com corrente acima do limiar de oscilação laser, o feixe pode ser facilmente observado ao longo do experimento com ajuda de um cartão fosforescente ou de um visor infravermelho.

O ajuste fino de colimação é feito com o parafuso que regula a distância da objetiva ao diodo. Ajusta-se o foco de modo a levar o foco do laser "ao infinito". A posição para a objetiva esta otimizada quando o feixe, além de não inclinar, não focaliza numa distância apreciável (dentro do laboratório) e possui o perfil mais simétrico e regular possível. A posição transversal da lente em relação ao diodo é de certo modo importante, mas seu posicionamento longitudinal é crítico, pois o feixe focaliza para deslocamentos mínimos da objetiva em torno do ponto ideal.

Depois que o laser é alinhado e colimado, uma caixa de proteção de acrílico é parafusada à base (como mostrado na Figura 24) para proteger o sistema de correntes de ar e da poeira. O local no acrílico atingido pelo feixe do laser é marcado e furado, constituindo a janela do laser (em uma situação ideal usa-se uma janela de vidro com filme anti-refletor, isolando-se completamente a montagem mesmo durante a operação). O comportamento do laser será em geral determinado tanto pela estabilidade da montagem em temperatura quanto por variações ambientais térmicas e de correntes de ar no laboratório.

O laser deve estar protegido contra vibrações mecânicas na mesa, a temperatura no laboratório deve ser estável e ruídos sonoros devem ser evitados.

Os diodos são frágeis no que diz respeito a altas correntes, variações abruptas de corrente, temperaturas excessivas e realimentação ótica por reflexão nos diversos elementos da experiência, e devem assim ser evitadas ou corrigidas todas essas perturbações.

Deve-se assegurar que o feixe laser se propaga paralelamente ao plano da mesa ótica onde esta montada a experiência, e que ele esteja bem alinhado no fotodetector. Esses cuidados são particularmente necessários em uma experiência como a nossa onde a assinatura do efeito procurado encontra-se nas variações de intensidade do sinal detectado, e onde se deve eliminar, então, todas as outras possíveis fontes de variação de intensidade como um alinhamento defeituoso.

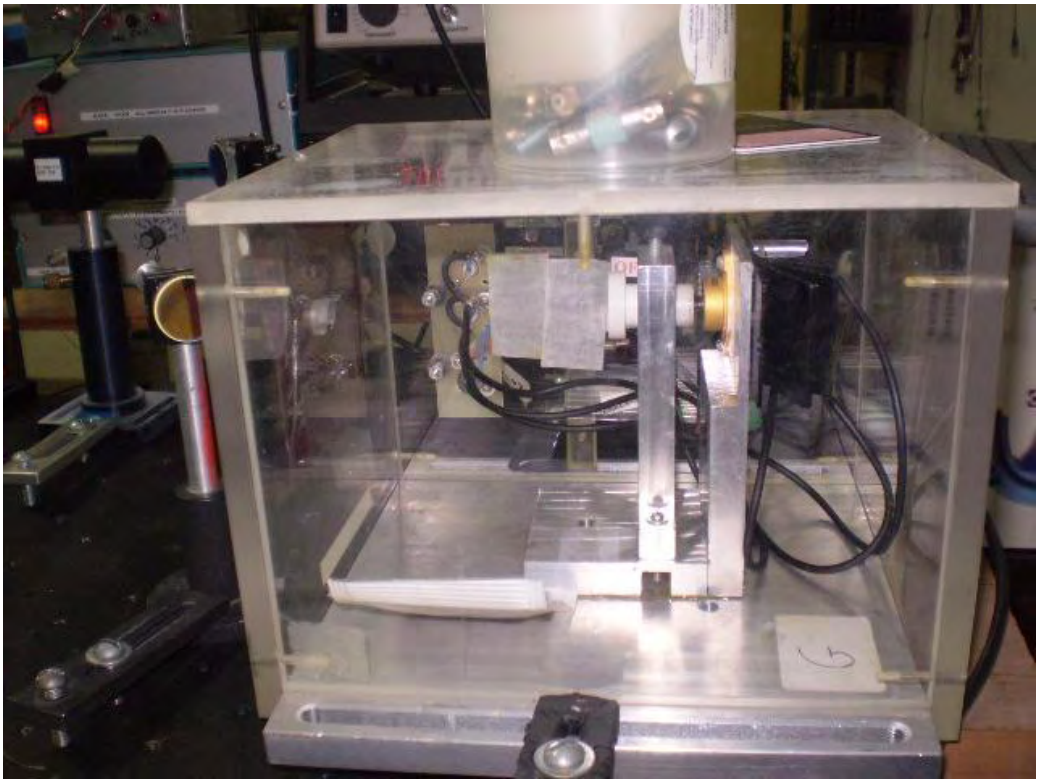

Figura 24 – Foto do laser utilizado.

3.2.2 *A Célula*

A célula com vapor de césio utilizada consiste basicamente de três partes: o corpo de vidro, um tubo cilíndrico de vidro e o reservatório de vidro contendo césio. O corpo tem cerca de 4 centímetros de comprimento, 2 centímetros de altura e 1 milímetro de espessura (L), o tubo cilíndrico serve de conexão com o reservatório onde esta depositada uma pequena gota de césio em fase condensada, como mostra a Figura 25.

Figura 25 – A célula com vapor de césio.

Dois termopares em contato com o corpo e o reservatório permitem medir a temperatura destes, através da leitura da tensão entre as extremidades dos termopares.

Depois de colocados os termopares, toda a célula foi envolvida com uma folha de cobre em torno da qual são enroladas duas resistências, uma no reservatório e outra no corpo (Figura 26).

A temperatura da célula é controlada através de uma corrente elétrica nessas resistências termocoaxiais. Com isso, através da tabela abaixo, obtém-se a temperatura na célula.

Thermoelectric Voltage in Millivolts

°C	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	°C
40	1.612	1.653	1.694	1.735	1.776	1.817	1.858	1.899	1.941	1.982	2.023	40
50	2.023	2.064	2.106	2.147	2.188	2.230	2.271	2.312	2.354	2.395	2.436	50
60	2.436	2.478	2.519	2.561	2.602	2.644	2.685	2.727	2.768	2.810	2.851	60
70	2.851	2.893	2.934	2.976	3.017	3.059	3.100	3.142	3.184	3.225	3.267	70
80	3.267	3.308	3.350	3.391	3.433	3.474	3.516	3.557	3.599	3.640	3.682	80
90	3.682	3.723	3.765	3.806	3.848	3.889	3.931	3.972	4.013	4.055	4.096	90

Tabela 5 – Tabela de referência de um termopar tipo K (Nickel-Chromium vs. Nickel-Aluminum) [32].

A célula é mantida a uma temperatura de 73ºC no reservatório e uma temperatura de 92ºC na janela, a fim de evitar uma possível condensação de césio na janela.

Para manter a uniformidade da temperatura e isolar termicamente célula do meio ambiente, depois de envolvida pela placa de cobre e pelas resistências a célula

é adicionalmente coberta com lã de vidro e papel alumínio. Obviamente, quanto mais espessa a lã, melhor a isolação do forno.

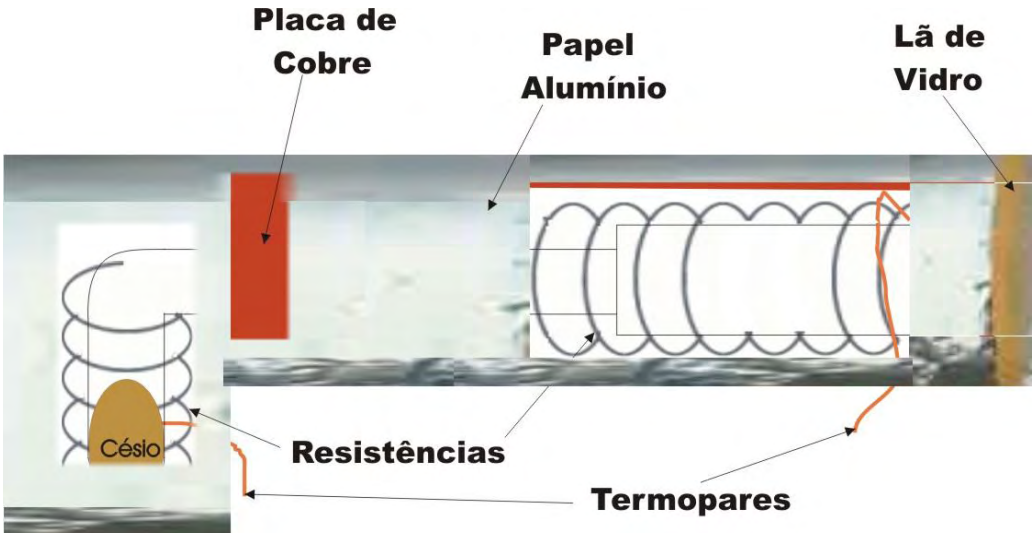

Figura 26 – Componentes necessários para o aquecimento da célula.

O tempo de estabilização da temperatura do forno com relação à temperatura da sala é em torno de quatro horas.

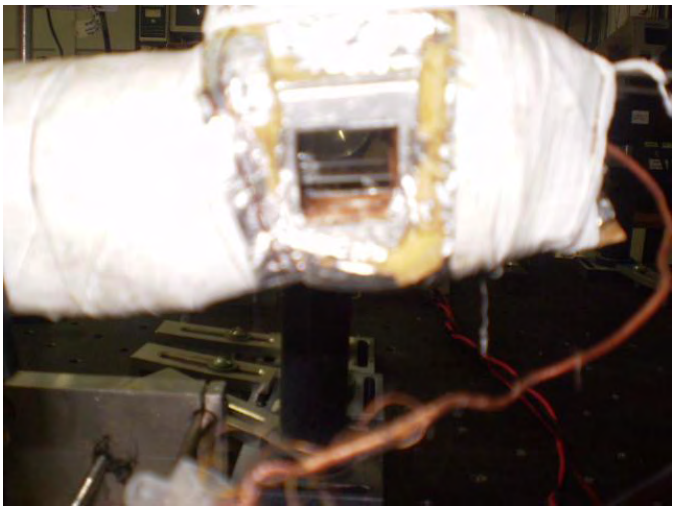

Figura 27 – Foto do forno.

3.2.3 *Transladador*

O transladador é um sistema que tem como componentes um motor de passo, uma correia dentada e uma base de alumínio. O motor e a base são interligados por uma correia dentada, assim, quando acionado o motor a base desliza, sobre dois eixos paralelos, a uma distância de 22 cm (Figura 28).

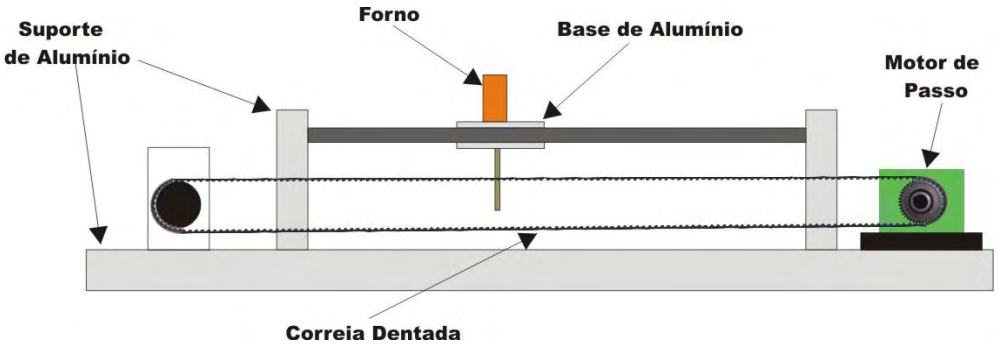

Figura 28 – 1º Sistema de translação (Motor de passo acoplado a uma correia dentada e uma base de alumínio).

Devido ao grande torque do motor, foi alterado o sistema, substituindo-o por um motor DC, como mostra a figura 29. Pois aquele gerava vibrações mecânicas, resultando em um sinal / ruído muito grande.

Este sistema serve para transladar o forno ao longo do eixo ótico do feixe focalizado.

O motor DC é alimentado por uma fonte de tensão, a qual é ajustável até 5 V. O motor DC movimenta o forno acoplado à base com uma velocidade constante de 1,0 cm/s.

Este sistema mecânico, acoplado ao motor, permite uma resolução de posição muito menor que o intervalo de deslocamento típico entre duas posições sucessivas de um motor de passo, apesar de não ter uma precisão muito grande quanto ao posicionamento absoluto da amostra.

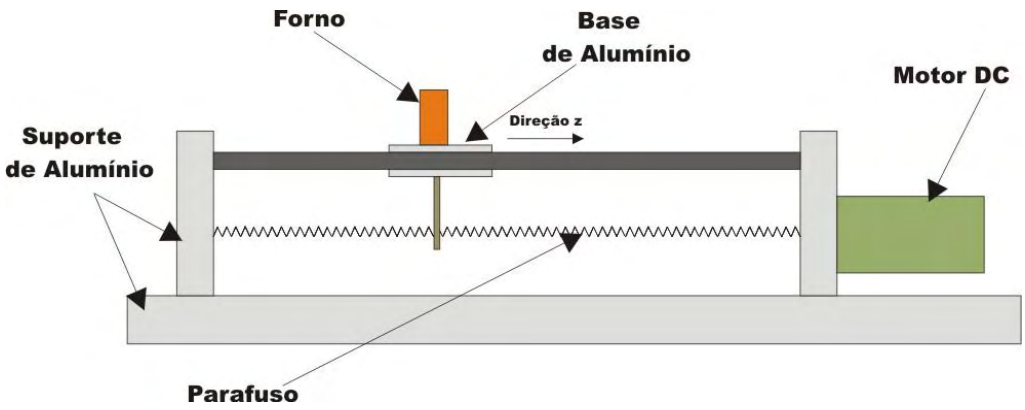

Figura 29 – O novo sistema de translação.

A base do transladador é grande o suficiente para acoplar o forno, assim evitando efeitos mecânicos no sistema de translado da amostra, tais como trepidações, instabilidades e falhas na reprodutibilidade do posicionamento (inércia mecânica). Esses efeitos são especialmente importantes na medida de distorção de fase, pois levam a deslocamentos do feixe sobre a íris e podem mascarar a perturbação causada pelo termo não linear da interação da luz com o vapor atômico.

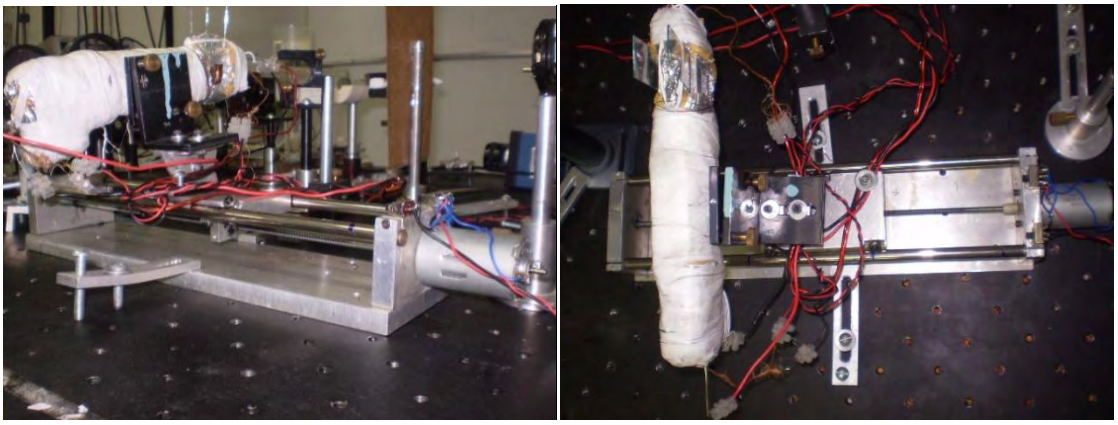

Figura 30 – Vista lateral e de cima do transladador.

3.2.4 *Ajuste do feixe para ter um perfil gaussiano*

Para realizar o experimento, precisamos preparar o feixe laser para que possa ficar em condições de ser utilizado continuamente ao longo de todas as medidas. Então foi montado um filtro espacial para filtrar variações indesejadas da

intensidade e para que o feixe laser possua um perfil transversal de intensidade do tipo gaussiano.

Um filtro espacial é composto por uma objetiva e um pinhole (Figura 31).

A remoção de perturbações no perfil espacial do feixe, devidas à difração, imperfeições da lente, etc, melhora a resolução, que é importante para nossa aplicação em ótica não linear.

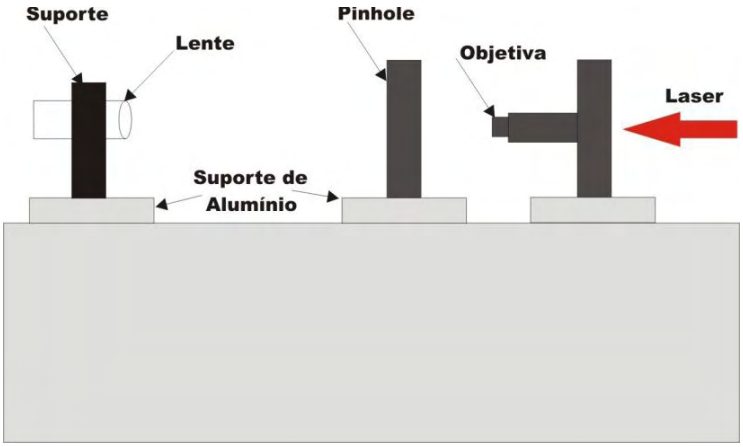

Figura 31 – Esquema do filtro espacial.

Em primeiro lugar, temos que alinhar o filtro espacial de modo que o feixe se desloque ao longo do eixo. Portanto, centralizamos a montagem do filtro espacial (sem o pinhole nem a lente e a objetiva do microscópio) no feixe da melhor maneira que conseguimos, tal que o feixe passe pelo centro do suporte onde os controles do micrômetro são fáceis de serem alcançados. Em seguida, instalamos a objetiva do microscópio (não se esquecer de segurar a base da lente ao enroscar e desenroscar a lente). Refinamos a posição da objetiva através do micrômetro de modo que o feixe divergente esteja centralizado onde o feixe não divergindo estava e a objetiva do microscópio esteja alinhada com o feixe (de modo que a margem do feixe não esteja cortada).

O segundo passo é a instalação e alinhamento do pinhole para a limpeza do feixe gaussiano. Para começar, inserimos o pinhole entre a objetiva e a lente (utilizada na técnica z-scan). Se o pinhole estiver aproximadamente centralizado,

somos capazes de ver um padrão fraco de círculos concêntricos com um centro brilhante, sobre um cartão fosforescente segurado em frente do filtro espacial.

Fazemos o ajuste dos micrômetros para centralizar o “alvo” no cartão fosforescente na direção aproximada do feixe original, onde deve ser mais brilhante. O feixe será fraco se o foco da lente estiver longe do pinhole. Transladamos lentamente a objetiva para a frente, recentralizando o padrão com os micrômetros à medida da translação, observando que fica cada vez mais brilhante no caminho. Em algum ponto, o padrão pode repentinamente desaparecer, e depois reaparecer à medida que continuar levando a lente para frente, e depois começa a obscurecer novamente, pois voltando levemente e fazendo um novo ajuste das lentes em direção ao ponto de desaparecimento. Se fizermos lentamente o ajuste fino dos micrômetros nesse ponto, logo encontrará um local onde um feixe incrivelmente brilhante e suave, um perfil Gaussiano com anéis ao redor, começa a invadir o filtro espacial, pronto para obter um feixe com perfil gaussiano.

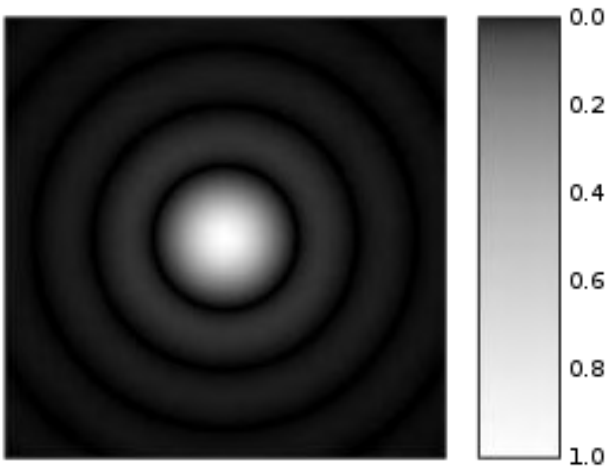

Figura 32 – Padrões de interferência do feixe laser.

Uma perfeita centralização do feixe laser, sobre a fenda circular ou diafragma, é crucial para obter um perfil o mais gaussiano possível, sem perder muita potência para bons resultados experimentais.

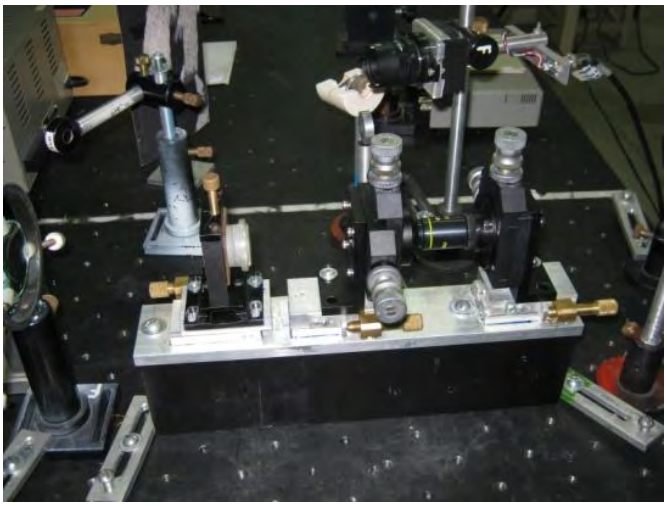

Figura 33 – Vista lateral do pinhole e das duas lentes.

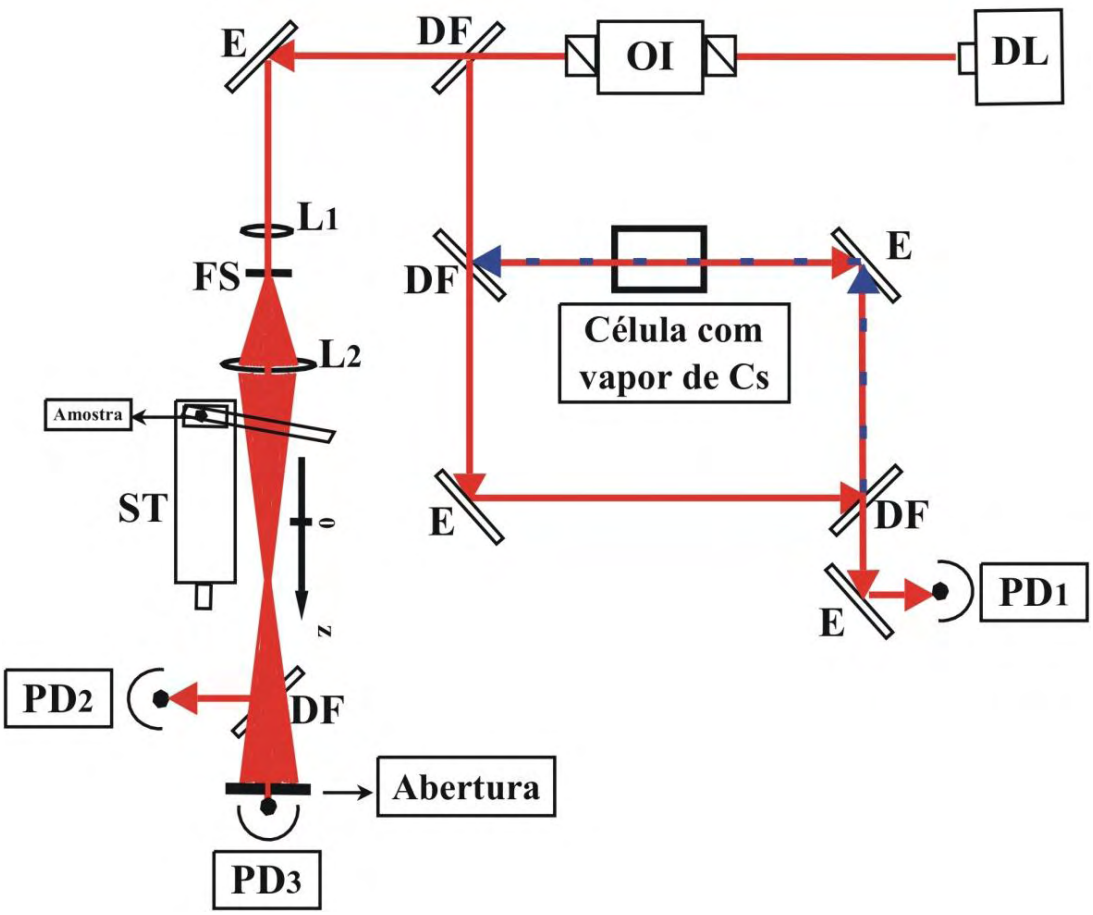

Figura 34 – Montagem experimental. DL: Diodo Laser; OI: Isolador Ótico; DF: Divisor de Feixe; E: Espelho; L: Lente; FS: Filtro Spacial; ST: Sistema de Translado; PD_1: Detector - Referência da Absorção Saturada; PD_2: Detector – Sem a abertura (Absorção); PD_3: Detector – Com a abertura.

Capítulo 4

Capítulo 4

RESULTADOS OBTIDOS

Neste capítulo apresentaremos os resultados de medidas do índice de refração não linear, obtidos com a técnica z-scan em amostras de césio produzidas no nosso grupo (laboratório de Física Atômica e Molecular da UFPB). A análise dos dados foi realizada pela teoria convencional da varredura z, baseada no método da decomposição Gaussiana [31], e comparada com resultados teóricos obtidos para sistemas de dois níveis [33,34].

Foi empregada a montagem experimental convencional, esquematicamente mostrada na figura 34.

4.1 O MEIO NÃO-LINEAR

O valor experimental do coeficiente de índice de refração não linear n_2 é deduzido da medida da amplitude ΔT_{P-V} de curvas de varredura z (ver equação (2.2.26))

A otimização do sinal de varredura z, permite medir essa amplitude com boa precisão, dependendo essencialmente da densidade atômica no vapor sondado, assim como da potência, da estabilidade e do perfil espacial do laser de sonda.

O índice não linear, e através dele o sinal de varredura z, é proporcional à densidade atômica (equações (4.1-2)) [33,34]. Para densidades muito pequenas, a modificação da fase do campo ao passar pela célula com vapor será desprezível. Densidades muito altas levam a regimes onde as interações entre átomos (colisões) podem distorcer a resposta atômica e o sinal estudado. Em nosso sistema, a densidade atômica é determinada pela temperatura do reservatório de césio, onde o vapor está em equilíbrio com o césio líquido. Precisamos manter um gradiente de temperatura entre o reservatório (controle da densidade) e o corpo da célula, onde

são realizadas as medidas. A temperatura do corpo precisa ser maior do que a do reservatório para evitar a condensação do césio nas janelas da célula.

Antes de iniciar nossas medidas para medir o valor de n_2, foi investigado qual seria o melhor gradiente de temperatura para o vapor atômico. Foi também realizada uma série de medidas à procura de uma melhor potência do laser (ou pelo menos mínima) para obtenção do efeito não linear fora de ressonância.

4.2 TEMPERATURA

Após a fabricação da célula (Figuras 26 e 27 e Apêndice B), foram realizadas várias medidas da temperatura do forno para analisar a sua temperatura e durante quanto tempo ela permaneceria estável. Medimos também qual seria o melhor gradiente de temperatura entre o reservatório e o corpo do forno para que não houvesse condensação de césio no corpo do forno.

Temperatura no Reservatório	Temperatura na Janela	Gradiente de Temp.
71ºC	86ºC	15ºC
93ºC	100ºC	7ºC
96ºC	106ºC	10ºC

Tabela 6 – Algumas configurações de temperaturas no sistema.

Foi observado que para um gradiente de 7ºC, surgiu uma mancha de césio em fase condensada na janela, concluindo então que seria mais seguro trabalhar em torno de 71ºC com um gradiente em torno de 15ºC. Essa temperatura do reservatório corresponde a uma densidade atômica $N \approx 2 \times 10^{12}$ cm^{-3}, mais de uma ordem de grandeza maior do que a densidade a temperatura ambiente, $N_{300} \approx 5.6 \times 10^{10}$ cm^{-3}.

Não estudamos o efeito não linear *na ressonância*, devido a fortes não linearidades, incluindo de absorção. Logo as interpretações das curvas de z-scan na

ressonância são complicadas por causa da estrutura complexa dos átomos (muitos níveis hiperfinos), da absorção, e da saturação.

Como nosso objetivo foi obter o efeito não linear fora de ressonância em torno de 1,1 GHz para o vermelho e para o azul (ver a Figura 35), a freqüência do laser foi monitorada através da montagem, paralela ao nosso experimento, de uma experiência de absorção saturada (Apêndice D) em vapor de césio à temperatura ambiente. Pois, fora de ressonância nossos resultados podem ser interpretados utilizando o modelo simplificado de átomos de dois níveis [33,34]. Como a freqüência do laser deve ser escolhida fora da linha de ressonância Doppler do césio ($\Gamma_{Doppler} \approx 400$ MHz), o monitoramento da freqüência não pode ser feito em um vapor de césio como no caso ressonante, mas podemos usar um analisador Fabry-Perot para observar o deslocamento da freqüência do laser em função do aumento da corrente deste.

Observamos que aumentando a corrente do laser de 0,2 mA os picos dos modos do Fabry-Perot eram deslocados de 110 MHz (aproximadamente). Essa relação foi importante para a experiência, pois queríamos observar o efeito não linear do índice de refração em torno de 1,1 GHz (ou seja, de aproximadamente 2 mA) para o vermelho e para o azul de uma transição atômica.

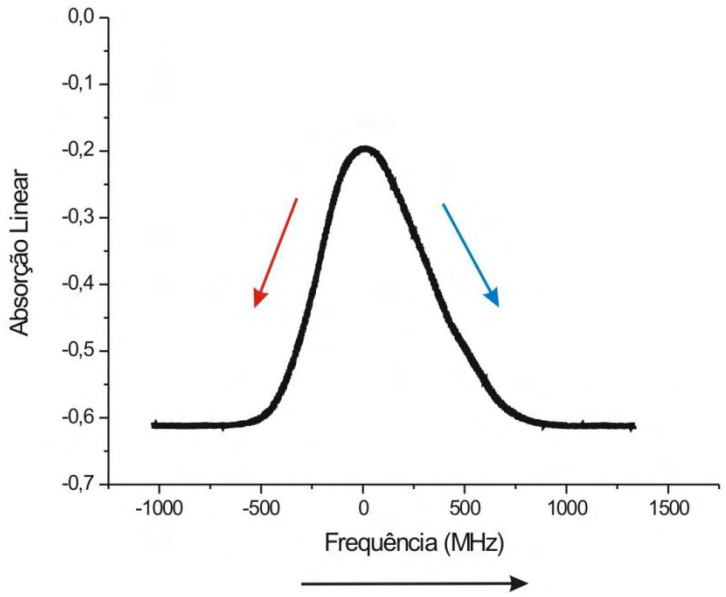

Figura 35 – Espectro de absorção linear na linha D_2 do césio.

4.3 A POTÊNCIA

Um ponto importante a ser enfatizado sobre os vapores atômicos como meio não lineares é que eles são extremamente fáceis de saturar. A intensidade de saturação de vapores atômicos na ressonância é da ordem de mW/cm^2. Isto torna possível observar fenômenos óticos não lineares com baixa intensidade de lasers de onda contínua (cw), mas também significa que os efeitos de saturação devem ser considerados, a menos que a intensidade do feixe incidente seja extremamente pequena.

Para medir o valor de n_2 realizamos primeiramente uma série de medidas em baixa potência (algumas dezenas de μW), buscando operar assim fora da região de saturação, onde efeitos de saturação complicariam a interpretação do método padrão z-scan, e dentro da aproximação da equação (2.2.22). Neste caso, a amplitude da variação entre pico e vale é proporcional a n_2 , conforme a equação (2.2.26).

Nossas dessintonizações foram escolhidas de modo a tornar a absorção não linear insignificante enquanto ainda observa-se um apreciável efeito de refração não linear.

As figuras 36 b e c exibem as medidas z-scan efetuadas para a transição D_2 do vapor de césio a 71°C (densidade de átomos equivalente a 2.1x10^{18} m^{-3}) e uma dessintonização de –1,1 GHz para o vermelho. Assim, observa-se que para baixa potência a configuração pico-vale ou vale-pico devido à técnica z-scan não aparece.

Como mencionamos anteriormente o césio apresenta efeitos não lineares na região espectral utilizada neste trabalho (λ=852 nm).

Para uma dessintonização no vermelho $(\delta < 0)$, a forma da figura z-scan, apresentada na figura 36b, é semelhante a uma contribuição apenas positiva na transmitância, e a figura 36c exibe essencialmente contribuições do ruído, conforme se observa na repetição da varredura z para freqüências diferentes, ou seja, não tendo nenhuma contribuição do vapor atômico (essas dessintonizações de 2,7 e 4,4 GHz equivalem a $6\,\Gamma_{Doppler}$ e $11\,\Gamma_{Doppler}$).

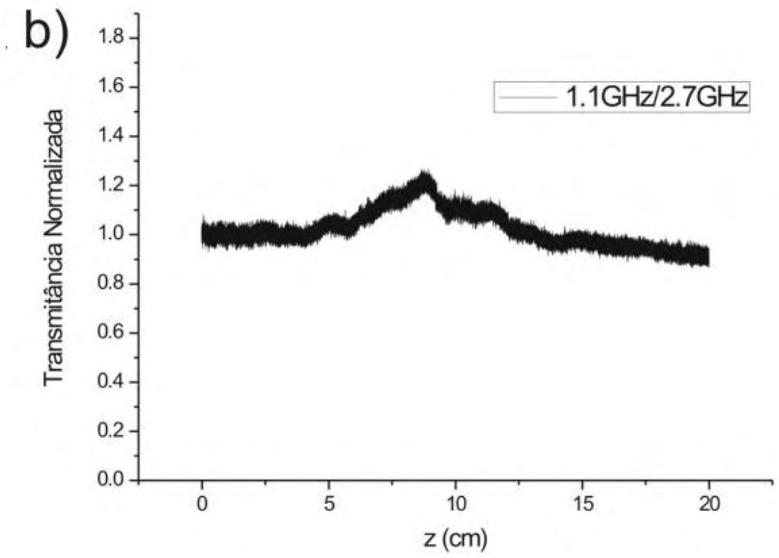

Figura 36 (b) – Uma pequena contribuição poisitiva da transmitância normalizada da varredura z para δ= -1,1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm com 1 mm de espessura e potência no vapor de 18.4 μW. Não pode ser observado nenhum efeito não-linear refrativo.

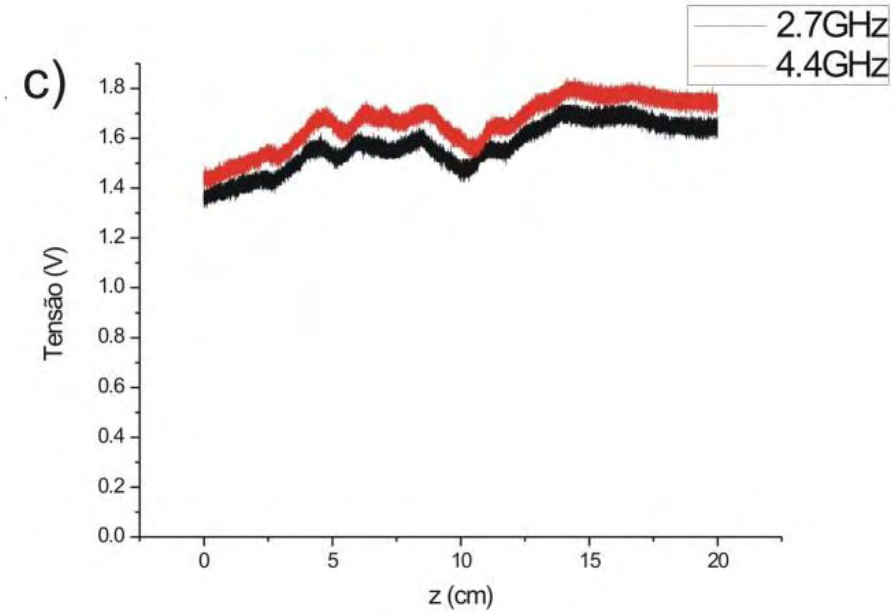

Figura 36 (c) – Sinal (ruído) para duas freqüências diferentes do laser, longe da ressonância.

Resultados equivalentes são obtidos com o laser dessintonizado $\delta = 1{,}1$ GHz da freqüência central da transição.

Como podemos observar destes resultados, vimos que para baixa potência não era possível observar a refração não linear do vapor de césio.

Devido à baixa potência, foi alterada nossa configuração experimental aumentando a potência para algumas unidades de mW (correspondendo a intensidades de pico entre 0,16 kW/cm^2 e 0,12 kW/cm^2) e fizemos uma série de medidas (Figuras 37 e 38) com temperaturas de 73°C e 79ºC (densidades de átomo equivalentes a 2.4x10^{18} m^{-3} e 3.7x10^{18} m^{-3}) e um melhor alinhamento para obtenção de um feixe gaussiano.

Mudanças sistemáticas na transmitância, decorrentes de imperfeições na célula contendo o vapor atômico, tais como espalhamento do sinal devido à partículas nas janelas da célula, muitas vezes encobrem os efeitos de refração não-linear. Estes efeitos podem ser substancialmente reduzidos subtraindo das curvas de z-scan um perfil gravado nas mesmas condições espaciais mas com o laser dessintonizado para longe da ressonância (onde os efeitos de refração não-linear são desprezíveis).

Nas Figuras 37 e 38, temos um típico sinal z-scan de um laser de diodo operando em torno de 852 nm com uma dessintonização para as regiões do vermelho e do azul do átomo de césio, em relação à transição F=4→F' (ver Figura 8): Na figura 37(a) são representadas curvas de transmitância da varredura z para dessintonizações –1,1 GHz, –5,5 GHz e –8,5 GHz, e densidade de vapor $\mathrm{N} = 2.4 \times 10^{18}$ m^{-3} ($T_{res} = 346\ K$). As dessintonizações –5,5 GHz e –8,5 GHz foram escolhidas para poder eliminar eventuais efeitos sistemáticos durante a translação da célula ao longo do eixo do feixe. De fato, as curvas a –5,5 GHz e –8,5 GHz são semelhantes e podem ser usadas para "limpar" o sinal que queremos analisar, a –1,1 GHz. Entretanto, a curva azul (δ=–8,5 GHz) deslocou-se, devido a alguma perturbação mecânica.

Da mesma maneira, efetuamos medidas a 5,5 GHz da ressonância. Com o mesmo objetivo são representadas na figura 37(b) medidas com dessintonizações positivas (lado azul da ressonância) 1,1 GHz e 5,5 GHz, com a mesma densidade de átomos que na figura 37(a).

As figuras 38(a) e 38(b) foram obtidas com uma densidade atômica $\mathrm{N} = 3.7 \times 10^{18}$ m^{-3} ($T_{res} = 352\ K$).

$$N = 2.4 \times 10^{18} \ m^{-3}$$

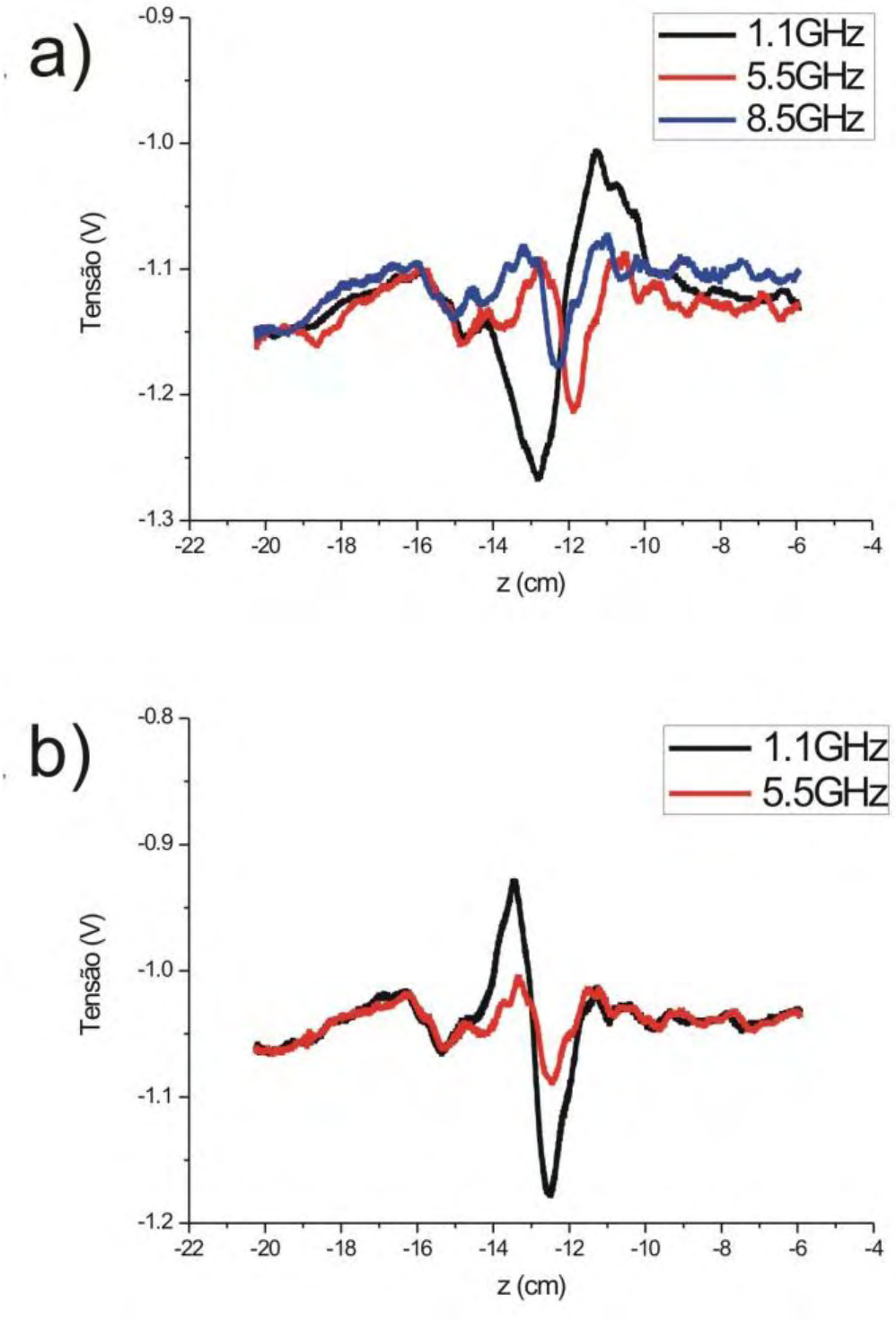

Figura 37 (a) – Sinal z-scan obtido para dessintonizações negativas, $P = 3.53$ mW, $I_0 = 0.16$ kW/cm^2. (b) – Sinal z-scan obtido para dessintonizações positivas, $P = 3.32$ mW, $I_0 = 0.16$ kW/cm^2.

$$N = 3.7 \times 10^{18} \ m^{-3}$$

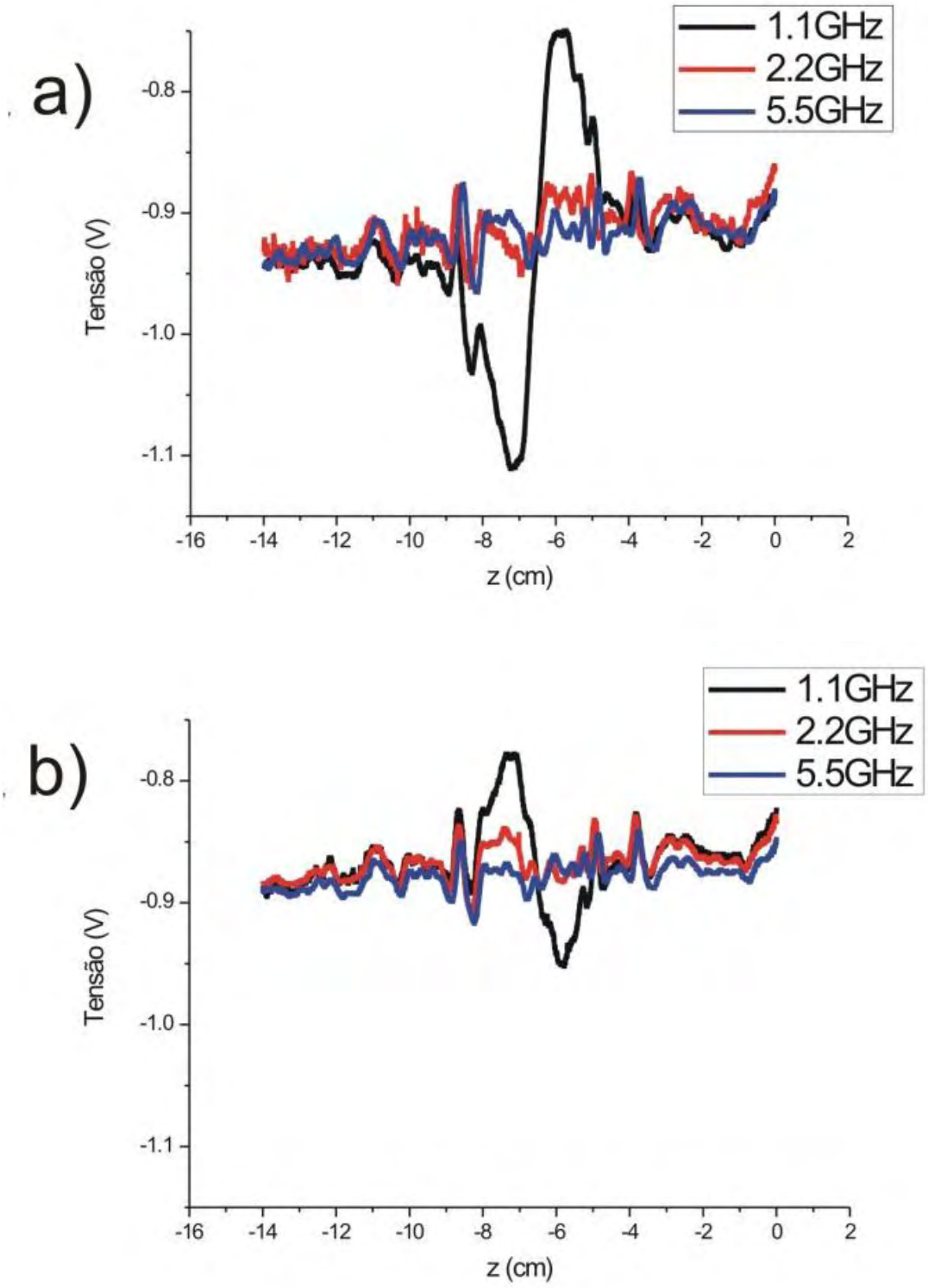

Figura 38 (a) – Sinal z-scan obtido para dessintonizações negativas, $P = 3.23$ mW, $I_0 = 0.12$ kW/cm^2. (b) – Sinal z-scan obtido para dessintonizações positivas, $P = 2.97$ mW, $I_0 = 0.12$ kW/cm^2.

Outro procedimento que pode ser feito é a subtração dos eventuais efeitos de absorção, dividindo as curvas z-scan (S<1) por curvas, gravada simultaneamente, sem abertura (S=1) ou seja, sem efeitos de refração, somente de absorção [30], resultando em uma curva z-scan normalizada.

Normalizando o sinal (Figura 37) pela curva δ=5,5GHz tanto no vermelho quanto no azul, a sujeira (célula) é eliminada, e, portanto obtem-se curvas mais simétricas com razão sinal/ruído da ordem de 10 como mostram as figuras 39(a) e (b) para uma intensidade $I_0 = 0{,}16$ kW/cm^2. Como esperado, a estrutura pico-vale vista na figura 39(a) é uma assinatura característica das lentes negativas resultantes de um índice de refração não linear negativo. O ajuste da curva experimental (Figura 39a) com a equação (2.2.23), com $\Delta\phi_0 = -0{,}65$, leva ao valor de $n_2 = -5{,}7 \times 10^{-7}$ cm^2/W para uma dessintonização –1,1 GHz a partir do centro da linha D_2.

Na figura 39(b) é mostrado um típico resultado de z-scan, quando o perfil do feixe laser é dessintonizado para o lado de alta freqüência (azul) da transição D_2 do césio. A estrutura vale-pico neste caso é um indicativo de um efeito de lente positiva, como se pode esperar para uma dessintonização no azul do feixe laser. Nós encontramos o valor de $n_2 = 2{,}6 \times 10^{-7}$ cm^2/W com $\Delta\phi_0 = 0{,}37$, para uma dessintonização 1,1 GHz a partir do centro da linha D_2.

Da mesma maneira, normalizando o sinal (Figura 38 $\delta = 1{,}1$ GHz) pela curva δ=2,2 GHz tanto no vermelho quanto no azul para uma intensidade $I_0 = 0{,}12$ kW/cm^2, obtemos as curvas mostradas nas figuras 40, (a) e (b) resultando no valor de $n_2 = -9{,}2 \times 10^{-7}$ cm^2/W e $n_2 = 3{,}9 \times 10^{-7}$ cm^2/W com $\Delta\phi_0 = -0{,}83$ e $\Delta\phi_0 = 0{,}36$, para dessintonizações de $\mp$ 1,1 GHz a partir do centro da linha D_2.

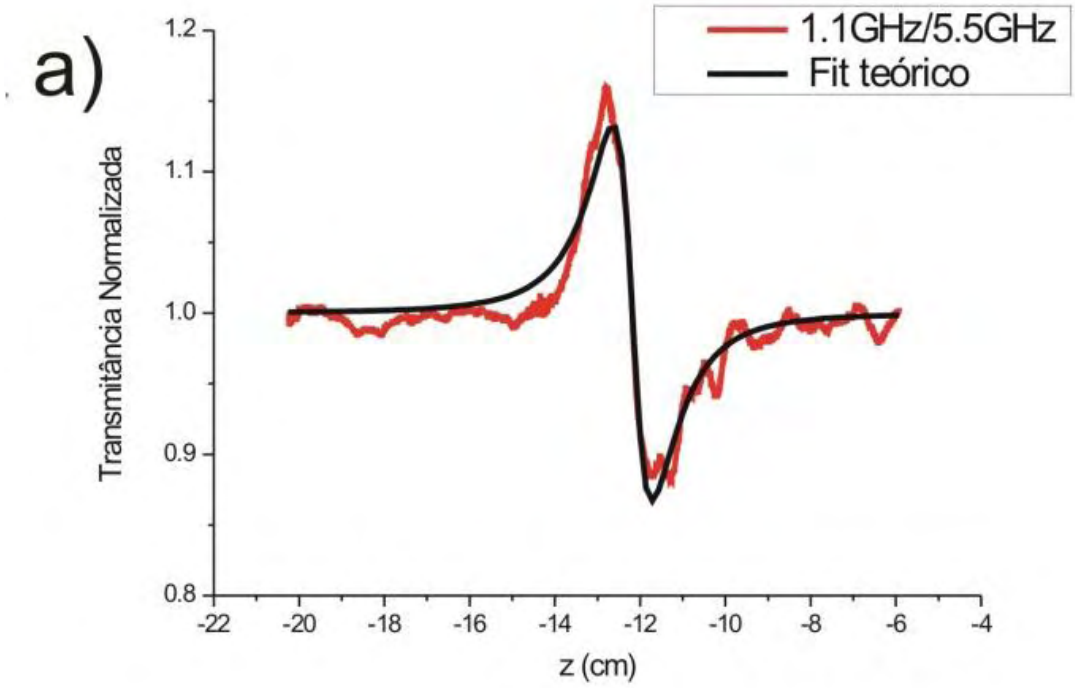

Figura 39 (a) – Transmitância normalizada da varredura z para δ=–1,1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 2{,}39 \times 10^{-5}$ m^{-1}), S=0,8 e $w_0 = 38\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,53 mW, $I_0 = 0{,}16$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = -5{,}7 \times 10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan.O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).

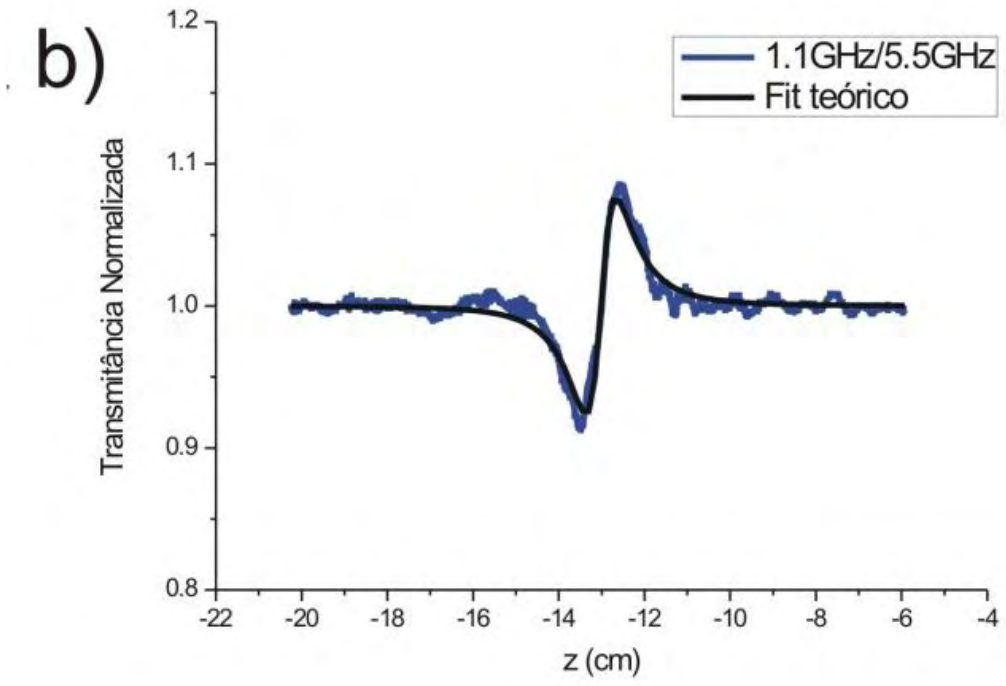

Figura 39 (b) – Transmitância normalizada da varredura z para δ=1,1 GHz no azul de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 2{,}39 \times 10^{-5}$ m^{-1}), S=0,8 e $w_0 = 33\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,32 mW, $I_0 = 0{,}16$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = 2{,}6 \times 10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan. O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).

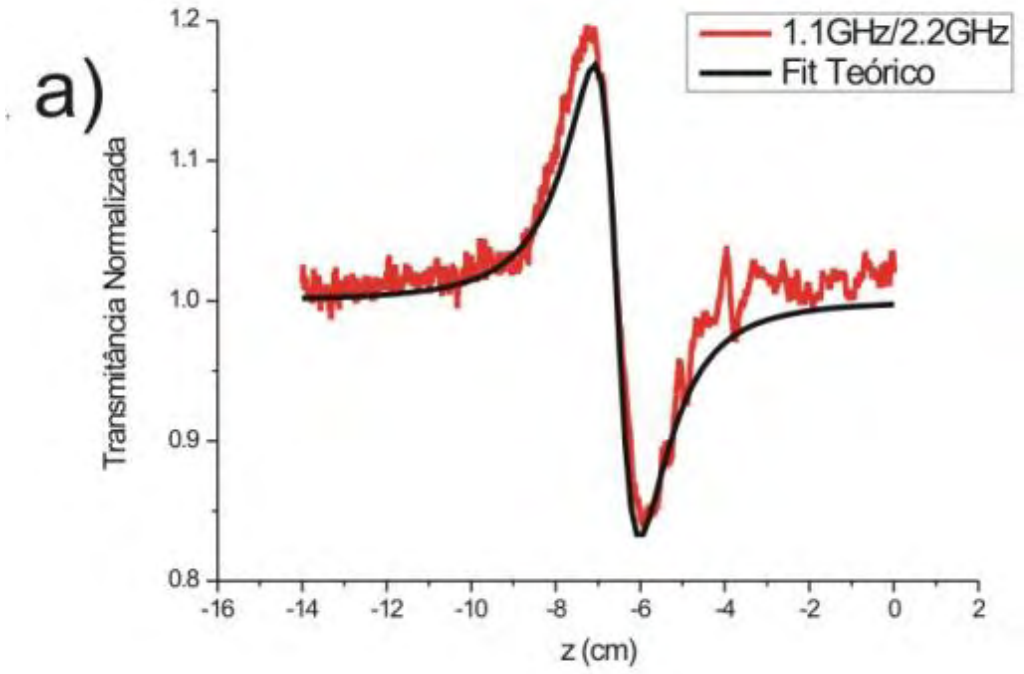

Figura 40 (a) – Transmitância normalizada da varredura z para δ=–1,1 GHz no vermelho de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 5{,}1\times10^{-5}$ m^{-1}), S=0,6 e $w_0 = 41\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 3,23 mW, $I_0 = 0{,}12$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = -9{,}2\times10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan.O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).

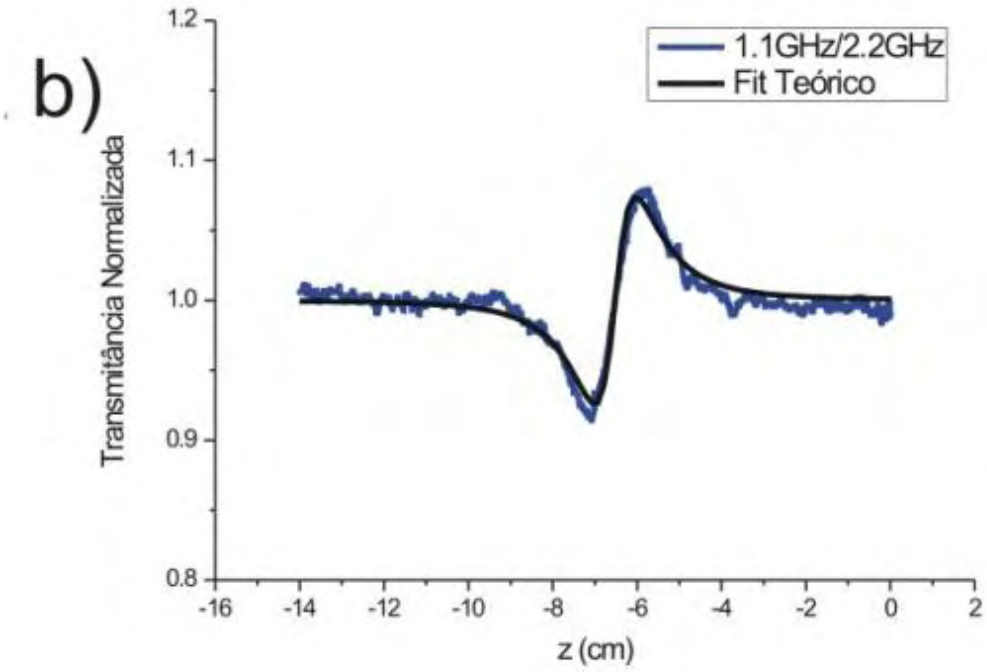

Figura 40 (b) – Transmitância normalizada da varredura z para δ=1,1 GHz no azul de uma amostra de Cs na transição F=4→F' em 852 nm ($\alpha_0 = 5{,}1 \times 10^{-5}$ m^{-1}), S=0.6 e $w_0 = 39\ \mu m$ ($z_0 \approx 6$ mm), com uma potência no vapor de 2,97 mW, $I_0 = 0{,}12$ kW/cm^2. A curva sólida foi calculada com $n_2 = 3{,}9 \times 10^{-7}$ cm^2/W através da teoria convencional z-scan. O ajuste foi feito a partir da equação (2.2.23).

Como esperado, a não linearidade depende da potência medida, associado à polarizabilidade eletrônica do vapor atômico de césio, é observado ser positivo no lado de alta freqüência de uma transição e negativo no lado de baixa freqüência. Assim, um feixe laser que é dessintonizado para o azul no que diz respeito à transição ressonante é autofocalizado, enquanto que um feixe laser dessintonizado para o vermelho é autodefocalizado ao interagir com o vapor atômico.

Vamos comparar os resultados experimentais acima com cálculos teóricos.

Para o caso específico de átomos frios de dois níveis [34], o índice de refração é escrito da seguinte forma

$$n_2\left(cm^2/W\right) = -\frac{3\lambda^3}{4\pi^2 n_0}\frac{n_a W_0}{\mathrm{I}_{s\Delta}}\frac{\Delta/\gamma}{1+4\Delta^2/\gamma^2}, \tag{4.1}$$

Onde n_a é a densidade de átomos, W_0 é a diferença de população no equilíbrio térmico, geralmente $W_0 = 1$, λ é o comprimento de onda do feixe laser no vácuo, $k = n_0 k_0 = n_0 2\pi/\lambda$ é o número de onda no meio, γ é a taxa de caimento do estado excitado, Δ é a dessinonia do feixe laser com respeito da frequência de transição, $\mathrm{I}_{S\Delta} = \mathrm{I}_S(1+4\Delta^2/\gamma^2)$ é a intensidade de saturação com uma dessintonia arbitrária e I_S é a intensidade de saturação ressonante dos átomos.

Para vapores atômicos em ou acima da temperatura ambiente, uma abordagem mais precisa consiste em utilizar a expressão para um alargamento inhomogêneo (Doppler) do índice de refração [35,36] e tomar o limite de baixa intensidade, que dá

$$n_2\left(cm^2/W\right) = 10^4 \times \frac{4\pi^{7/2}}{3}\frac{\mu_{12}^4 \mathrm{N}}{c\varepsilon_0^2 h^3}\left(\frac{\mathrm{T}_2}{k^2 u^2}\right) x e^{-x^2}, \tag{4.2}$$

onde T_2 é o tempo de defasagem da transição atômica $(= 2T_1$ na ausência de colisões, uma suposição razoável aqui$)$, k é o momento da luz incidente, $u = \sqrt{2k_B T/M}$ é a largura da distribuição de velocidade atômica, e $x \equiv 2\pi\delta/ku$.

É interessante notar que sob o modelo Doppler o coeficiente não linear cai exponencialmente, em vez de polinomialmente em dessintonizações grandes. Isto reduz a faixa de dessintonizações para as quais a absorção é desprezível, mas n_2 ainda é relativamente grande.

Para as densidades atômicas acima (2.4x10^{18} m^{-3} e 3.7x10^{18} m^{-3}) com uma dessintonização de ±1,1 GHz obtemos [34]:

$$n_2 = \pm 2{,}36 \times 10^{-7}\ cm^2/W$$

e

$$n_2 = \pm 4{,}98 \times 10^{-7}\ cm^2/W$$

Vemos na Tabela 7 os resultados experimentais para o n_2, obtidos a partir do fit usando a equação (2.2.26). Os valores medidos, em particular para duas dessintonizações, são comparados com os dois modelos teóricos [33,34]. Podemos observar que o valor obtido para δ=–1.1 GHz no vermelho é duas vezes maior que δ=1.1 GHz no azul.

Note que aumentando a densidade de átomo de 2.4x10^{18} para 3.7x10^{18} m^{-3} (um fator de 54%), observa-se um aumento do valor médio de n_2 de 4.15×10^{-7} cm^2/W (T=73°C) para 6.55×10^{-7} cm^2/W (T=79°C), ou seja, um aumento de 58% no valor de n_2. Portanto, podemos observar destes resultados, que dentro da barra de erro experimental n_2 é linear com a densidade de átomos.

Dessintonia	Temperatura na Janela	Experimental	Modelo Doppler	Modelo Átomos Frios
1.1GHz	73ºC	$n_2 = 2.6 \times 10^{-7}\ cm^2/W$	$n_2 = \pm 2.36 \times 10^{-7}\ cm^2/W$	$n_2 = \pm 6.79 \times 10^{-7}\ cm^2/W$
-1.1GHz	73ºC	$n_2 = -5.7 \times 10^{-7}\ cm^2/W$		
1.1GHz	79ºC	$n_2 = 3.9 \times 10^{-7}\ cm^2/W$	$n_2 = \pm 4.98 \times 10^{-7}\ cm^2/W$	$n_2 = \pm 10..4 \times 10^{-7}\ cm^2/W$
-1.1GHz	79ºC	$n_2 = -9.2 \times 10^{-7}\ cm^2/W$		

Tabela 7 – Comparação de n_2 em dessintonizações ±1.1 GHz, em unidades de $10^{-7}\ cm^2/W$; dados experimentais e valores calculados a partir dos dois modelos teóricos.

Nós medimos n_2 para diversas dessintonizações em ambos os lados da linha D_2 do átomo de césio, encontrando valores de $\sim \pm 10^{-7}$ cm^2/W para dessintonizações de ±1,1 GHz em torno da linha D_2.

A boa concordância entre as nossas observações experimentais e os valores calculados com base no seguinte modelo Doppler [33] estabelece a aplicabilidade da técnica de Z-scan para medição da não-linearidade ótica em vapores atômicos.

A discrepância observada entres os valores experimentais e o teóricos pode ser atribuído a diversas fontes de incerteza. Estas incluem: a estrutura hiperfina, a incerteza no valor medido de n_2 decorrente de desvios do feixe laser incidente em relação a um perfil Gaussiano ideal (como foi assumido na análise z-scan), a incerteza na temperatura da célula de vapor e a variação resultante da densidade de vapor de césio, a incerteza no valor do pico de irradiância no foco, e acima de tudo, a validade do modelo de dois níveis e a expressão associada para descrever o índice de refração não linear n_2 .

A técnica z-scan é uma técnica amplamente utilizada experimentalmente para o estudo de não-linearidades óticas em uma ampla classe de meios foto-refrativos. Ultimamente, esta técnica de feixe único é rotineiramente aplicada para a medição do índice de refração não-linear em cristais foto-refrativos, materiais orgânicos, foto-polímeros, materiais biológicos [37-39], etc. No entanto, nossos dados experimentais

sobre o vapor atômico quente de césio, são os primeiros relatos do uso da técnica z-scan para determinar a não linearidade ressonante nesse vapor.

Uma vantagem notável desta técnica é que ela permite a determinação do índice de refração não-linear sem a necessidade de se recorrer a uma análise detalhada da propagação da onda pelo meio e além dele, desde que o comprimento do meio de interação é pequeno quando comparado com o comprimento de difração do feixe.

Nesse período foram feitas em paralelo medidas de F-scan (varredura em frequência para um dada posição fixa) com uma potência incidindo na amostra de algumas dezenas de μW, como mostra a Figura 41.

Com esses resultados surgiu a idéia de estabilizar a frequência do laser através da curva de dispersão. Essa nova técnica foi chamada de ANGELLS (palavra acrônimo de Atomic Non-linearly Generated Laser Locking Signal).

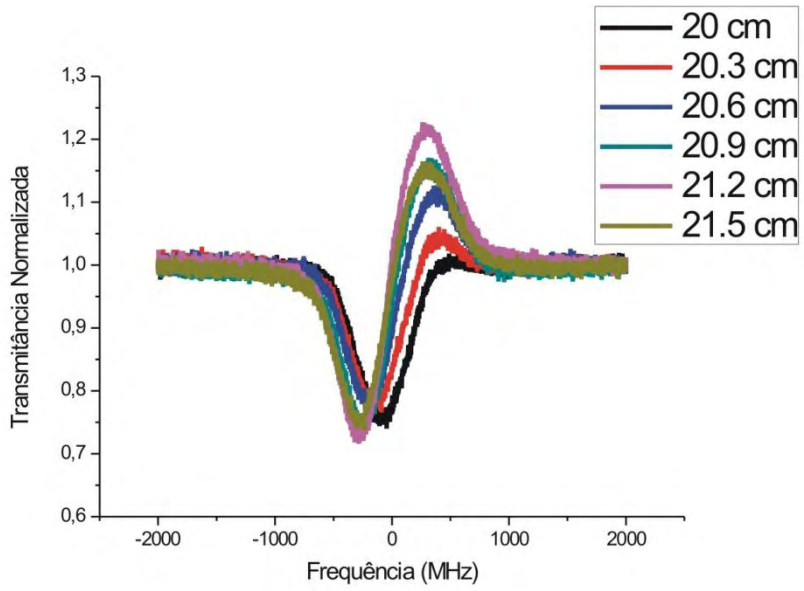

Figura 41 (a) – Curva de dispersão quando a amostra aproxima-se do foco (em direção ao fotodetector).

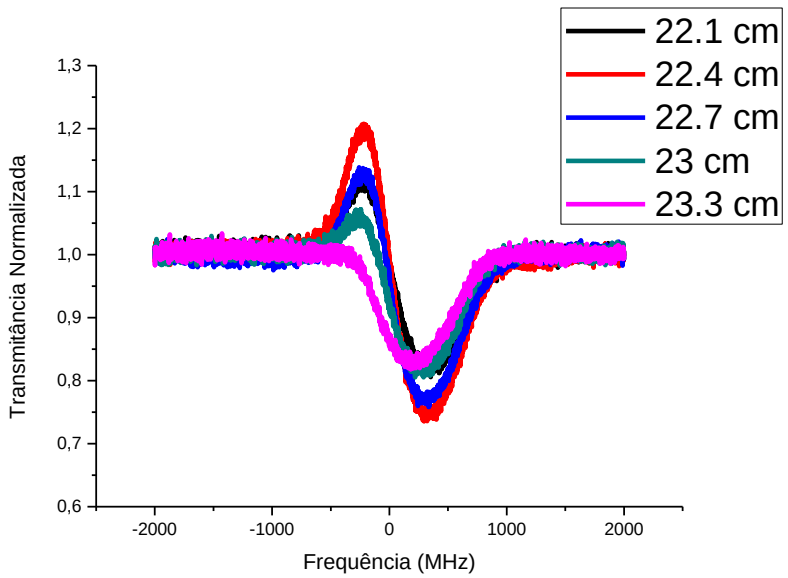

Figura 41 (b) – Curva de dispersão quando a amostra afasta-se do foco (em direção ao fotodetector).

Foi observado que a simetria da curva depende do alinhamento do filtro espacial e do próprio forno, como mostra a Figura 42.

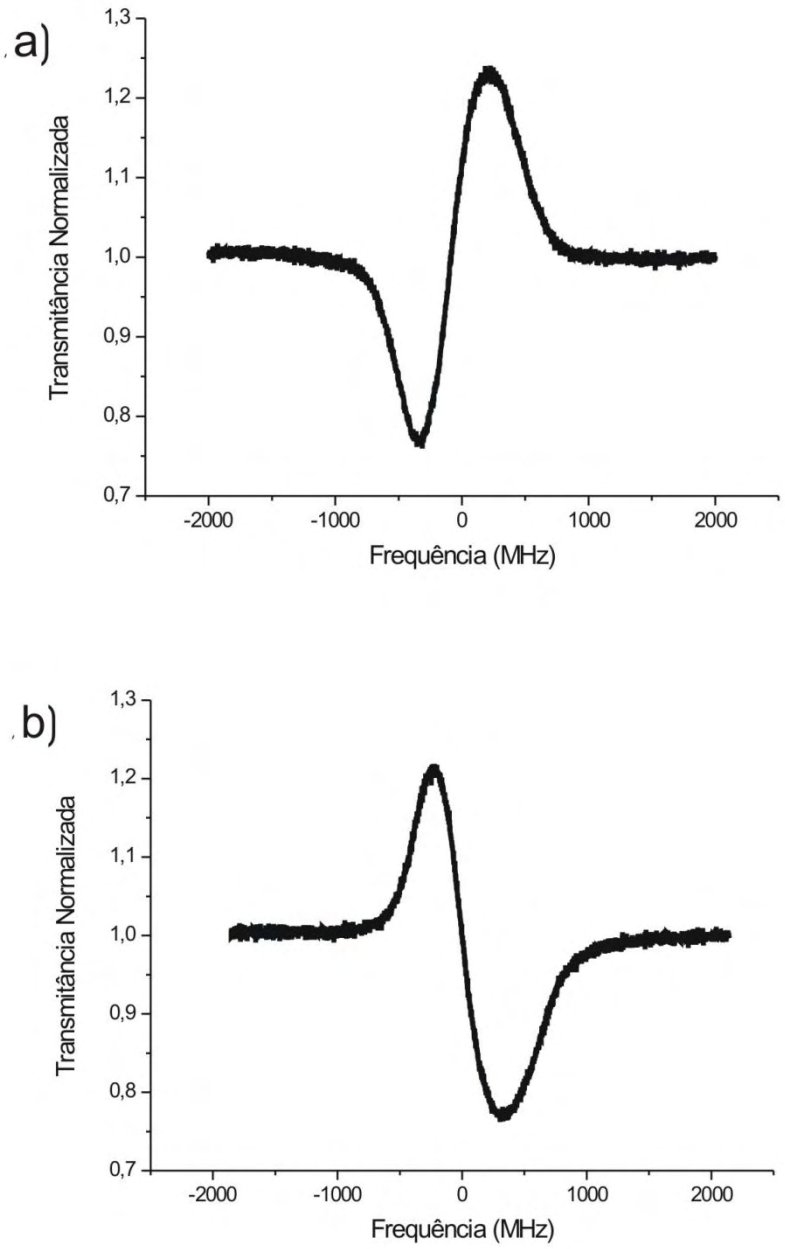

Figura 42 – Curva dispersiva: (a) antes do foco; (b) após o foco.

Essa técnica de estabilizar o laser através do ANGELLS, resultou em um trabalho que foi submetido a **uma revista internacional** (Apêndice E).

Capítulo 5

Capítulo 5

CONCLUSÕES

Em conclusão, nós investigamos a não-linearidade ótica próxima da ressonância em átomos de césio em célula de vapor, na transição D_2, utilizando a técnica z-scan devido ter um sistema simples e compacto. É importante mencionar que, no início desse trabalho, nem a infra-estrutura básica estava pronta, além de não dispormos dos principais equipamentos necessários: não havia um único laser de diodo montado e preparado para operar com as características indispensáveis para investigar a não-linearidade ótica em átomos de césio, não havia um transladador para a amostra transladar ao longo do eixo ótico do feixe focalizado, a própria fabricação do forno, etc. Apesar de o tempo ter sido exíguo para um estudo sistemático, visto que muito tempo foi gasto na implementação e no ajuste da técnica z-scan, obtivemos resultados preliminares que indicam a viabilidade do sistema.

Do ponto de vista experimental destacamos os seguintes pontos:

- Obtenção de medidas de varredura z com laser cw;
- Observação de efeito não linear com laser de diodo DBR, operando em 852 nm;
- Foi possível obter o espectro de não linearidade refrativa com potência entre 3 a 4 mW;

Os valores medidos de n_2 para diferentes valores de dessintonização, obtido a partir da análise dos dados z-scan, estão em boa concordância com o valor calculado teoricamente, usando o modelo Dopller [33].

Nosso interesse no estudo de efeitos óticos não-lineares em vapor atômico nos levou à implementação da técnica de estabilização da freqüência laser, o chamado ANGELLS. Que se baseia na geração de um sinal não-linear dispersivo a

partir da autofocalização, resultando em uma estabilização da freqüência do laser gerado por um sinal de erro (diferença de potencial) que se opõe a perturbação (variação do comprimento de onda) e re-estabelece a freqüência laser a uma freqüência estável. Estes resultados de F-scan apontam para a validade da técnica (ANGELLS) por nós desenvolvidos como técnica alternativa para estabilizar a frequência do laser de diodo, podendo, futuramente, serem empregados em lasers que apresentam flutuações na freqüência.

Apêndices

Apêndice A

"Knife-Edge Technique"

O desenvolvimento da técnica ponta de faca (Knife-Edge Technique) será apresentado com base na referência [40].

A medição da cintura de um feixe laser é muito importante em muitas aplicações, como, por exemplo, em experimento de Varredura Z. Muitas técnicas têm sido desenvolvidas com essa finalidade, entre as quais se pode citar a técnica de Varredura de Fenda e a técnica do "Pinhole", no entanto a mais utilizada é a técnica ponta de faca.

Nesta técnica, uma lâmina desloca-se transversalmente à direção de propagação do feixe laser e a potência total transmitida é medida como função da posição desta lâmina. Uma configuração típica experimental é mostrada na figura 43.

A figura 43 representa o perfil transversal de um feixe gaussiano, no plano x e y, reproduzido numa secção de corte efetivado pela lâmina.

Esta técnica exige uma borda afiada (normalmente uma lâmina de barbear), adaptada a um transladador ligado a um motor DC com velocidade constante (0,201cm/s no nosso caso).

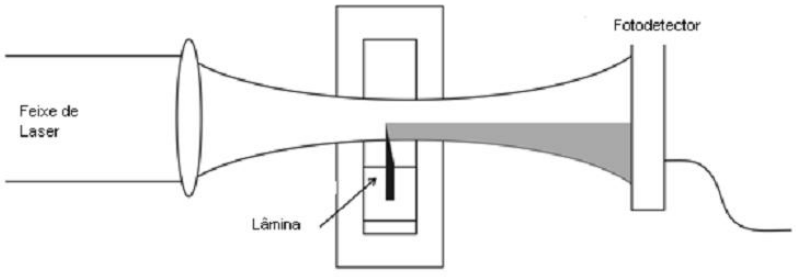

Figura 43 – Esquema experimental simplificado para medida do raio de um feixe laser gaussiano, usando a técnica ponta de faca. A área escura representa o bloqueio do feixe causado pela lâmina.

A medição pode ser realizada por meio de apenas um fotodetector e uma lâmina acoplada ao transladador. Com movimento no eixo x definido num plano

cartesiano, a lâmina vai cortando o feixe transversalmente, alterando, assim, a intensidade do sinal luminoso que atinge o fotodetector.

Na figura 44 está representada uma curva da transmissão do feixe gaussiano quando uma lâmina, em uma posição z, atravessa a seção transversal do feixe com uma velocidade constante de cm/s. A figura deve ser tratada, de maneira que a amplitude do sinal varie de 0 a 1 e que o eixo horizontal representa a posição x_b da lâmina. O ajuste desta curva com a função $f(s)$ permite determinar o raio do feixe na posição z, $w(z)$. Esta função é dada por

$$f(s) = \frac{1}{1 + \exp(\ a_1 s + a_3 s^3)}, \tag{A.1}$$

$$a_1 = -1.597106847 \qquad a_3 = -7.0924013 \times 10^{-2}$$

e

$$s = \frac{\sqrt{2}(x - x_0)}{w(z)}, \tag{A.2}$$

onde a_1 e a_3 são os coeficientes (constantes) de melhor ajuste da curva (Figura 44), $(x - x_0)$ a componente da coordenada cartesiana e w o raio do feixe gaussiano na posição z. A medida é repetida para várias posições z ao longo do feixe laser, de cada lado da cintura (Tabela 8).

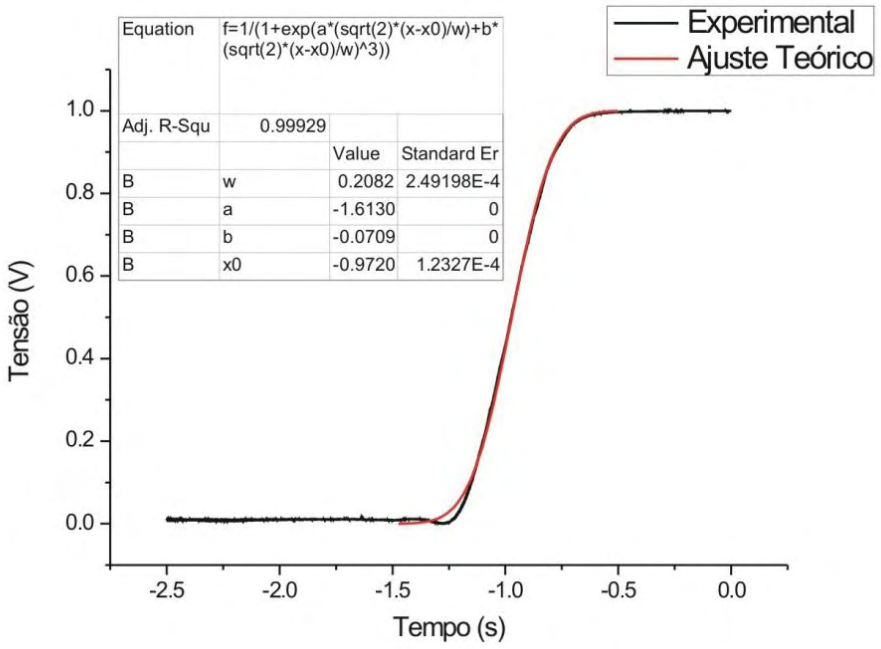

Figura 44 – Registros dos dados experimentais com o fit teórico.

Na figura 45 estão colocados os raios $w(z)$ assim determinados.

A cintura (w_0 e sua posição $z = z_c$) é determinada ajustando aos dados experimentais a função

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda (z - z_c)}{\pi w_0} \right)^2} \quad . \qquad \text{(A.1)}$$

Abaixo se encontram os pontos experimentais que melhor se ajustaram à teoria (que considera a intensidade transmitida de um feixe gaussiano em função de z), utilizados para encontrar w_0 na nossa montagem (Figura 45). O foco foi determinado em z = 22 a 23 cm, aproximadamente.

Dados experimentais

Distância (cm)	Cintura (cm)
14	0,12912
14,6	0,14151
17,6	0,08562
20,6	0,04678
23,6	0,00656
26,6	0,03729
29,6	0,08929
32,6	0,1228
35,6	0,14388

Tabela 8 – As colunas acima são um exemplo de pontos experimentais (posição z, em centímetro) com seus respectivos raios ajustados pelo programa Origin8.

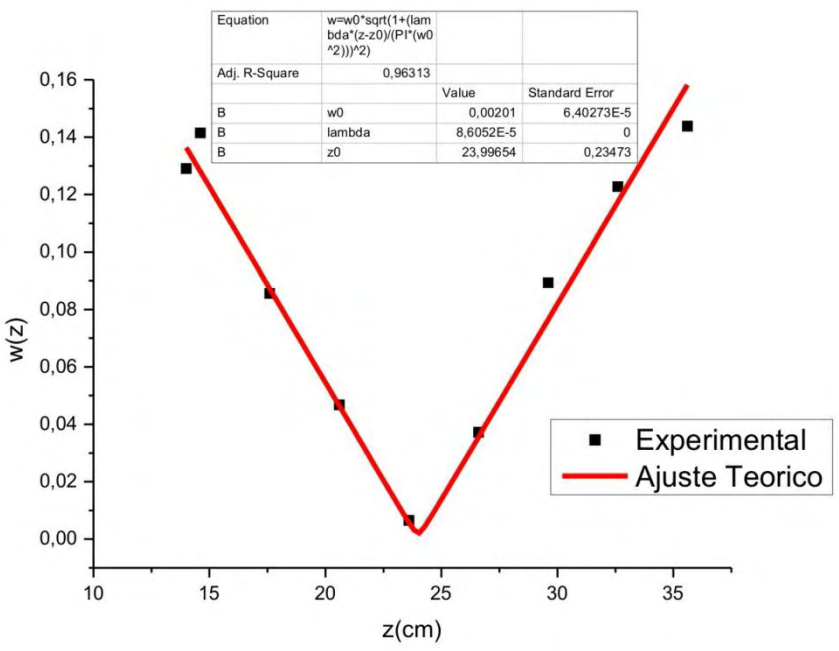

Figura 45 – Diagrama que representa o valor do raio em função da posição da secção do corte do laser. Tal esquema é importante para visualização e determinação da cintura mínima do feixe e sua posição.

Raio do feixe em função de z (nesse gráfico, z = 0 corresponde à posição de z = 22,11 cm na direção z). A curva sólida representa o ajuste teórico, o qual foi feito no programa Origin 8.0. utilizando-se a equação (A.1).

Apêndice B

A preparação do vácuo na célula

O vácuo foi obtido através de um longo processo, dessa forma será apresentado um relato sucinto dos principiais aspectos do processo de vácuo.

Para poder estudar características de átomo isolados, é necessário que esses átomos não interajam com outros átomos, nem de mesma, nem da outra espécie. Assim, precisamos reduzir a pressão parcial de átomos e moléculas outros que o césio na nossa célula ótica, ou seja, é preciso estabelecer nela um vácuo da ordem de 10^{-5} – 10^{-7} Torr. Para isto, é primeira construída uma estrutura que permita, evacuar a célula e depositar uma gota de césio no reservatório da célula.

A célula é assim inicialmente soldada a um tubo de vidro, que chamamos de "árvore", com uma extremidade ligada ao sistema de vácuo. Na outra extremidade é colocado um tubo de cobre contendo uma ampola de vidro com césio no seu interior (ver a Figura 46).

Antes de conectarmos a árvore ao sistema de vácuo é realizado um longo processo de limpeza que envolve várias etapas: primeiro lavamos com água corrente e detergente comum, e logo após esta limpeza utilizamos um detergente especial (usado em vidraria de laboratórios) diluído em água destilada e deionizada. Em seguida enxaguamos toda a árvore com acetona e álcool isopropílico. Cada etapa é repetida várias vezes, de modo a garantir que as células, uma vez seladas, não desgazeifiquem (pressão residual excessiva).

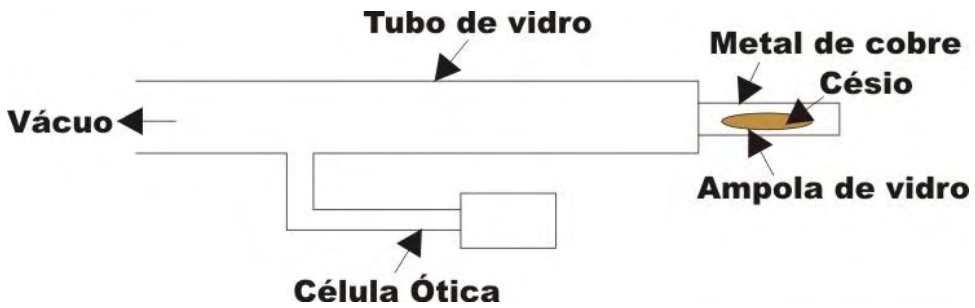

Figura 46 – Esquema da "árvore" para obtenção da célula ótica utilizada em nossa experiência.

Assim todo o sistema (árvore conectada à bomba) foi evacuado por uma bomba de vácuo mecânica, de estágio duplo. No primeiro estágio o sistema produz uma pressão de 10^{-3} Torr. No segundo, é produzido um vácuo de até 10^{-7} Torr. Com o intuito de se melhorar o vácuo do sistema foram realizadas várias séries de bombeio, que duraram algumas semanas, sendo feito um aquecimento prévio para proporcionar a desgazeificação da célula e deixá-la com superfícies livres de impurezas.

A transferência do césio ocorre através da quebra da ampola (com um alicate, por exemplo), depois é destilada esse césio para a célula e por fim a célula é fechada com o uso de um maçarico.

O vácuo final depois deste processo foi de aproximadamente 10^{-7} Torr.

Apêndice C

Redução à forma SVEA (Slowly Varying Envelope Approximation) [41]

Devido à complexidade em manipular equações de onda não lineares de segunda ordem, geralmente as reduzimos a equações mais simples de primeira ordem mediante uma aproximação na qual é suposto que as características da onda eletromagnética (amplitude e fase) variam lentamente num período óptico. Com essa aproximação de "variação lenta", supondo ondas planas, o campo envolvido na interação é do tipo:

$$\mathrm{E}(z,t) = \frac{1}{2} E(z) \exp[\, ikz - \omega t] + c.c. \quad , \qquad \text{(C.1)}$$

onde $E(z)$ é a amplitude da onda que se propaga ao longo da direção z, com freqüência ω, vetor de onda $k = 2\pi n_0 / \lambda$, sendo λ o comprimento de onda no vácuo, n_0 o índice de refração linear do meio e c.c. o complexo conjugado.

Escrevendo a polarização não linear de um modo especial, cuja função de modulação se propaga com a mesma freqüência e vetor de onda (mesmos ω e k) que a função de modulação do campo elétrico:

$$\mathrm{P}^{(NL)} = \frac{1}{2} \mathrm{P}(z,t) e^{\pm i(\omega t - kz)} + c.c. + outros \quad termos \quad . \qquad \text{(C.2)}$$

Podemos desprezar os outros termos da equação acima, pois eles correspondem a outras modulações em freqüências ou outros vetores de onda que não se acoplam ao campo elétrico particular que estamos assumindo. Usando a aproximação de variação lenta

$$\left| k^2 E \right| >> \left| k^2 \frac{\partial E}{\partial z} \right| >> \left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right| \quad , \qquad \text{(C.3)}$$

e substituindo as equações (C.1) e (C.2) em (1.2.2), obteremos uma equação que multiplicada por $e^{\mp(\omega - kz)}$ e integrada num período ótico, encontramos:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \sqrt{\mu_0 \varepsilon}\,\frac{\partial}{\partial t}\right) E = \mp i\,\frac{\omega}{2}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\,\mathrm{P} \quad . \tag{C.4}$$

Esta é a equação de SVEA para uma onda plana viajando na direção z. Escrevendo a amplitude do campo como

$$E(z) = \sqrt{\mathrm{I}(z)}\,\exp[\, i\Delta\phi(z)] \qquad , \tag{C.5}$$

e observando que

$$\mathrm{P}_{NL} = \chi^{(3)}\left|E\right|^2 E \quad , \tag{C.6}$$

temos, substituindo (C.5) e (C.6) em (C.4)

$$\frac{\partial\sqrt{\mathrm{I}(z)}}{\partial z} + i\sqrt{\mathrm{I}(z)}\,\frac{\partial\Delta\phi(z)}{\partial z} = \mp\frac{\omega}{2} i\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}}\chi^{(3)}\left|E\right|^2\sqrt{\mathrm{I}(z)} - \frac{\alpha(\mathrm{I})}{2}\sqrt{\mathrm{I}(z)} \quad . \tag{C.7}$$

Na equação (C.7) adicionamos fenomenológicamente um termo de atenuação para levar em conta a absorção do meio. Portanto comparando a parte real e imaginária da equação (C.7), seguem-se as equações que governam o processo da varredura z no formalismo convencional:

$$\frac{d\left|E\right|}{dz} = -\frac{\alpha}{2}\left|E\right|$$

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta n$$

Apêndice D

Absorção Saturada

A realização de certas medidas experimentais com o laser sintonizado dentro da largura Doppler de uma transição, ou mesmo na freqüência central de uma transição atômica, pode implicar na necessidade de uma referência de freqüência, a partir da qual se sabe qual é a freqüência do laser. Nós usamos para tanto uma experiência de absorção saturada, realizada em uma montagem externa à da varredura z, usando uma célula de vapor de césio à temperatura ambiente.

A absorção saturada é uma técnica espectroscópica que permite observar linhas espectrais sem alargamento Doppler. A Figura 47 ilustra a técnica para a obtenção de uma absorção saturada. Dois feixes contra propagantes provenientes do mesmo laser com freqüência ω interagem com um vapor atômico de césio contido em uma célula de vidro. Os feixes possuem intensidades diferentes. O de menor intensidade é denominado de feixe sonda, e o segundo de feixe de bombeio (intensidade maior que a intensidade de saturação).

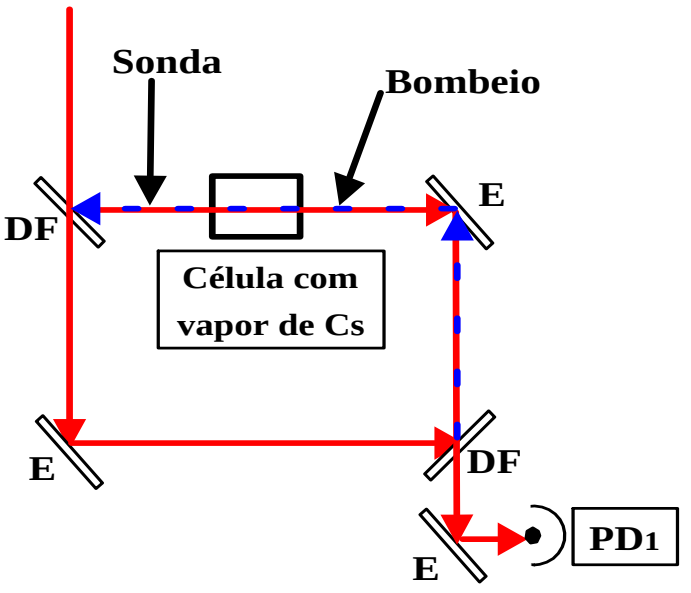

Figura 47 – Esquema experimental da absorção saturada. DF: Divisor de Feixe; E: Espelho; PD1: Detector - Referência da Absorção Saturada.

- Sistema de dois níveis

Quando a freqüência do laser ω é diferente da freqüência ω_0 da transição atômica (por exemplo, $\omega > \omega_0$), o feixe de bombeio interage com um grupo de átomos com componente de velocidade na direção do feixe v_z, enquanto que o feixe sonda contra propagante excita um grupo simétrico de componente de velocidade $-v_z$ (Figura 48). O feixe de bombeio, satura a transição atômica, diminuindo o número de átomo com velocidade v_z no estado fundamental o que não modifica a absorção do feixe sonda, que interage com átomos não bombeados.

$$\omega_{Sonda} = \omega + kv_z \qquad \text{e} \qquad \omega_{Bombeio} = \omega - kv_z$$

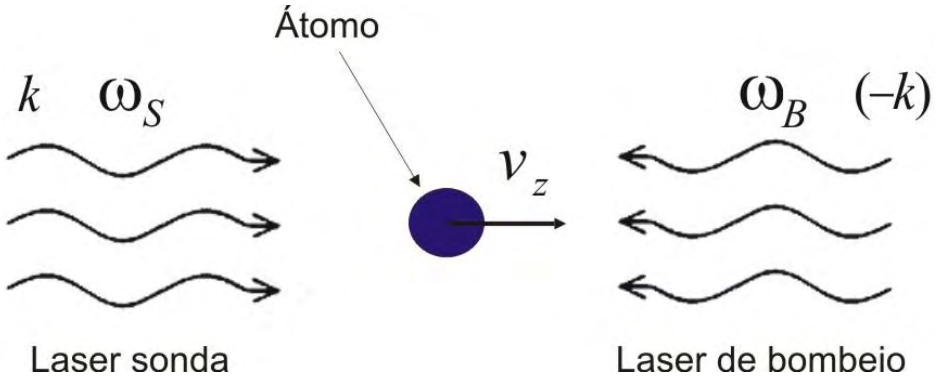

Figura 48 – Átomo interagindo com um campo eletromagnético de freqüência ω e vetor de onda k.

No entanto, para a freqüência particular $\omega = \omega_0$, ambos os feixes interagem com a mesma classe de átomos de velocidade v_z =0. O feixe de bombeio, satura a transição atômica, diminuindo o número de átomo com velocidade v_z no estado fundamental. Como resultado, a absorção do feixe sonda contra propagante diminui, como maior parte dos átomos já estão excitados pelo feixe de bombeio, havendo assim uma maior transmissão do sonda. Obtemos assim um perfil Doppler, no qual é sobreposto uma diminuição da absorção (buraco) correspondendo à freqüência de

ressonância ω_0 (Figura 49). Portanto, para o caso $\omega = \omega_0$, a absorção do feixe sonda é muito menor devido à saturação causada pelo feixe de bombeio.

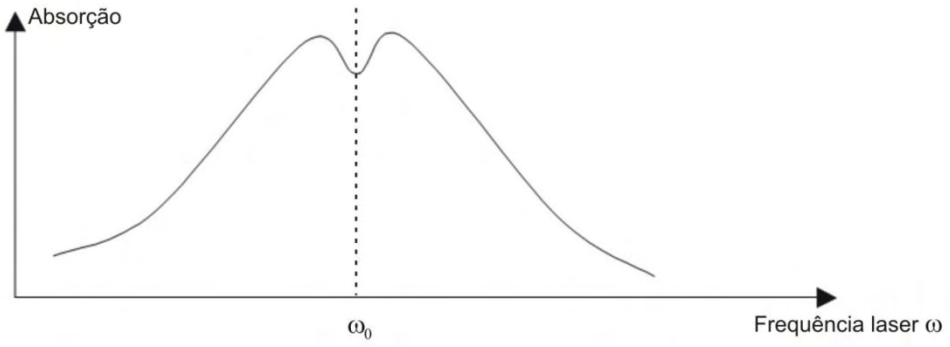

Figura 49 – Diminuição da absorção no centro da linha $\omega = \omega_0$ de um alargamento Doppler, devido à saturação por um laser de bombeio.

- Sistema de mais de dois níveis

Para um sistema com mais de dois níveis, aparecem, no fundo Doppler de absorção do feixe sonda, buracos na posição de cada transição sondada. Por exemplo, a linha D_2 do césio é constituída de 6 transições hiperfinas, dos níveis hiperfinos $F = 3$ $(F = 4)$ do estado fundamental para os níveis hiperfinos $F' = 2,3,4$ $(F' = 3,4,5)$ no estado excitado (ver a Figura 8). As linhas saindo de $F = 3$ e as a partir de $F = 4$ são separadas por 9 GHz, o que é muito maior que a largura Doppler (≈ 500 MHz). No espectro de absorção do feixe sonda $F = 4 \rightarrow F'$ vão assim aparecer três buracos: um para a transição $F = 4 \rightarrow F' = 3$, outro para $F = 4 \rightarrow F' = 4$ e o terceiro para $F = 4 \rightarrow F' = 5$. É possível também observar buracos correspondentes às chamadas ressonâncias de cruzamento (crossover), geradas quando a freqüência do laser é $\omega = (\omega_1 + \omega_2)/2$, onde ω_1 é a freqüência de uma transição $F \rightarrow F'$ e ω_2 a freqüência de uma transição $F \rightarrow F''$ $(F'' \neq F')$. O feixe de bombeio

interage então com duas classes de átomos de velocidades opostas v_z e -v_z (Figura 50). Isso resulta em uma diminuição do número de átomos com velocidades $\pm v_z$ no estado fundamental. Na mesma freqüência, o feixe sonda interage com exatamente o mesmo grupo de átomos, mas de maneira oposta. Então, o perfil de absorção do feixe sonda mais uma vez mostra um buraco, mais intenso do que observado para ressonância padrão, já que envolve dois grupos de velocidades, sendo v_{z1} e v_{z2} descritos da seguinte forma

$$v_{z1} = \pm \frac{(\omega - \omega_1)}{k}$$

e

$$v_{z2} = \pm \frac{(\omega - \omega_2)}{k}.$$

Quando $v_{z1} = v_{z2}$, temos

$$\pm \frac{(\omega - \omega_1)}{k} = \pm \frac{(\omega - \omega_2)}{k},$$

resolvendo a equação acima, resulta em

$$-(\omega - \omega_1) = (\omega - \omega_2)$$

$$\omega = \frac{(\omega_1 + \omega_2)}{2}$$

Na figura 51 está mostrado um espectro de absorção saturada na linha D_2 $F = 4 \rightarrow F'$ do césio, exibindo um fundo de absorção linear largo (≈ 400 MHz)

no qual são cavados "buracos" na posição das três transições hiperfinas $F = 4 \rightarrow F' = 3,4,5$ e das três ressonâncias de cruzamentos $F = 4 \rightarrow F' = 3, F'' = 4$, $F' = 3, F'' = 5$, $F' = 4, F'' = 5$. Esses buracos têm largura homogênea das transições, aqui da ordem ≈ 20 MHz. Isso permite conhecer com precisão de ≈ 10 MHz a freqüência do laser.

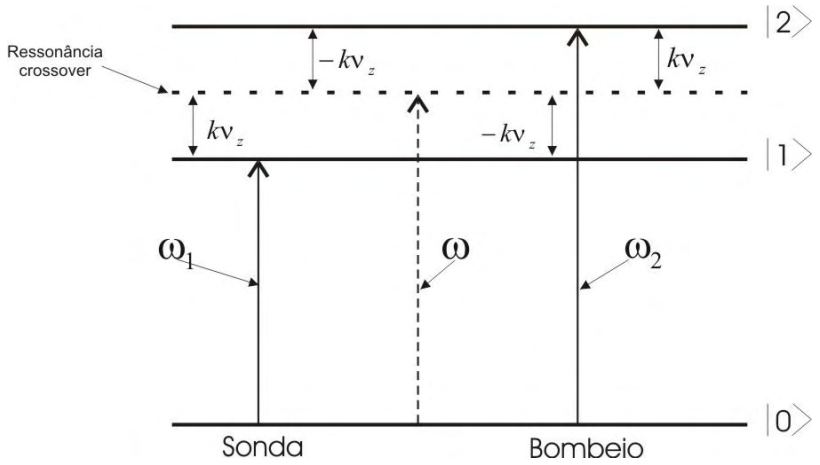

Figura 50 – A formação de uma ressonância crossover. Um átomo de três níveis com duas transições permitidas em freqüências angular ω_1 e ω_2 .

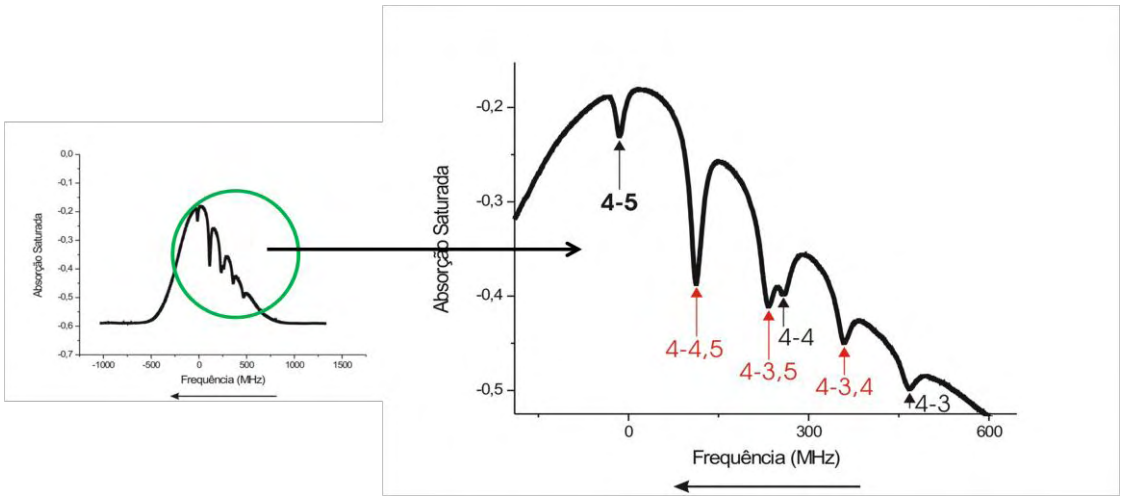

Figura 51 – Espectro de absorção saturada obtido para a linha D_2 ($F = 4 \rightarrow F'$) do césio.

As flechas pretas indicam as transições hiperfinas e vermelhas as ressonâncias de cruzamento.

Apêndice E

ANGELLS

Laser stabilization to an atomic transition using an optically generated dispersive lineshape

Fabiano Queiroga, Weliton Soares Martins, Valdeci Mestre, Itamar Vidal, Thierry Passerat de Silans, Marcos Oriá, and Martine Chevrollier*

Laboratório de Espectroscopia Ótica, DF-CCEN
Cx. Postal 5008 - Universidade Federal da Paraíba
58051 - 900 João Pessoa - PB, BRAZIL
**Corresponding author: martine@otica.ufpb.br*

Compiled May 4, 2011

We report on a simple and robust technique to generate a dispersive signal which serves as an error signal to electronically stabilize a monomode cw laser emitting around an atomic resonance. We explore nonlinear effects in the laser beam propagation through a resonant vapor by way of spatial filtering. The performance of this technique is analysed by locking semiconductor lasers to the cesium and rubidium D_2 line and observing long-term reduction of the emission frequency drifts, making the laser well adapted for many atomic physics applications. © 2011 Optical Society of America

OCIS codes: **020.3690, 140.2020, 140.3425, 190.3270.**

The use of lasers in atomic physics often demands long term stability of the central frequency of the light emission. For metrological applications the stabilization technique [1, 2] should be very carefully chosen and applied, frequently controlling the laser linewidth and avoiding to introduce any artificial shift in the laser emission frequency. Moreover, locking to the center of an atomic or molecular transition usually requires modulation techniques and lock-in detection. On the other hand, for many scientific and technical applications one only needs to avoid frequency shifts and, sometimes, the desired laser frequency does not lay at the maximum of an atomic lineshape, but rather at a displaced frequency, as for instance, when operating an optical cooler [3]. For such applications a few simple and reliable techniques were developed [4–10] and allow one to deal with lasers in various long run experiments. The main idea behind many of these techniques is to generate a dispersive lineshape that will produce an error signal. In particular, for the dichroic atomic vapor laser lock (DAVLL) [4] and its variants [5, 10], the stabilization frequency may easily be chosen around the center of the Doppler-broadened line. However, a relatively uniform external magnetic field is needed to generate the Zeeman split of the probed hyperfine transition by a laser beam with two orthogonal circular polarizations, as is necessary a double detection with well balanced photodetectors.

In this work we report on a new method to generate a dispersive signal in a very direct and simple way, therefore of easy implementation. We call this method ANGELLS, acronym for Atomic Non-linear GEnerated Laser Locking Signal. Our technique explores the dispersive signal obtained when a slightly focused beam is sent through a vapor cell and is detected after spatial filtering by an aperture (Fig. 1). A gaussian-profiled beam propagating through a non-linear medium develops high order spatial components, which strongly depend on the laser frequency close to an atomic resonance. The intensity transmitted through the aperture is thus modulated when the frequency is scanned around an atomic transition, resulting in a dispersive-like lineshape.

The physical origin of the observed lineshape can be explained in a simple way. Around the atomic transition frequency, both real and imaginary parts of the resonant refractive index strongly change. For intensities of a few mW/cm^2, the absorption is about tens of percent in a one-centimeter-long optical cell filled with Cs or Rb vapor at room temperature [11] and such absorption can be easily detected with an ordinary photodetector. On the other hand, propagation effects on the laser beam require more sophisticated techniques to be unvailed as, for example, by way of interferences with a part of the original laser beam. In our technique, considering a laser beam of Gaussian spatial profile and slightly saturating intensities, it is possible to observe resonant dispersive shapes by focussing the transmitted beam and adjusting the aperture to capture an important part of the power. When the frequency is scanned around the absorption peak, self-focussing and self-defocussing change the amount of light transmitted through the aperture [12], giving rise to a dispersive-like lineshape with good signal-to-noise ratio. That is the basic idea and optimization of the signal-to-noise ratio may be achieved through variations of this configuration, such as placing the vapor cell after the lens (see Fig. 1) thus enhancing nonlinear effects with higher intensity gradients.

Our experimental setup is sketched in Figure 1. A 852 nm tunable semiconductor laser beam is splitted by an 90/10 beam splitter. The lower-intensity beam is focalized by a 150 mm focus lens into a warm (40 to $\approx 60°C$) atomic cesium vapor [13] contained in a 1-mm-long optical cell [14], which is slightly displaced ($\approx$ 20 mm) from the focal point of the lens, along the beam axis. When a frequency sweeping is performed around the Cs

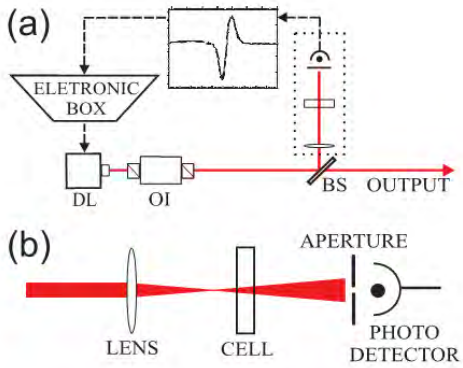

Fig. 1. (a) Experimental setup. Insert: Power through the aperture: dispersive-like lineshape used to generate an error signal around the line center. DL, Diode laser. OI, Optical isolator. BS, Beam splitter. (b) Detail of the beam configuration for ANGELLS

$6S_{3/2}, F = 4 \longrightarrow 6P_{3/2}, F' = 3, 4, 5$ Doppler transition we directly get a dispersive curve with a good signal-to-noise ratio (See Fig. 2). Very small structures on these spectra are due to non-linear effects due to the beam reflection on the cell windows. The comparable dimensions of the beam diameter and the cell thickness makes it difficult to avoid this high-order interaction. However, this does not pose any additional problem to lock the laser at almost any point inside the Doppler width. Using this dispersive curve to produce an error signal, an electronic response is generated to correct for laser frequency drifts.

We checked the stabilization sensitivity to vapor density and cell alignement along the beam. Although the vapor temperature has been varied between 45 and 63 °C, the lineshape of the generated signal is surprisingly stable against temperature changes as shown in Fig. 2a. The Doppler-profile center position changes very little over this 20 °C temperature variation. Thus, the laser frequency locking at the Doppler center is not affected by small temperatures fluctuations of the vapor, and it is not crucial to monitor the cell temperature for variations smaller than a few °C. Similarly, we show that the error signal remains unchanged over ≈ 2-mm displacements along the beam, around the optimal position of the cell (≈ 20 mm on either side from focal point) (Fig. 2b).

This is expected because both perturbations maintain the anti-symmetrical characteristic of the transmission spectrum, keeping fixed the point of symmetry. More noticeable modifications appear on the profile wings, that do not play a role in the stabilization process.

Once one gets such an error signal, an electronic feedback can be sent to the control of the laser frequency. In semiconductor lasers, the frequency is changed mostly through the injection current, the junction temperature or, in the case of extended cavity configuration, the external diffraction grating angle. In our configuration, we worked with a DFB laser diode and a Fabry-Pérot semiconductor laser with extended cavity [15], resonant with the Cs and the Rb D_2 line, respectively. The electronic correction signal is fed back in the junction current in the DFB or in the piezoelectric actuator in the extended-cavity laser. For the sake of simplicity, we have operated both systems with an electronic circuit having only proportional and integral gains and using relatively ordinary components.

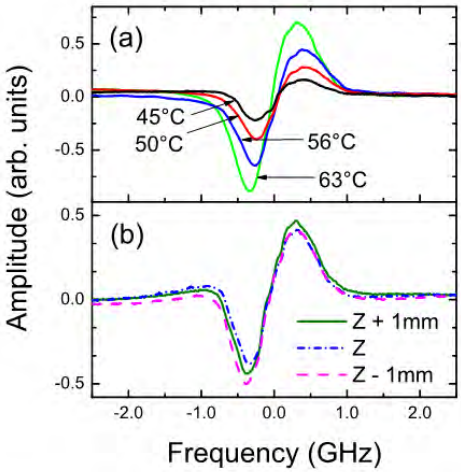

Fig. 2. Power transmission through the aperture (see Fig.1) as a function of frequency (a) for different temperatures of the atomic vapor and (b) for different longitudinal displacements from a position where the signal is symmetrical.

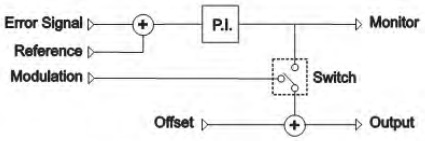

Fig. 3. Circuit schematics

The locking circuit is shown in Figure 3. A voltage ramp generator allows one to scan the laser frequency (through current or cavity PZT modulation) around the atomic resonance. We choose a locking frequency with the help of a reference saturated absorption (SA) spectrum carried out in an extra cell and exhibiting characteristic sub-Doppler features (see Fig. 4a). The locking procedure follows then some basic steps: first, the ramp is turned off and the offset finely tuned, until the laser frequency is at the desired locking point, marked by a dot in Figs. 4a and 4b. The error signal is then brought to zero by adjusting the reference offset (Fig. 4b) and

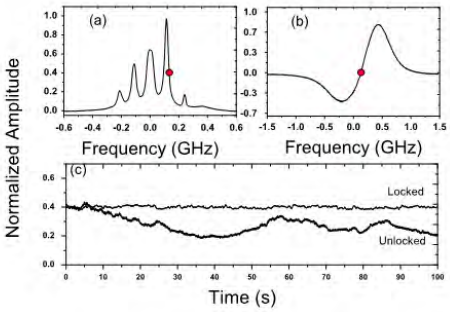

Fig. 4. (a) Cs saturated absorption (SA) spectrum from an extra reference cell (not shown in Fig. 1), (b) dispersion curve for the error signal and (c) the ANGELLS-frequency-locked SA signal. The chosen frequency of stabilization is marked by a red dot in spectra (a) and (b)

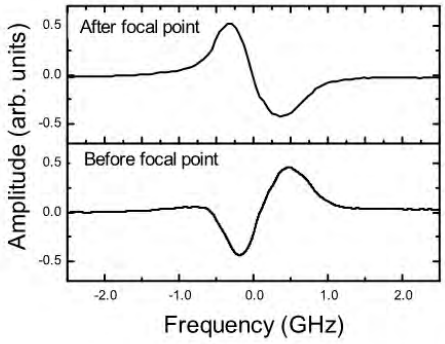

Fig. 5. Lineshape of the dispersive signal when the cell (Cs vapor) is placed a few millimeters from the beam minimum waist.

a switch closes the loop, ultimately locking the laser at the desired frequency (Fig. 4c). Modifying the reference offset allows to lock the laser at any point within the Doppler width and thus to explore the different hyperfine transitions shown in the SA spectrum.

Figure 4c exhibits the SA signal with the laser locked at the selected frequency, over a period of a few minutes. The system remains locked for tens of minutes even after we have strongly and repeatedly hit our home-made optical table. The short-term rms frequency width is the same for the locked and the unlocked laser, i.e. of the order of 2 MHz or less.

Another characteristic of using ANGELLS technique is the possibility of choosing the sign of the error signal slope by purely optical means, as shown in Figure 5. The dispersive curve gets inverted when the vapor is displaced across the focal position (see Fig.1).

In summary, we have presented a new opto-electronic stabilization method based on the direct generation of an optical dispersive-like signal. The ANGELLS technique has proved to be an easy and robust lock method against diode laser frequency drifts. Because of its simplicity and purity, we believe the ANGELLS' technique is nicer than the DAVLL's.

This work was partially funded by Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq, contract 472353/2009-8) and Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES). F.Q., W.S.M., I.V. and M.C. acknowledge grants by CNPq.

References

1. See, for instance, J. L. Hall, L.-S. Ma, M. Taubman, B. Tiemann, F.-L. Hong, O. Pfister, and J. Ye, IEEE Trans. on Instr. and Meas. **48**, 583 (1999).
2. C. Salomon, D. Hils and J. Hall, J. Opt. Soc. Am. B **5**, 1576 (1988).
3. The dispersive force in an optical molasses is maximized at a frequency red shifted one half linewidth from the cyclic cooling transition frequency. See, for instance, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, C. E. Tanner, R. N. Watts, and C. I. Westbrook, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2084 (1989).
4. B. Chéron, H. Gilles, J. Havel, O. Moreau, and H. Sorel, J. Phys. III **4**, 401 (1994).
5. K. L. Corwin, Z.-T. Lu, C. F. Hand, R. J. Epstein, and C. E. Wieman, Appl. Opt. **37**, 3295 (1998).
6. C. P. Pearman, C. S. Adams, S. G. Cox, P. F. Griffin, D. A. Smith and I. G. Hughes. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **35**, 5141 (2002).
7. J. E. Debs, N. P. Robins, A. Lance, M. B. Kruger, and J. D. Close, Appl. Opt. **47**, 5163 (2008).
8. N. P. Robins, B. J. J. Slagmolen, D. A. Shaddock, J. D. Close, and M. B. Gray, Opt. Lett. **27**, 1905 (2002).
9. E.A. Gazazyan, A.V. Papoyan, D. Sarkisyan, and A. Weis, Laser Phys. Lett. **4**, 801 (2007).
10. W. S. Martins, M. Grilo, M. Brasileiro, O. di Lorenzo, M. Oriá, and M. Chevrollier, Appl. Opt. **49**, 871 (2010).
11. The saturation intensity for the D_2 transition is 1.1 mW/cm^2 for Cs and 1.7 mW/cm^2 for Rb.
12. See, e. g., T. Ackemann, T. Scholz, Ch. Vorgerd, J. Nalik, L. M. Hoffer, and G. L. Lippi, Opt. Commun. **147**, 411 (1998).
13. We have performed similar experiments of laser stabilization using an atomic Rb vapor to lock a 780 nm diode laser to different transitions of the two rubidium isotopes.
14. The cell length was chosen to have a thickness small compared to the lens focal length. Stabilization was also observed with longer cells (10 mm), however thin cells help enhance dispersive effects over absorptive ones.
15. Our home-made external cavity is tuned thanks to a low-voltage piezoelectric actuator (displacement of about 6μm/volt).

Informational Fourth Page

In this section, please provide full versions of citations to assist reviewers and editors (OL publishes a short form of citations) or any other information that would aid the peer-review process.

References

1. See, for instance, J. L. Hall, L.-S. Ma, M. Taubman, B. Tiemann, F.-L. Hong, O. Pfister, and J. Ye, "Stabilization and frequency measurement of the I_2-stabilized Nd:YAG laser", IEEE Trans. on Instr. and Meas. **48** (2), 583-586 (1999). doi:10.1109/19.769663
2. C. Salomon, D. Hils and J. Hall, "Laser stabilization at the millihertz level", J. Opt. Soc. Am. B **5** (8), 1576-1587 (1988).
3. The dispersive force in an optical molasses is maximized at a frequency red shifted one half linewidth from the cyclic cooling transition frequency. See, for instance, P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, C. E. Tanner, R. N. Watts, and C. I. Westbrook, "Optical molasses", J. Opt. Soc. Am. B **6** (11), 2084-2107 (1989). doi:10.1364/JOSAB.6.002084
4. B. Chéron, H. Gilles, J. Havel, O. Moreau, and H. Sorel, "Laser frequency stabilization using Zeeman effect", J. Phys. III **4** (2), 401-406 (1994).
5. K. L. Corwin, Z.-T. Lu, C. F. Hand, R. J. Epstein, and C. E. Wieman, "Frequency-Stabilized Diode Laser with the Zeeman Shift in an Atomic Vapor", Appl. Opt. **37** (15), 3295-3298 (1998). doi:10.1364/AO.37.003295
6. C. P. Pearman, C. S. Adams, S. G. Cox, P. F. Griffin, D. A. Smith and I. G. Hughes, "Polarization spectroscopy of a closed atomic transition: applications to laser frequency locking", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **35** (24), 5141-5151 (2002).
7. J. E. Debs, N. P. Robins, A. Lance, M. B. Kruger, and J. D. Close, "Piezo-locking a diode laser with saturated absorption spectroscopy", Appl.Opt. **47** (28), 5163-5166 (2008).
8. N. P. Robins, B. J. J. Slagmolen, D. A. Shaddock, J. D. Close, and M. B. Gray, "Interferometric, modulation-free laser stabilization", Opt. Lett. **27** (21), 1905-1907 (2002).
9. E.A. Gazazyan, A.V. Papoyan, D. Sarkisyan, and A. Weis, "Laser frequency stabilization using selective reflection from a vapor cell with a half wavelength thickness", Laser Phys. Lett. **4** (11), 801-809 (2007). DOI: 10.1002/lapl.200710063
10. W. S. Martins, M. Grilo, M. Brasileiro, O. di Lorenzo, M. Oriá, and M. Chevrollier, "Diode laser frequency locking using Zeeman effect and feedback in temperature", Appl. Opt. **49** (5), 871-874 (2010). doi:10.1364/AO.49.000871
11. The saturation intensity for the D_2 transition is 1.1 mW/cm^2 for Cs and 1.7 mW/cm^2 for Rb.
12. See, e. g., T. Ackemann, T. Scholz, Ch. Vorgerd, J. Nalik, L. M. Hoffer, and G. L. Lippi, Self-lensing in sodium vapor: influence of saturation, atomic diffusion and radiation trapping, Opt. Commun. **147**, 411-428 (1998). doi:10.1016/S0030-4018(97)00653-6

Referências Bibliográficas

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. Lasers; A.E. Siegman; University Science Books (1986).
2. A. Yariv: Optical Electronics, 4rd edn. (Holt, Rinehart, Winston, New York 1991)
3. A. Einstein, Ann. d. Physik 17, 132 (1905).
4. Albert Einstein, Zur Quantentheorie der Strahlung, Z. Phys. **18**, 121-128 (1917).
5. J. P. Gordon, H. J. Zeiger, and C. H. Townes, Molecular Microwave Spectrum of NH_3, Phys. Rev. **95**, 282-284 (1954).
6. Schawlow and C. Townes, Phys. Rev. **112**, 1940 (1958).
7. R. Gordon Gould, The LASER, Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, in: The Ann Arbor Conference on Optical Pumping, the University of Michigan, 15 June through 18 June 1959, edited by P. A. Franken and R. H. Sands, pp. 128, OCLC 02460155.
8. T. H. Maiman, Nature, **187**, 493 (1960).
9. A. Javan, W. R. Bennett, Jr., and D. R. Herriott, Phys. Rev. Lett. 6, 106–110 (1961).
10. D. F. Nelson and W. S. Boyle, Applied Optics, Vol. 1, Issue S1, pp. 99-101 (1962).
11. C. K. N. Patel, Phys. Rev. Lett. 13, 617–619 (1964).
12. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
13. M. G. A. Bernard e G. Draffourg, Laser Conditions in Semiconductors, Phys. Stat. Solidi 1,699 (1961).
14. H. Kroemer, Proc. IEEE **51**, 1782(1963). H. C. Casy e M. B. Panisk, Heterostructure Lasers Part A: Fundamental Principles New York: Academic Press, 1978.
15. Zh. I Alferov e R. F. Kazarinov, Certificado do autor 28448 (URSS), 1963. H. C. Casy e M. B. Panisk, Heterostructure Lasers Part A: Fundamental Principles New York: Academic Press, 1978.
16. H. Kressel e H. Nelson, RCA Rev. **30**, 106 (1969).
17. I. Hayashi, M. B. Panish, P. W. Foy, IEEE J. Quantum Electron. **QE-5**, 211 (1969).
18. H. N. de Freitas, Estudos de processos da interação de átomos de césio com superfícies dielétricas utilizando lasers de diodo, tese de doutorado, Universidade federal da Paraíba, 2002.

19. Daniel A. Steck (Cesium D Line Data). http://steck.us/alkalidata/, 2010.
20. D. j. Griffiths, Introduction to Quantum Mechanics. New Jersey, Pretence Hall (1995).
21. R. W. Boyd, Nonlinear Optics. 3nd ed. Academic Press, 2008.
22. Y. R. Shen, The principles of nonlinear optics. New York: John Wiley & Sons, 1984.
23. M. J. Weber, D. Milan and W. L. Smith, Opt. Eng. **17**, 463 (1978).
24. S. R. Friberg and P. W. Smith, IEEE J. Quantum Electron. **QE-23**, 2089 (1987).
25. R. Adair, L. L. Chase and S. A. Payne, J. Opt. soc. Am. **B4**, 875 (1987).
26. A. Owyoung, IEEE J. Quantum Electron. **QE-9**, 1064 (1973).
27. W. E. Williams, M. J. Soileau and E. W. Van Stryland, Opt. Commun. **50**, 256 (1984).
28. M. Sheik-Bahae, A. A. Said and W. Van. Stryland, Opt. Lett. **14**, 955 (1989).
29. Lasers; A.E. Siegman; University Science Books (1986).
30. M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, E. W. Vanstryland, IEEE J. Quantum Electron. **QE-26**, 760 (1990).
31. D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith, Opt. Lett. 4, 331-333 (1979).
32. http://www.omega.com/temperature/z/pdf/z204-206.pdf
33. C. F. McCormick, D. R. Solli, R. Y. Chiao, J. M. Hickmann, Phys. Rev. **A** 69, 023804 (2004).
34. Y. Wang, M. Saffman, Opt. Commun. 241, 513-520 (2004).
35. D. H. Close, Phys. Rev. 153, 360 (1967).
36. C. F. McCormick et al., J. Opt. Soc. Am. **B** 20, 2480 (2003).
37. K. Y. Tseng, K. S. Wong, G. K. L. Wong, Opt. Lett. 21, 180 (1996).
38. Y. M. Cheung, S. K. Gayen, J. Opt. Soc. Am. **B** 11, 636 (1994).
39. S. Sinha, A. K. Ray, K. Dasgupta, J. Appl. Phys. 87 – 3222 (2000).
40. Marcos A. de Araújo et al., Appl. Opt. **48**, 393-396 (2009).
41. A. Yariv and R. A. Fisher, Optical Phase Conjugation, edited by R. A. Fisher, Academic Press (1983).
42. S. Sinha, et al., Opt. Commun. 203, 427-434 (2002).