3. Meios não-lineares e conversão de freqüências

Todos os cristais não-lineares utilizados para conversão de frequências são meios *dielétricos*. Também chamados de isolantes, os dielétricos são materiais cujas cargas dominantes em átomos e moléculas são *fixas*, isto é, que não possuem liberdade de movimento, ao contrário dos materiais condutores [28]. Assim, dielétricos ideais não contêm cargas livres e sua estrutura atômica é eletricamente neutra, como mostra a figura 7(a). Se um campo elétrico externo for aplicado a um dielétrico, a distribuição espacial de cargas tende a se deslocar segundo a orientação do campo aplicado, formando uma variedade de dipólos elétricos, como mostra a configuração da figura 7(b).



Figura 7. (a) Distribuição de cargas em átomo neutro; (b) A nuvem eletrônica se desloca com a aplicação de um campo elétrico externo.

O efeito de cada dipolo elétrico pode ser representado por um momento de dipólo dp_i , dado por:

$$dp_i = q\ell_i \tag{3.1}$$

onde q é o valor da carga em coulombs e ℓ é a distância entre as cargas. Essa criação de momentos de dipólo representa uma situação na qual o dielétrico está armazenando energia, de forma análoga a uma mola que adquire energia potencial quando deformada. Na prática, o efeito do campo elétrico aplicado a um dielétrico é estudado levando-se em conta o comportamento macroscópico do material, isto é, somando-se todas as contribuições dos momentos de dipólo infinitesimais dados por (3.1). Para isso, define-se o vetor *Polarização Elétrica* **P** da seguinte forma:

$$\mathbf{P} = \lim_{\Delta \nu \to 0} \left(\frac{1}{\Delta \nu} \sum_{i=1}^{N_e \Delta \nu} dp_i \right)$$
(3.2)

onde Δv é um volume contendo N_e dipólos elétricos. Dessa forma, P é uma medida do momento de dipólo por unidade de volume, e possui unidades de coulombs por metro quadrado – as mesmas do vetor densidade de fluxo elétrico D. É natural, portanto, escrevermos a densidade de fluxo total no interior de um dielétrico como a superposição dos efeitos de polarização com a densidade de fluxo no vácuo:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \tag{3.3}$$

Na expressão acima, **P** também é uma função de **E**. Se o meio dielétrico for *linear*, a relação entre **D** e **E** é linear (por definição), e por essa razão, **P** também é uma função linear do campo elétrico. Chamando arbitrariamente a constante de proporcionalidade de $\varepsilon_0 \chi$, temos:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \varepsilon_0 \chi \mathbf{E} = \varepsilon_0 (1 + \chi) \mathbf{E}$$
(3.4)

O termo entre parênteses $(1 + \chi)$ é normalmente chamado de *permissividade relativa* e representado por ε_r , e indica a capacidade de um meio dielétrico armazenar energia elétrica. Esse valor é o quadrado do índice de refração *n* do material relativo ao vácuo.

Entretanto, se o material for *não linear*, a expressão (3.4) não é válida. Nesse caso, a polarização elétrica \mathbf{P} é uma função não linear de \mathbf{E} , e pode ser escrita como uma série de potências da forma

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \sum_{n=1}^{\infty} \chi^{(n)} \mathbf{E}^n$$
(3.5)

onde cada coeficiente $\chi^{(n)}$ é chamado de *susceptibilidade de n-ésima* ordem. É importante ressaltar algumas propriedades desses coeficientes que não estão explícitas em (3.5). Em primeiro lugar, se o meio for *anisotrópico*, os coeficientes são *tensores*. Ou seja, o valor do vetor polarização elétrica *P* vai depender também da direção do campo elétrico aplicado. Além disso, se o meio for *dispersivo*, é evidente da relação entre $(1 + \chi)$ e o índice de refração *n* que os coeficientes $\chi^{(n)}$ também dependem da freqüência do campo elétrico aplicado.

De forma a discernir efeitos lineares de não-lineares, é comum utilizar-se a notação $\mathbf{P} = \mathbf{P}_{\mathbf{L}} + \mathbf{P}_{\mathbf{NL}}$, na qual o primeiro termo é dado pela parcela que corresponde ao índice n = 1 em (3.5) e o segundo termo é dado pelo restante da soma, isto é, a todos os termos indexados por n = 2 em diante. Observe que, enquanto o valor do campo elétrico for pequeno o suficiente para que as componentes \mathbf{E}^2 em diante sejam desprezíveis, o meio se comporta como linear, isto é, podemos escrever $\mathbf{P} \cong \mathbf{P}_{\mathbf{L}}$.

Ao longo do restante desse capítulo, a análise dos fenômenos não-lineares restringir-se-á aos efeitos de segunda ordem, isto é, os efeitos relacionados ao coeficiente $\chi^{(2)}$ de (3.5), que serão brevemente introduzidos na seção 3.1. Em seguida, a seção 3.2 detalhará a relação entre o campo elétrico e a polarização não-linear em meios anisotrópicos, de forma a derivarmos a equação de onda gerada na seção 3.3, de uma forma simplificada, e na seção 3.5 de uma forma mais realista que leva em conta a geometria dos feixes de luz envolvidos. O problema do casamento de fase, e as formas mais comuns para solucioná-lo, será abordado na seção 3.4. A seção 3.6, finalmente, fornece um breve tratamento quântico aos fenômenos já discutidos de um ponto de vista clássico.

3.1. Efeitos não-lineares de segunda ordem

Para compreendermos de que forma meios não-lineares de segunda ordem podem ser utilizados para conversão de frequências, suponha que seja aplicado um campo elétrico composto de apenas duas freqüências $\omega_1 > \omega_2$ e que se propaga na direção z:

$$E(z,t) = E_1 \cos(k_1 z - \omega_1 t - \phi_1) + E_2 \cos(k_2 z - \omega_2 t - \phi_2)$$
(3.6)

Supondo que o campo é observado em um ponto fixo do espaço no interior do meio não-linear (que chamamos arbitrariamente, mas sem perda de generalidade, de z = 0), o valor da polarização elétrica não-linear será dado por:

$$P_{NL}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \left[E_1 \cos(\omega_1 t + \phi_1) + E_2 \cos(\omega_2 t + \phi_2) \right]^2$$
(3.7)

Usando identidades trigonométricas, (3.7) pode ser reescrita como:

$$P_{NL}(t) = \frac{\varepsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \left\{ E_1^2 \left[1 + \cos(2\omega_1 t + 2\phi_1) \right] + E_2^2 \left[1 + \cos(2\omega_2 t + 2\phi_2) \right] + E_1 E_2 \left[\cos((\omega_1 - \omega_2)t + \phi_1 - \phi_2) + \cos((\omega_1 + \omega_2)t + \phi_1 + \phi_2) \right] \right\}$$
(3.8)

A observação de (3.8) revela que a interação de duas ondas eletromagnéticas de frequências ω_1 e ω_2 em um meio não-linear de 2^a ordem resulta em uma polarização elétrica contendo componentes nas freqüências 0 (DC), $2\omega_1$, $2\omega_2$, $(\omega_1 + \omega_2)$ e $(\omega_1 - \omega_2)^{33}$.

O processo responsável pelo surgimento dos termos $2\omega_1$ e $2\omega_2$ é chamado de Geração de Segundo Harmônico (abreviado como SHG, do inglês *Second Harmonic Generation*), e está esquematizado na figura 8(a). Observe que ele decorre da interação de uma onda consigo mesma; isso pode ser conferido

³³ Além das componentes em ω_1 e ω_2 , que foram omitidas pois pertencem ao termo linear do vetor polarização elétrica, que é proporcional ao campo elétrico.

fazendo-se $E_2 = 0$ em (3.8) e verificando-se que o termo $2\omega_1$ não desaparece. O termo DC também não desaparece quando apenas uma freqüência está presente, e isso sugere que o processo de SHG é sempre acompanhado por um processo de Retificação Óptica, que encontra-se representado na figura 8(b).

Os dois termos restantes, $(\omega_1 + \omega_2)$ e $(\omega_1 - \omega_2)$, correspondem aos processos chamados de, respectivamente, Geração de Soma de Freqüências (SFG, de *Sum Frequency Generation*) e Geração de Diferença de Freqüências (DFG, de *Difference Frequency Generation*). É interessante notar que, ao fazermos $\omega_1 = \omega_2$, são recuperados os casos anteriores de SHG e retificação óptica; isso sugere que estes podem sempre ser considerados casos particulares de SFG e DFG. As figuras 8(c) e 8(d) representam qualitativamente esses fenômenos.



Figura 8. Efeitos não-lineares de segunda ordem. (a) SHG (geração de segundo harmônico); (b) Retificação óptica; (c) SFG (geração de soma de freqüências); (d) DFG (geração de diferença de freqüências)

No contexto do problema de detecção de luz no infravermelho³⁴, conforme discutido na introdução, é necessário converter a freqüência da luz incidente em outra maior, que possa ser convertida em sinal elétrico usando um detector de silício. Por motivos que se tornarão claros ao longo da discussão, dos 4 fenômenos presentes em (3.8), o único que nos interessa é o processo de SFG, no qual a (fraca) luz incidente de freqüência ω_1 interagiria com um campo elétrico

³⁴ Em virtude do tratamento clássico dado aos fenômenos não-lineares, o termo "fóton" será evitado sempre que possível, exceto na seção 3.6, que fornece uma descrição quântica a esses fenômenos.

local suficientemente intenso de freqüência ω_2 de forma a gerar luz com freqüência $(\omega_1 + \omega_2) > \omega_1^{35}$.

Talvez a pergunta mais importante nesse momento, haja vista a aplicação da teoria na construção de um detector, seja: com que *eficiência* essa conversão de frequências via SFG pode ser realizada? Caso o processo de SFG seja extremamente ineficiente, mesmo na teoria, não faria sentido nenhum prosseguir nesse estudo. Embora ainda não seja possível dar uma resposta, é natural pressupormos que essa eficiência é uma função do coeficiente $\chi^{(2)}$, já que ele é o responsável por todos os fenômenos não-lineares de segunda ordem. A seção seguinte abordará esse tópico.

3.2. Propriedades da susceptibilidade não-linear

Supondo que o meio não-linear é anisotrópico, cada componente (x, y, z) do vetor polarização não-linear pode receber contribuições de várias combinações possíveis de cada um dos três componentes do campo elétrico aplicado. Além disso, o tensor $\chi^{(2)}$ pode depender das freqüências presentes em cada sinal luminoso presente. Essas duas observações sugerem uma notação $\chi^{(2)} \equiv \chi_{iik}^{(2)}(\omega)$.

Escrevendo os campos elétricos em notação "fasorial", isto é, na forma $E_i(z,t) = \frac{1}{2} \Big[A_i e^{j(k_i z - \omega_i t)} + A_i^* e^{-j(k_i z - \omega_i t)} \Big] = \widetilde{E}_i(z) e^{-j\omega_i t} + \widetilde{E}_i^*(z) e^{+j\omega_i t}, \quad \text{é possível}$ rescrever (3.5) como:

$$\widetilde{P}_{NL,i}^{(\omega_1+\omega_2)} = 2\varepsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} (\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \widetilde{E}_j^{(\omega_1)} \widetilde{E}_k^{(\omega_2)}$$
(3.9)

onde *i* representa cada componente (x, y, z) da polarização não-linear. A partir de (3.9), é possível perceber que $\chi^{(2)}$ possui 27 componentes! Felizmente,

³⁵ O processo de SHG também provoca um aumento de freqüência, mas não seria útil pois, além do processo ser extremamente ineficiente em baixas intensidades, o número original de fótons não é conservado.

algumas simetrias reduzem o número de coeficientes para a determinação de $\widetilde{P}_{NL,i}^{(\omega_1+\omega_2)}$ a partir de $\widetilde{E}^{(\omega_1)}$ e $\widetilde{E}^{(\omega_2)}$. São elas:

i. Ausência de perdas e campos magnéticos externos. Nesse caso, é possível mostrar que $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega)$ é sempre um tensor de números reais.

ii. Permutação entre $\omega_1 e \omega_2$. A ordem em que os índices *j* e *k* são escritos em (3.9) é apenas uma convenção, de forma que eles podem ser trocados de lugar desde que continuem associados às respectivas freqüências. Isto é, $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1)$.

iii. Permutação entre campos geradores e gerados. O cristal não-linear não possui meios de "saber" a diferença entre os campos elétricos externos (aplicados) e internos (gerados). Ou seja, ele não sabe distinguir entre uma situação de SFG onde gera-se ω_3 a partir de um campo elétrico em ω_1 e outro em ω_2 e uma situação de DFG onde são aplicados campos em ω_3 e ω_1 para criar ω_2 . Isto é, $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$. Conjuntamente com a simetria (*ii*), isso significa que quaisquer índices podem ser intercambiados, desde que continuem associados às respectivas freqüências.

iv. Simetria de Kleinman. Se todas as freqüências envolvidas na interação estiverem suficientemente distantes de quaisquer freqüências de ressonância do cristal, os coeficientes $\chi_{ijk}^{(2)}$ não dependem fortemente da freqüência. Ou seja, os índices (i, k, j) podem ser permutados à vontade sem necessidade de continuarem associados às freqüências originais, já que elas são indistinguíveis para o meio.

Esse conjunto de simetrias sugere que o tensor $\chi_{ijk}^{(2)}$ é redundante, e portanto, de certa forma, ele pode ser simplificado. De acordo com as propriedades (2) e (3), um arranjo (i, j, k) é indistinguível de um arranjo (i, k, j), logo podemos substituir os índices *j* e *k* por um único índice *l* da seguinte forma:

jk	11	22	33	23,32	13,31	12,21
l	1	2	3	4	5	6

Usando a notação compacta acima, define-se o *coeficiente não-linear* d_{il} :

$$d_{il} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \tag{3.10}$$

Em representação matricial, a relação entre a polarização não-linear e os campos elétricos é, portanto, dada por:

$$\begin{bmatrix} \widetilde{P}_{x}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \\ \widetilde{P}_{y}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \\ \widetilde{P}_{z}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \end{bmatrix} = 4\varepsilon_{0} \begin{bmatrix} d_{11} d_{12} d_{13} d_{14} d_{15} d_{16} \\ d_{21} d_{22} d_{23} d_{24} d_{25} d_{26} \\ d_{31} d_{32} d_{33} d_{34} d_{35} d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{2})} \\ \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} \\ \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} + \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{y}^{(\omega_{2})} \\ \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} + \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{2})} \\ \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} + \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{2})} \\ \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{y}^{(\omega_{2})} + \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{x}^{(\omega_{2})} \end{bmatrix}$$
(3.11)

Usando agora a simetria de Kleinman, descrita na propriedade (4), podemos simplificar ainda mais a matriz d_{il} , já que todos os índices podem ser trocados. Por exemplo, temos que $\chi_{123}^{(2)} = \chi_{132}^{(2)} = \chi_{213}^{(2)} = \chi_{231}^{(2)} = \chi_{312}^{(2)} = \chi_{321}^{(2)}$, e isso se reflete na nova notação como $d_{14} = d_{25} = d_{36}$. Fazendo o mesmo com o restante dos índices, obtemos $d_{12} = d_{26}$, $d_{13} = d_{35}$, $d_{15} = d_{31}$, $d_{16} = d_{21}$, $d_{23} = d_{34}$ e $d_{24} = d_{32}$. Portanto, nos cristais com o menor nível de simetria possível (isto é, nos quais não existe nenhuma simetria espacial adicional), o número de componentes independentes da matriz de coeficientes não-lineares é 10.

3.2.1. Simetrias Espaciais

Nos cristais que serão usados ao longo dessa tese, a matriz d_{il} apresenta simetrias adicionais, provenientes da classe de simetria espacial do cristal, conforme o *Princípio de Neumann*.

De acordo com esse princípio, todo cristal possui algum tipo de ordenação entre os átomos que o constituem, de forma que uma célula pode exibir algum tipo de simetria (ou seja, a mesma disposição dos átomos é reencontrada após um espelhamento em torno de um eixo, uma rotação, etc). Em outras palavras, "Se um sistema possui um certo grupo de operações de simetria, então qualquer observável físico desse sistema também deve possuir essas operações de simetria". Burns e Glazer [29] forneceram uma formulação alternativa enfatizando que "as propriedades macroscópicas (tensoriais) de um cristal possuem pelo menos a simetria do grupo pontual do espaço de grupos".

Esse princípio pode ser intuitivamente compreendido, já que um campo elétrico presente no interior do meio não tem como diferenciar a posição original dos átomos de uma outra posição equivalente obtida por uma transformação à qual a célula é invariante. Na prática, isso significa que muitos dos componentes do tensor $\chi_{ijk}^{(2)}$ podem ser nulos ou linearmente dependentes de outros.

Por exemplo, o cristal LN (*Niobato de Lítio*) pertence à classe de simetria 3m, que só possui 8 coeficientes independentes. Supondo que ele será utilizado para gerar luz a 633 nm (luz vermelha) por meio de SFG entre dois feixes de laser polarizados na direção z a 1064 nm (laser YAG) e 1550 nm (laser semicondutor), e de acordo com as propriedades da classe de simetria 3m, a equação (3.11) pode ser reescrita como:

$$\begin{bmatrix} \widetilde{P}_{x}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \\ \widetilde{P}_{y}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \\ \widetilde{P}_{z}^{(\omega_{2}+\omega_{1})} \end{bmatrix} = 4\varepsilon_{0} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 \\ \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

$$= \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 4\varepsilon_{0} d_{33} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{1})} \widetilde{E}_{z}^{(\omega_{2})} \end{bmatrix}$$

$$(3.12)$$

Nesse caso, a luz gerada pelo processo não-linear também se encontraria polarizada na direção do eixo z. Observe que o único coeficiente não-linear atuante é o d_{33} , e por esse motivo ele é chamado de coeficiente não-linear *efetivo*. A sub-seção a seguir mostra que é sempre possível definir um coeficiente efetivo.

3.2.2. Coeficiente não-linear efetivo (d_{eff})

Para uma geometria fixa (ou seja, para direções fixas de propagação e polarização) é possível expressar a polarização não-linear responsável pelo efeito de geração de soma de freqüências através da expressão [30]:

$$\widetilde{P}(\omega_3) = \alpha \varepsilon_0 d_{eff} \widetilde{E}(\omega_1) \widetilde{E}(\omega_2)$$
(3.13)

onde $\alpha = 2$ para SHG e $\alpha = 4$ para SFG³⁶. Na maioria dos casos, d_{eff} deve ser calculado comparando-se (3.13) a (3.9); no entanto, existem formas mais simples para certas simetrias espaciais [31]. Definindo $\theta = \phi$ como os ângulos definidos entre a direção de propagação e, respectivamente, o eixo óptico (z) e o plano cristalino xz, podemos escrever para um cristal uniaxial negativo de classe 3m com interação do tipo I³⁷:

$$d_{eff} = d_{31}\sin\theta - d_{22}\cos\theta\sin3\phi \tag{3.14}$$

Para o mesmo tipo de cristal mas para interações do tipo II, obtém-se:

$$d_{eff} = d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\phi \tag{3.15}$$

No restante da tese, considere que o coeficiente não-linear efetivo de interesse pode ser facilmente encontrado utilizando-se uma expressão semelhante a (3.14-15).

³⁶ Observe que, se a expressão de SFG for utilizada fazendo-se $\omega_1 = \omega_2$, o valor encontrado é o dobro do que seria obtido pela expressão de SHG pelo simples motivo de haver duas ondas ao invés de apenas uma.

³⁷ Os tipos de interação (tipo I e tipo II) são relacionados à forma como o casamento de fase (birrefringente) é realizado e são descritos na seção 3.4

3.3. A equação de onda para meios não-lineares

Na seção anterior, vimos que é possível determinar a polarização não-linear conhecendo-se as propriedades do meio não-linar (isto é, os coeficientes d_{il}) e os campos elétricos aplicados. Resta agora determinar o campo elétrico irradiado a partir da polarização não-linear conhecida.

Iniciamos com as equações de Maxwell que descrevem as "fontes de circulação" [28]:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \tag{3.16}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}$$
(3.17)

onde J é o vetor densidade de corrente e D o deslocamento elétrico³⁸. Diferenciando ambas com relação ao tempo e usando as relações constitutivas $J = \sigma E$, $B = \mu H e D = \varepsilon_0 (1 + \chi) E + P_{NL}$, obtemos³⁹:

$$\nabla \times \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = -\mu \frac{\partial^2 \mathbf{H}}{\partial t^2}$$
(3.18)

$$\nabla \times \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} = \varepsilon_0 (1 + \chi) \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{\mathbf{NL}}}{\partial t^2}$$
(3.19)

De forma semelhante, tomando o rotacional de (3.16), obtemos:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\mu \nabla \times \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}$$
(3.20)

³⁸ As duas outras equações de Maxwell, que descrevem as "fontes de fluxo", são dadas por $\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \ \mathbf{e} \ \nabla \cdot \mathbf{E} = 0$.

³⁹ As equações (3.18-19) não levam em consideração o caráter tensorial de σ e ε , de modo a evitar notações desnecessariamente carregadas, mas este fato não altera os resultados finais.

Substituindo a expressão (3.19) em (3.20) e usando a identidade vetorial $\nabla \times \nabla \times \mathbf{A} = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{A}) - \nabla^2 \mathbf{A}$, chega-se à expressão:

$$\nabla^{2}\mathbf{E} = \mu\varepsilon_{0}(1+\chi)\frac{\partial^{2}\mathbf{E}}{\partial t^{2}} + \mu\sigma\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} + \mu\frac{\partial^{2}\mathbf{P}_{\mathbf{NL}}}{\partial t^{2}}$$
(3.21)

A expressão (3.21) é conhecida como *equação de onda não-linear*. Se considerarmos uma onda plana que se propaga na direção x e polarizada na direção z, chegamos a um resultado ainda mais simples:

$$\frac{\partial^2 E_3(x,t)}{\partial x^2} - \mu_0 \sigma \frac{\partial E_3(x,t)}{\partial t} - \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_3^{(1)} \frac{\partial^2 E_3(x,t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL,3}(x,t)}{\partial t^2}$$
(3.22)

Observe que, no caso de um meio *linear*, o lado direito de (3.22) é nulo e uma equação de onda homogênea é obtida. Nesse caso, a solução é dada por:

$$E_3(x,t) = A_3 e^{-\alpha x} \cos(kx - \omega t + \phi)$$
(3.23)

onde α é um termo que representa as perdas no meio e k é a constante de propagação, dados pelas expressões:

$$k^2 - \alpha^2 = \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 n_3^2 \tag{3.24}$$

$$\alpha = \frac{\omega\mu_0\sigma_z}{2k} \tag{3.25}$$

onde $n_3 = (\varepsilon_3)^{1/2}$ é o índice de refração do material na direção da polarização do campo (no caso, z). Note que, se as perdas forem desprezíveis, a familiar expressão $k = \omega n_3/c$ é encontrada, onde $c = (\mu_0 \varepsilon_0)^{-1/2}$ é a velocidade da luz no vácuo.

Para o caso de interesse, no entanto, $P_{NL}(x,t)$ não é nulo e o termo ao lado direito de (3.22) atua como uma "fonte" que força a geração de $E_3(x,t)$. Para

solucionar esse problema, o método proposto em [30] e [32] será seguido nas subseções a seguir.

3.3.1. As equações de onda acopladas para SFG

Embora a equação de onda (3.21) descreva de forma genérica todos os efeitos não-lineares, é preciso resolvê-la para cada caso específico. No caso particular dessa tese, estamos interessados em obter uma expressão para a onda gerada pelo processo de soma de freqüências. Por motivos de simplicidade, vamos supor que o processo ocorre em um meio não-linear sem perdas, e que as ondas interagentes incidem perpendicularmente no meio.

A idéia é relativamente simples: se o termo que representa a fonte de efeitos não-lineares não for muito grande, a solução não será muito diferente da solução homogênea (3.23) – a principal diferença está no fato de que a amplitude do campo elétrico A_3 se tornará uma função de x. Desta forma, escrevendo a polarização não-linear como função das amplitudes dos campos aplicados, obtemos de (3.13):

$$\widetilde{P}_{NL,3} = 4\varepsilon_0 d_{eff} \widetilde{E}_1 \widetilde{E}_2 = \varepsilon_0 d_{eff} A_1 A_2 e^{j(k_1 + k_2)x}$$
(3.26)

Substituindo (3.26) em (3.22) e desprezando o termo em σ (referente às perdas no meio), obtemos:

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial^2 A_3}{\partial x^2} + 2jk_3 \frac{\partial A_3}{\partial x} - k_3^2 A_3 + \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_3^{(1)} \omega_3^2 A_3 \end{bmatrix} e^{j(k_3 x - \omega_3 t)} + c.c =$$

$$= -2\mu_0 \omega_3^2 \varepsilon_0 d_{eff} A_1 A_2 e^{j[(k_1 + k_2)x - \omega_3 t]} + c.c \qquad (3.27)$$

onde "c.c." representa o complexo conjugado do termo imediatamente à esquerda. Observe que, como $k_3^2 = \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_3^{(1)} \omega_3^2$, o 3° e 4° termos do lado esquerdo da expressão se cancelam. Cancelando o termo $\exp(-j\omega_3 t)$ de ambos os lados, a equação pode ser reescrita como:

$$\frac{\partial^2 A_3}{\partial x^2} + 2jk_3 \frac{\partial A_3}{\partial x} = -2\mu_0 \varepsilon_0 d_{eff} \omega_3^2 A_1 A_2 e^{j(k_1 + k_2 - k_3)x}$$
(3.28)

Podemos agora escrever os termos do lado esquerdo da equação da forma $\frac{1}{\lambda_3} \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda_3 \frac{\partial A_3}{\partial x} + 4\pi j A_3 \right)$. Observe que $\left| \lambda_3 \frac{\partial A_3}{\partial x} \right|$ corresponde à variação de amplitude em uma distância de um comprimento de onda, o que podemos considerar desprezível com relação ao segundo termo. Essa aproximação é chamada de "slowly-varying envelope"⁴⁰. Considerando que ela é válida, obtemos como resultado:

$$\frac{\partial A_3}{\partial x} = \frac{j\mu_0 \varepsilon_0 d_{eff} \omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 e^{j(k_1 + k_2 - k_3)x} = \frac{jk_3}{n_3^2} d_{eff} A_1 A_2 e^{j\Delta kx}$$
(3.29)

onde $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ é chamado de "descasamento de vetor de onda" (*wavevector mismatch*) ou "descasamento de momento" (*momentum mismatch*). A expressão (3.29) é chamada de *equação acoplada em amplitude*, pois ela mostra como a amplitude da onda na freqüência ω_3 depende das amplitudes das ondas em ω_1 e ω_2 . No caso geral, as amplitudes de todas as três ondas envolvidas podem variar com a posição, de forma que os passos (3.26-29) podem ser repetidos para as outras freqüências. O conjunto final de equações acopladas é, desta forma, dado por⁴¹:

$$\frac{\partial A_1}{\partial x} = \frac{jk_1}{n_1^2} d_{eff} A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx}$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial x} = \frac{jk_2}{n_2^2} d_{eff} A_1^* A_3 e^{-j\Delta kx}$$

$$\frac{\partial A_3}{\partial x} = \frac{jk_3}{n_3^2} d_{eff} A_1 A_2 e^{j\Delta kx}$$
(3.30)

⁴⁰ Também chamada de "*slowly-varying amplitude approximation*" por alguns autores.

⁴¹ Em algumas referências, o lado direito das equações acopladas possui um sinal negativo. Isso é devido à diferença na convenção adotada para a expressão do campo elétrico na forma fasorial, i.e., $\exp(jkx-j\omega t)$ ou $\exp(j\omega t-jkx)$.

Observe que está implícito em (3.30) que o meio não possui perdas. No caso mais geral, o coeficiente não-linear pode diferir em cada uma das equações.

3.3.2. As Relações de Manley-Rowe

Embora o conjunto de equações acopladas (3.30) indique claramente que existe uma dependência na variação espacial das amplitudes das três ondas de freqüências ω_1 , ω_2 e ω_3 , seu significado físico não é evidente. Para obtermos uma interpretação dos resultados, é muito mais conveniente, na área de óptica, trabalhar-se com a potência ou (principalmente no caso de ondas planas) a intensidade das ondas. Assim, temos:

$$I_i = \frac{A_i A_i^*}{2\eta_i} \tag{3.31}$$

onde $\eta_i = \sqrt{\mu/\varepsilon_i}$ é a impedância do meio relativa à freqüência ω_i . Desta forma, a variação da intensidade com a distância é dada por:

$$\frac{\partial I_i}{\partial x} = \frac{1}{2\eta_i} \left(A_i^* \frac{\partial A_i}{\partial x} + A_i \frac{\partial A_i^*}{\partial x} \right)$$
(3.32)

Aplicando-se (3.32) à primeira equação de (3.30), obtemos:

$$\frac{\partial I_1}{\partial x} = \frac{1}{2\eta_i} \left(\frac{jk_1}{n_1^2} d_{eff} A_1^* A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx} + c.c \right)$$

= $-\varepsilon_0 d_{eff} \omega_1 \operatorname{Im} \left(A_1^* A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx} \right)$ (3.33)

Fazendo o mesmo para as duas equações restantes:

$$\frac{\partial I_2}{\partial x} = -\varepsilon_0 d_{eff} \omega_2 \operatorname{Im} \left(A_1^* A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx} \right)$$
(3.34)

$$\frac{\partial I_3}{\partial x} = +\varepsilon_0 d_{eff} \omega_2 \operatorname{Im} \left(A_1^* A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx} \right)$$
(3.35)

Definindo agora a intensidade total *I* da forma $I = I_1 + I_2 + I_3$, observe que:

$$\frac{\partial I}{\partial x} = \frac{\partial I_1}{\partial x} + \frac{\partial I_2}{\partial x} + \frac{\partial I_3}{\partial x}$$

= $-\varepsilon_0 d_{eff} (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \operatorname{Im} \left(A_1^* A_2^* A_3 e^{-j\Delta kx} \right) = 0$ (3.36)

Ou seja, o fluxo total de potência se conserva. Além disso, é evidente das relações (3.33-35) que:

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{I_1}{\omega_1} \right) = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{I_2}{\omega_2} \right) = -\frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{I_3}{\omega_3} \right)$$
(3.37)

Essas igualdades são conhecidas como *Relações de Manley-Rowe* [30]. Lembrando que a energia de um fóton pode ser escrita como $E_i = \hbar \omega_i$, a expressão (3.37) nos indica que a taxa de criação de fótons (por unidade de área por unidade de tempo) na freqüência ω_1 é igual à taxa de criação de fótons na freqüência ω_2 e igual à taxa de destruição de fótons em ω_3 . Em outras palavras, as relações de Manley-Rowe nos indicam que, cada vez que um fóton em ω_3 é criado, um fóton em ω_1 e outro em ω_2 devem ser destruídos. Voltaremos a discutir esse assunto na seção 3.6.

3.3.3. Uma primeira expressão para a onda gerada

Já podemos agora obter uma expressão para a onda gerada na freqüência $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. As relações de Manley-Rowe deixam claro que o princípio de conservação de energia é satisfeito pelas equações acopladas (3.30). No entanto, como primeira aproximação, vamos considerar que as ondas incidentes nas freqüências ω_1 e ω_2 não sofrem alteração em suas amplitudes ao se propagarem através do meio não-linear, isto é:

$$\frac{\partial A_1}{\partial x} = \frac{\partial A_2}{\partial x} = 0 \tag{3.38}$$

Ou seja, estamos deliberadamente violando a conservação de energia. No entanto, se a interação não-linear for suficientemente fraca, podemos considerar que $\partial I_3/\partial x \approx 0$ de forma que (3.36) ainda é aproximadamente satisfeita. Nesse caso, obtemos por integração de x = 0 a x = L, onde L é o comprimento do cristal não-linear, da terceira equação (3.30):

$$A_{3}(L) = \frac{jk_{3}}{n_{3}^{2}} d_{eff} A_{1} A_{2} \int_{0}^{L} e^{j\Delta kx} dx = \frac{jk_{3}}{n_{3}^{2}} d_{eff} A_{1} A_{2} \left(\frac{e^{j\Delta kL} - 1}{j\Delta k}\right)$$
(3.39)

O termo entre parênteses no fim de (3.39) pode ser alternativamente escrito como:

$$\left(\frac{e^{j\Delta kL}-1}{j\Delta k}\right) = \frac{L}{2}e^{j\Delta kL/2} \left(\frac{e^{j\Delta kL/2}-e^{-j\Delta kL/2}}{j\Delta kL/2}\right) = Le^{j\Delta kL/2}\operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)$$
(3.40)

onde $\operatorname{sinc}(x) = \sin(x)/x$. Portanto,

$$A_{3}(L) = \frac{jk_{3}}{n_{3}^{2}} d_{eff} A_{1} A_{2} L e^{j\Delta kL/2} \operatorname{sinc}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)$$
(3.41)

Podemos agora calcular a intensidade da onda gerada usando (3.31):

$$I_{3}(L) = \frac{k_{3}^{2} d_{eff}^{2} |A_{1}|^{2} |A_{2}|^{2} L^{2}}{2\eta_{3} n_{3}^{4}} \operatorname{sinc}^{2} \left(\frac{\Delta kL}{2}\right)$$
(3.42)

Expressando as amplitudes das ondas em ω_1 e ω_2 em função de suas intensidades, também usando (3.31), chega-se ao resultado final:

$$I_{3} = \frac{8\pi^{2}d_{eff}^{2}L^{2}}{\lambda_{3}^{2}n_{1}n_{2}n_{3}\varepsilon_{0}c}I_{1}I_{2}\operatorname{sinc}^{2}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right)$$
(3.43)

onde λ_3 é o comprimento de onda no vácuo do sinal gerado. Observe que, para o caso especial $\Delta k = 0$, a intensidade de saída é máxima. Lembrando que definimos $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$, essa condição implica na ausência de descasamento dos vetores de onda. Fisicamente, isso significa que a onda gerada consegue manter uma relação de fase constante com a polarização não-linear e extrair o máximo de energia das ondas incidentes. Essa condição, chamada de *casamento de fase*, será discutida em detalhes na seção 3.4. Não é difícil perceber o motivo pelo qual ela é extremamente importante: a figura 9 mostra um gráfico da função

 $\operatorname{sinc}^{2}\left(\frac{\Delta kL}{2}\right).$



Figura 9. Função $sinc^{2}(x) = sen^{2}(x)/x^{2}$

Observe pelo gráfico que, se $|\Delta kL/2| > 2$, a intensidade fica abaixo de 10% do valor máximo. Supondo que um cristal de comprimento L = 10 mm é utilizado, essa situação corresponde a um descasamento de fase $\Delta k = 4 \times 10^{-5}$ nm⁻¹. Não parece muito, mas no exemplo fornecido na seção 3.2

com um cristal de niobato de lítio, mas uma variação de 0.4% no índice de refração n_3 já seria capaz de produzir esse efeito!!

Embora não seja muito realista, pois partimos do pressuposto de que as ondas que interagem são planas, a expressão (3.43) mostra a dependência da intensidade do sinal de soma de freqüências com o coeficiente não-linear, com o comprimento do cristal e com o comprimento de onda. A seção a seguir mostra uma aproximação bem mais realista, e que leva em conta a variação espacial do sinal cuja freqüência desejamos converter.

3.3.4. O efeito de depleção do sinal de entrada

Embora a solução genérica ao conjunto de equações acopladas (3.30) não pertença ao escopo dessa tese⁴², uma excelente aproximação pode ser obtida para o caso em que um dos sinais de entrada (ω_1) seja muito mais intenso que o outro (ω_2). Essa situação é geralmente chamada de *upconversion*, pois o sinal portador da informação sofre um aumento de freqüência ao interagir com um forte feixe de bombeio no interior do meio não-linear, o qual é considerado constante ao longo do comprimento de interação. Dado que a aplicação principal que temos em vista é a conversão em freqüência de fótons isolados, a idéia de fazer a aproximação é perfeitamente razoável – enquanto o sinal em ω_1 possui alguns femtowatts, o bombeio em ω_2 possui alguns watts de potência – 15 ordens de grandeza de diferença entre as intensidades!!

O problema com a aproximação anterior, encontrada na expressão (3.43), é que ela não leva em conta a depleção ("esvaziamento") do sinal de entrada em ω_1 . De fato, quando a eficiência de conversão aumenta, significa que muitos fótons em ω_1 começam a desaparecer, e a aproximação $\partial I_1 / \partial x \approx 0$ não é mais válida. Dessa forma, duas equações passam a ser relevantes:

⁴² De fato, as equações (3.30) podem ser solucionadas com exatidão, por meio das funções elípticas de Jacobi. Detalhes podem ser encontrados em [33].

$$\frac{\partial A_1}{\partial x} = K_1 A_3 e^{-j\Delta kx}$$

$$\frac{\partial A_3}{\partial x} = K_3 A_1 e^{+j\Delta kx}$$
(3.44)

onde
$$K_1 = \frac{jk_1d_{eff}}{n_1^2} A_2^*$$
 e $K_3 = \frac{jk_3d_{eff}}{n_3^2} A_2$. Observe que A_2 é constante.

A solução para as equações (3.44) é muito mais simples que a solução do caso geral (3.30). Na verdade, se considerarmos que há casamento de fase perfeito ($\Delta k = 0$), as equações se reduzem a um sistema de equações diferenciais homogêneas de primeira ordem. Derivando a primeira equação de (3.44) e substituindo a segunda equação, obtemos:

$$\frac{d^2 A_1}{dx^2} = K_1 K_3 A_1 = -\kappa^2 A_1 \tag{3.45}$$

Cuja solução é conhecida e dada por $A_1(x) = B\cos(\kappa x) + C\sin(\kappa x)$. Utilizando a primeira equação de (3.44), obtemos para a onda gerada:

$$A_3(x) = -\frac{B\kappa}{K_1}\sin(\kappa x) + \frac{C\kappa}{K_1}\cos(\kappa x)$$
(3.46)

Das condições de contorno do problema, temos que $A_3(0) = 0$ (ausência de sinal convertido na entrada do cristal) e que $A_1(0)$ é conhecido e diferente de zero. A primeira condição implica que C = 0; portanto, temos:

$$A_{\rm l}(x) = A_{\rm l}(0)\cos(\kappa x) \tag{3.47}$$

$$A_3(x) = -\frac{\kappa}{K_1} A_1(0) \sin(\kappa x)$$
(3.48)

A intensidade da onda gerada $I_3(L)$ é, portanto, dada por:

$$I_{3}(L) = \frac{|A_{3}(L)|^{2}}{2\eta_{3}} = \frac{1}{2\eta_{3}} \cdot \left| \frac{K_{3}}{K_{1}} \right| A_{1}(0)|^{2} \sin^{2}(\kappa L)$$
(3.49)

onde $\left|\frac{K_3}{K_1}\right| = \frac{n_1^2 k_3}{n_3^2 k_1}$ e $\kappa = \frac{k_1 k_3 d_{eff}^2}{n_1^2 n_3^2} |A_2|^2$. Fazendo algumas manipulações

algébricas, chega-se ao resultado final:

$$I_3(L) = \frac{\lambda_1}{\lambda_3} I_1(0) \sin^2\left(\frac{\pi}{2} \frac{L}{L_{\text{max}}}\right)$$
(3.50)

onde

$$L_{\max} = \frac{\pi n_1 n_3}{2\sqrt{2k_1 k_3 d_{eff}^2 \eta_2 I_2(0)}}$$
(3.51)

é o comprimento do cristal que maximiza a intensidade I_3 . Observe que, fazendo-se $I_2(0)$ arbitrariamente pequeno, o argumento do seno em (3.39) tornase também muito pequeno; fazendo a aproximação sin $x \cong x$ para esse caso, obtemos:

$$I_{3}(L) \approx \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{3}} I_{1}(0) \left(\frac{\pi}{2} \frac{L}{L_{\text{max}}}\right)^{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{3}} I_{1}(0) L^{2} \cdot \frac{2k_{1}k_{2}d_{eff}^{2} \eta_{2}I_{2}(0)}{n_{1}^{2}n_{3}^{2}}$$
$$= 2d_{eff}^{2} \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{3}} \frac{2\pi n_{1}}{\lambda_{1}} \frac{2\pi n_{3}}{\lambda_{3}} \frac{1}{n_{1}^{2}n_{3}^{2}} \frac{1}{\varepsilon_{0}cn_{2}} I_{1}(0)I_{2}(0)$$
$$= \frac{8\pi^{2}d_{eff}^{2} L^{2}}{\lambda_{3}^{2}n_{1}n_{2}n_{3}\varepsilon_{0}c} I_{1}(0)I_{2}(0)$$
(3.52)

que é exatamente a expressão (3.43) quando não há descasamento de fase. Isto é, chegamos à conclusão que a expressão (3.43) é uma *boa aproximação para baixas eficiências de conversão*⁴³.

⁴³ No caso mais geral, no qual considera-se descasamento de fase, chega-se à mesma conclusão.

A figura 10 mostra, em um mesmo gráfico, a variação das intensidades das ondas $I_3(x)$ e $I_1(x)$. Observe que, a partir de um certo comprimento de interação, que corresponde a L_{max} , a intensidade da onda gerada *diminui*. No ponto de máximo, $I_1(L_{max}) = 0$, sugerindo que todo o sinal está sendo convertido. Na aproximação utilizada, não há oscilações em $I_2(x)$; no entanto, mesmo na prática, a intensidade é tão grande (comparada às demais) que as eventuais oscilações poderiam ser desprezadas.



Figura 10. Variação da intensidade da onda de soma de freqüências (linha pontilhada) e do sinal de entrada (linha cheia) em função do comprimento do cristal não-linear.

Devido ao fato das eficiências de conversão envolvidas nesta tese serem pequenas – inferiores a 10% – serão usadas aproximações, semelhantes a (3.43), nas quais o sinal de soma de freqüência pode *aparentemente* assumir valores arbitrariamente grandes. É preciso, portanto, ter em mente que são apenas aproximações, válidas para baixas eficiências. A seção 3.5 encarregar-se-á de chegar a uma expressão mais realista, na qual os sinais que interagem no cristal não-linear não são ondas planas, mas que, assim como (3.43), é uma aproximação que não leva em conta os efeitos de "esvaziamento".

Antes disso, no entanto, ainda é preciso discutir um ponto importante que foi "deixado para depois" durante a derivação de (3.38), e que é um dos assuntos mais importantes deste capítulo.

3.4. Casamento de fase

Como fazer $\Delta k \approx 0$ na expressão (3.43)? Essa pergunta parece boba mas já devem ter sido publicadas milhares de páginas sobre esse assunto, que é conhecido como o *problema do casamento de fase*. Mas o que é o casamento de fase⁴⁴ de um ponto de vista físico?

A figura 11 ilustra esse problema. Imagine uma situação na qual um cristal não-linear está sendo utilizado para geração de segundo harmônico (SHG). Para facilitar nossa análise, vamos dividi-lo em fatias de comprimento infinitesimal dz, em cada uma das quais é gerada luz no segundo harmônico, e vamos escolher uma dessas fatias ao acaso, por exemplo a fatia que se encontra a uma distância z_0 do início do cristal.



Figura 11. O conceito de casamento de fase.

⁴⁴ O termo também pode ser chamado de "acordo de fase".

Seja agora a luz no segundo harmônico, de freqüência ω_3 , gerada em z = 0. Quando essa contribuição chegar a $z = z_0$, ela terá adquirido uma fase, devido à propagação, dada por $\phi_3 = k_3 z_0$. No entanto, a luz gerada em $z = z_0$ possui uma fase diferente, já que a fundamental, de freqüência ω_1 , terá adquirido uma fase dada por $\phi_1 = k_1 z_0$. Ou seja, a fase do sinal de segundo harmônico é $2\phi_1$, pois $\omega_3 = 2\omega_1$.

De forma que as duas contribuições se superponham de forma a interferirem construtivamente, é preciso que $\Delta \phi = \phi_3 - 2\phi_1 = 0$. Mas isso é o mesmo que:

$$\Delta k = k_3 - 2k_1 = 0 \tag{3.53}$$

Ou seja, a condição de casamento de fase $\Delta k = 0$ é simplesmente uma condição para que cada contribuição infinitesimal do processo não-linear seja somada em fase com todas as demais. Nesse caso específico de SHG, (3.53) pode ser escrita como:

$$\left(\frac{2\pi n_3}{\lambda_3}\right) - 2\left(\frac{2\pi n_1}{\lambda_1}\right) = 0 \tag{3.54}$$

Sabendo que $\lambda_1 = 2\lambda_3$, (3.54) implica em, simplesmente, $n_3 = n_1$. Ou seja, para que haja casamento de fase, os índices de refração do cristal não linear vistos por ambas as ondas (fundamental e segundo harmônico) devem ser iguais. Isso, no entanto, não é verdade para a maioria dos cristais! Em geral, esses materiais exibem dispersão, isto é, dependência do índice de refração com a freqüência.

Como fazer, portanto, para realizar na prática a condição de casamento de fase, já que ela não ocorre "automaticamente"? As sub-seções a seguir explicam as duas soluções mais utilizadas (e que também foram utilizadas no trabalho experimental dessa tese): via birrefringência e via polarização periódica.

3.4.1. Casamento de fase via birrefringência

Sabe-se que os cristais não-lineares são, em geral, meios anisotrópicos. A primeira tentativa de realização do casamento de fase veio justamente dessa constatação e da brilhante idéia de usar a anisotropia (birrefringência) a nosso favor. A figura 12, abaixo, ilustra essa idéia para um caso de SHG usando um cristal de niobato de potássio (KN), continuando o exemplo proposto anteriormente no qual precisamos de $n_3 = n_1$.



Figura 12. Casamento de fase birrefringente. As duas ondas, fundamental e segundo harmônico, enxergam o mesmo índice de refração no cristal.

O gráfico mostra as curvas de dispersão para dois índices de refração correspondentes às duas direções principais de polarização (correspondentes aos auto-vetores da matriz de Jones do cristal), chamadas de $b e c^{45}$. Observe que, ao longo de toda a faixa cinza, é possível encontrar dois pontos, um em cada curva, que correspondem ao mesmo índice de refração. Na prática, isso sugere que a

 $^{^{45}}$ As letras *b* e *c* foram escolhidas de forma a não criar confusão entre o sistema de coordenadas espacial do cristal e o sistema de coordenadas *x-y-z* que determina a direção de propagação dos sinais. Em aplicações práticas, pode ser que os dois sistemas coincidam, mas isso não ocorre na maioria dos casos de casamento de fase por birrefringência.

fundamental seja polarizada na direção b e o segundo harmônico seja polarizado na direção c. Nesse caso, c é o eixo "rápido" e b é o eixo "lento", de forma que a diferença entre as velocidades de fase devido à birrefringência compensaria perfeitamente a diferença devido à dispersão. Ou seja,

$$n_c(\omega_3) = n_b(\omega_1) \tag{3.55}$$

Como as ondas estão se propagando ao longo de direções principais de polarização, seus estados de polarização não irão se alterar ao longo do cristal, e portanto o casamento de fase ocorrerá para todas as fatias infinitesimais dz, como mostrado anteriormente na figura 11.

Esse raciocínio pode ser facilmente estendido para SFG. Porém, como existem 3 ondas interagindo, surgem duas possibilidades de interação, que são comumente chamadas de *Tipo I* e *Tipo II*. Exemplos dos dois tipos de interação estão representados na figura 13.



Figura 13. (a) Interação do tipo I, na qual os sinais de entrada possuem a mesma polarização. (b) Interação do tipo II, na qual os sinais de entrada possuem estados de polarização ortogonais.

Na interação do tipo I, os sinais de entrada possuem a mesma polarização, enquanto na interação do tipo II os sinais de entrada encontram-se perpendicularmente polarizados (e o sinal de saída pode encontrar-se em qualquer um dos dois estados de polarização da entrada). Observe que, no caso de SHG, o casamento de fase de tipo II também pode ser realizado, bastando escolher uma polarização de entrada que seja uma superposição das duas polarizações principais da figura 7(b).

É importante perceber que os arranjos propostos acima, para funcionarem, precisam de uma condição adicional: o cristal não-linear deve ser capaz de acoplar as diferentes polarizações de forma a gerar o desejado efeito não-linear. Para isso, é preciso observar o tensor d_{il} do cristal e verificar se a componente relativa às polarizações utilizadas é não-nulo. No caso do KN, o elemento de interesse é o d_{32} , que existe no material. Algumas vezes, um mesmo cristal oferece formas diferentes para realização do casamento de fase, mas em geral estamos interessados naquela que utiliza o maior coeficiente não-linear possível.

Nesse caso específico do KN, no entanto, note também que na figura 6 só existe um valor de índice de refração para o qual a condição $\lambda_1 = 2\lambda_3$ também é satisfeita, que são os comprimentos de onda de 858 nm (fundamental) e 429 nm (2° harmônico). Ou seja, para um certo comprimento de onda, não é garantido que exista um cristal não-linear no qual existe casamento de fase birrefringente da forma apresentada acima – muito pelo contrário, é preciso ter muita sorte! Por isso, é preciso encontrar alguma forma de realizar o casamento de fase para comprimentos de onda que não aparecem imediatamente na inspeção das curvas de dispersão. As duas formas mais comuns são variar a temperatura e o ângulo de incidência do(s) feixe(s), que serão explicadas a seguir.

3.4.1 Variação da temperatura

Uma boa notícia para a engenharia de casamento de fase em cristais nãolineares é o fato dos índices de refração $n_{a,b,c}$ possuírem, cada um, um comportamento distinto com relação à temperatura. Ou seja, o valor relativo entre os índices pode mudar se esquentarmos ou resfriarmos o material. Por essa razão, é imprescindível especificar-se a temperatura de operação de um cristal.

Apesar de parecer uma vantagem, esse efeito também pode prejudicar a eficiência do processo não-linear se a temperatura não estiver sob controle. Na maioria das situações, não é necessário realizar um controle ativo, pois a maioria dos materiais exibe fraca dependência com a temperatura; mas em alguns casos específicos, como nas conversões de freqüência intra-cavidade, a presença de

lasers de bombeio extremamente potentes pode causar um aumento indesejado da temperatura. Esse assunto será melhor discutido no capítulo 5.

3.4.1 Variação do ângulo

Muitas vezes, simplesmente mudar a temperatura não resolve o problema, seja porque realmente não há nenhuma temperatura que satisfaça a condição de casamento de fase, seja porque a temperatura não é tecnicamente viável (por exemplo, resfriar um cristal a 50 K).

A figura 14 ilustra essa idéia para SFG em um caso onde a interação é do tipo I. Suponha que deseja-se realizar o casamento de fase entre duas ondas de freqüências ω_1 e ω_2 , ambas polarizadas na direção *z* (que coincide com o eixo cristalográfico *c*) para gerar uma onda na freqüência $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ polarizada no plano *xy*, numa direção que forma um ângulo θ com o eixo *a*.



Figura 14. Casamento de fase por ângulo

A análise segue da seguinte forma: para qualquer valor do ângulo θ , os índices de refração correspondentes às ondas $\omega_1 \in \omega_2$ serão sempre os mesmos, isto é, $n_c(\omega_{1,2})$. Por possuírem índices independentes da direção de propagação, essas ondas são comumente chamadas na literatura de óptica não-linear de *ondas ordinárias*. No entanto, a onda ω_3 , que é polarizada no plano *xy*, terá diferentes amplitudes de campo elétrico nas direções cristalográficas a e b, dependendo de θ . Devido a essa dependência, essa onda é chamada de *extraordinária*⁴⁶.

Por exemplo, se a direção de propagação coincidir com o eixo *a* (ou seja, se $\theta = 0$), o campo elétrico de ω_3 se encontrará polarizado na direção do eixo *b*, e portanto o índice de refração correspondente é n_b ; analogamente, se $\theta = 90^\circ$, o índice de refração efetivo é n_a . Se o ângulo θ assumir um valor intermediário, o valor do índice de refração se encontrará em algum ponto entre n_a e n_b . Para calculá-lo, vamos utilizar um argumento geométrico extremamente simples⁴⁷. Podemos escrever o módulo da velocidade de fase da onda extraordinária como $c = \sqrt{c_a^2 + c_b^2}$, onde as componentes $c_{a,b}$ representam a velocidade na direção de cada eixo cristalino. Assim, temos que:

$$c = \sqrt{\left(\frac{c_0 \cos\theta}{n_b}\right)^2 + \left(\frac{c_0 \sin\theta}{n_a}\right)^2} = c_0 \sqrt{\left(\frac{\cos\theta}{n_b}\right)^2 + \left(\frac{\sin\theta}{n_a}\right)^2}$$
(3.56)

onde c_0 é a velocidade da luz no vácuo. Definindo-se $n_{\theta} = c_0/c$, obtemos:

$$n_{\theta} = \frac{1}{\sqrt{\frac{\sin^2 \theta}{n_a^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_b^2}}}$$
(3.57)

Essa expressão confirma que todos os valores de índice de refração intermediários entre n_a e n_b podem ser obtidos com uma escolha adequada do ângulo θ .

⁴⁶ A nomenclatura "ordinária" e "extraordinária", embora tenha surgido para cristais uniaxiais, pode ser estendida para aplicar-se a cristais biaxiais utilizando-se a definição acima. Para maiores informações sobre propagação de ondas eletromagnéticas em meios cristalinos, consulte, por exemplo, [34].

⁴⁷ A demonstração a seguir tem o mero objetivo de fornecer um ponto de vista intuitivo ao problema. Para uma dedução mais formal e completa, ver [34] ou [35].

Apesar da simplicidade dessa solução, é sempre preferível realizar o casamento de fase *sem* utilizar ângulos oblíquos, se possível. A razão para isso é a existência do conhecido fenômeno de *walk-off* do vetor de Poynting: se uma onda se propaga numa direção diferente de uma direção cristalográfica principal, ela sofre um desvio dentro do cristal. Como será mostrado na seção 3.5, esse efeito pode causar distorção do sinal de soma de freqüências, e portanto deve ser evitado. Desta forma, é preferível restringir a polarização do maior número possível de ondas a eixos principais, isto é, realizar o maior número possível de ondas ordinárias.

3.4.2. Quasi-Casamento de Fase

Por definição, o casamento de fase via birrefringência exige que haja pelo menos uma onda com a polarização ortogonal às demais. Se inspecionarmos os tensores d_{il} , no entanto, vemos que as componentes de maior valor – ou seja, que correspondem à maior não-linearidade – são aquelas que acoplam modos de mesma polarização. Isso é, de certa forma, intuitivo – parece ser muito mais "fácil" para um material acoplar duas ondas nas quais o campo elétrico oscila na mesma direção. No casamento de fase via birrefringência, esses termos do tensor d_{il} se encontram indisponíveis.

Além disso, existe uma outra desvantagem no casamento de fase birrefingente: se não existir casamento *não-crítico*, isto é, se não for possível restringir todas as ondas a eixos cristalográficos, o efeito de *walk-off* pode distorcer o sinal resultante.

Existe uma forma de resolver os dois problemas acima ao mesmo tempo, e essa forma é chamada de *quasi-casamento de fase* (QPM, *Quasi Phase Matching*). Trata-se de uma idéia muito engenhosa, e que pode ser entendida observando-se a integral da equação (3.39), que pode ser reescrita da forma [36]:

$$A_3(L) \propto \int_0^L e^{j\Delta kx} dx \tag{3.58}$$

onde a integral pode ser interpretada como uma superposição de ondas geradas em fatias infinitesimais do cristal, como foi assumido anteriormente. Observe, no entanto, que os termos $e^{j\Delta kx}$ são números complexos de módulo 1 e direção variável; discretizando a integral para fins de visualização, teríamos:

$$\int e^{j\Delta kx} dx \cong \sum_{i=1}^{N} e^{j\Delta k(i-1)\delta x} \delta x$$
(3.59)

onde $L = N\delta x$. Se $\Delta k = 0$, todas as parcelas da soma são colineares e (3.59) obtém o maior valor possível, como mostra a figura 15(a). Se $\Delta k \neq 0$, cada fasor forma um pequeno ângulo com seu antecessor, de forma que a situação da figura 15(b) é encontrada.



Figura 15. (a) Fasores em fase ($\Delta k = 0$); (b) Soma de fasores com $\Delta k \neq 0$ para $x = I_c$; (c) Idem para $x = 2I_c$

Observe que, após um certo número de fasores na soma (3.59), acumular-seá uma diferença de fase π entre o atual e o primeiro fasor. A resultante da integral, nesse momento, atinge seu maior valor possível, e o comprimento do cristal correspondente a essa fase é normalmente chamado de *comprimento de coerência* e representado por $l_c = \pi/\Delta k$. Se continuarmos adicionando fasores da mesma forma, chega um momento no qual a fase acumulada é 2π e a resultante é nula. Isso ocorre para $x = 2l_c$ e está ilustrado na figura 15(c). A idéia do quasi-casamento de fase é a seguinte: se fosse possível introduzir uma fase π exatamente nas distâncias múltiplas do comprimento de coerência, a resultante após $2l_c$ não mais será nula! Isso pode ser realizado na prática através da técnica de "polarização periódica", na qual um eletrodo periódico é aplicado ao cristal em seu processo de fabricação de forma que, a cada espaçamento l_c , o sinal do coeficiente não-linear d_{il} é invertido, como mostra a figura 16(a). Pela figura 16(b), é possível ver que a razão entre o coeficiente assim obtido e o coeficiente não-linear efetivo é dado pela razão entre cada semiperímetro e cada diâmetro dos semi-círculos, ou seja,

$$\frac{d_{QPM}}{d_{eff}} = \frac{2D}{\pi D} = \frac{2}{\pi}$$
(3.60)

Na prática, d_{QPM} é ainda menor pois a polarização periódica pode possuir imperfeições. Por isso, o valor em (3.60) é visto como o "melhor caso".



Figura 16. Quasi-casamento de fase. (a) Estrutura periodicamente polarizada; (b) Diagrama de fasores, no qual há inversão de fase a cada semi-período.

A seção seguinte utiliza alguns conceitos do casamento de fase para elaborar uma expressão mais realista para a equação de onda, utilizando feixes gaussianos ao invés de ondas planas.

3.5. A Teoria de Boyd-Kleinman para Feixes Gaussianos

De um ponto de vista puramente prático, ondas planas não existem (de fato, para existirem, precisariam se estender por toda infinitude do espaço e tempo!). Ao invés de ondas planas, os feixes que serão utilizados na prática provêm de lasers e, portanto, podem ser aproximados como feixes gaussianos⁴⁸, que necessitam de uma abordagem diferente. Para se convencer de que as expressões (3.43) e (3.50) não são válidas para ondas espacialmente confinadas, observe que, de acordo com qualquer uma dessas expressões, a intensidade I_3 aumenta conforme I_1 e I_2 aumentam. No entanto, para feixes altamente colimados com uma certa potência finita, as intensidades só são limitadas pela difração, e isso sugeriria que deveríamos focalizar o máximo possível os feixes no interior do cristal, conforme mostra a figura 17(a).



Figura 17. (a) Focalização forte; (b) Focalização fraca

Observe que, quanto maior a focalização, mais rapidamente os feixes irão difratar, o que diminui o comprimento efetivo do cristal, isto é, a distância na qual ocorre interação. Porém, ainda de acordo com (3.43) ou (3.50), I_3 aumenta com o aumento do comprimento de interação L, o que aparentemente sugere o

⁴⁸ Isso nem sempre é verdade, mas a aproximação por feixes gaussianos é, de qualquer forma, muito mais próxima da realidade do que o tratamento fornecido na seção anterior para ondas planas.

contrário: se os feixes forem fracamente focalizados, poderão interagir ao longo de uma distância maior, conforme a figura 17(b).

Aparentemente, a solução para o problema se encontra em algum lugar entre os dois extremos, mas não temos condições de saber exatamente onde. Ou seja, apesar de nos fornecer a intuição correta, as equações para ondas planas não são capazes de nos dizer como fazer para maximizar a potência do sinal de soma de freqüência. Boyd e Kleinman atacaram esse problema em 1968 para o problema de geração de segundo harmônico, que pôde ser facilmente estendido para o caso mais geral de soma de freqüências [33,34]. Os dois casos serão separadamente analisados. Ambos seguem a mesma linha de raciocínio de [36].

3.5.1. Análise para SHG

O motivo de iniciarmos com SHG é muito simples: só existe um feixe focalizado no cristal não-linear. Assume-se que ele é gaussiano, isto é, possui um campo elétrico dado por:

$$E_1(r, z, t) = E_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} e^{-\alpha_1 z} e^{-r^2/\omega^2(z)} \cos\left[\omega_1 t - k_1 z + \Psi(r, z) + \Phi(z)\right]$$
(3.61)

onde α_1 é o coeficiente de atenuação e os demais termos tomam suas definições usuais⁴⁹. A abordagem de Boyd e Kleinman para o problema não é muito difícil de ser entendida, e pode ser visualizada na figura 18. A idéia é dividir o cristal em fatias infinitesimais de espessura *dz*, nas quais a fundamental interage com o cristal e gera luz no segundo harmônico. Cada contribuição de cada fatia se propaga até um plano de observação, no qual fazemos a superposição entre todas elas.

⁴⁹ Ver o Apêndice B para maiores informações sobre feixes gaussianos.



Figura 18. Análise de Boyd-Kleinman para feixes gaussianos. Figura obtida de [36].

Observe que, na figura 18, a luz no segundo harmônico não se propaga na direção do eixo *z*, mas na verdade em uma direção que forma um ângulo ρ com o mesmo. Esse ângulo é o *walk-off birefringente* que foi introduzido na seção 3.4. Ele surge do fato que essa análise assume um casamento de fase birrefringente do tipo I, no qual as ondas fundamental e segundo harmônico são polarizadas em direções ortogonais entre si⁵⁰. Dessa forma, o vetor polarização não-linear é dado por $(3.13)^{51}$:

$$\widetilde{P}^{(\omega_3)} = 2\varepsilon_0 d_{eff} \left[\widetilde{E}^{(\omega_1)} \right]^2 \tag{3.62}$$

A diferença entre (3.62) e a aplicação anterior de (3.13), isto é, a expressão (3.26), está simplesmente no fato do campo elétrico ser descrito, respectivamente, por uma onda gaussiana e por uma onda plana. Enquanto a representação matemática de $\widetilde{E}^{(\omega_1)}$ é simples para ondas planas, ele assume nesse momento a (complicada) forma dada por:

⁵⁰ A análise de Boyd-Kleinman, no entanto, aplica-se a todos os casos de casamento de fase. Em casos de casamento não-crítico, como o QPM, basta utilizar $\rho = 0$.

⁵¹ Na verdade, a equação (3.13) também foi derivada levando-se em conta uma interação do Tipo I, embora isso não tenha sido comentado de forma tão explícita.

$$\widetilde{E}_{1}^{(\omega_{1})}(r,z) = \frac{E_{0}}{2}e^{-\frac{\alpha_{1}}{2}z} \frac{1}{1+j\zeta}e^{-\frac{r^{2}}{\omega_{0}^{2}(1+j\zeta)}}e^{-jk_{1}z}$$
(3.63)

onde

$$\zeta = \frac{2(z-f)}{b} = \frac{\lambda(z-f)}{\pi n \omega_0^2}$$
(3.64)

foi definido para tornar a expressão mais compacta. Observe que esse é um feixe gaussiano cuja cintura se encontra no ponto z = f (onde a notação f sugere que uma lente será utilizada para focalizar o feixe em algum ponto do cristal).

Substituindo (3.63) em (3.62), obtemos uma expressão para $\tilde{P}^{(\omega_3)}$. Usando a equação (3.12), obtemos:

$$\frac{d\widetilde{E}_{3}}{dz} = -\frac{jk_{3}}{2n_{3}^{2}}e^{j\Delta kz}d_{eff}\frac{E_{0}^{2}}{2}e^{-\alpha_{1}z}\frac{1}{1+j\zeta}\left[\frac{1}{1+j\zeta}e^{-\frac{2r^{2}}{\omega_{0}^{2}(1+j\zeta)}}\right]$$
(3.65)

Observe que o termo entre colchetes de (3.65) descreve o formato gaussiano do pacote de energia no segundo harmônico gerado em um elemento infinitesimal dz do cristal. Queremos, neste momento, calcular a contribuição desse incremento no campo total medido por um observador no plano de observação mostrado na figura 18⁵². Devido ao *walk-off*, ocorre um deslocamento $\rho(L-z)$ na coordenada x, de modo que o pacote de onda gerado em (x, y, z) contribui na detecção em $(x', y', z') = (x + \rho(L-z), y, z)$. Desta forma, temos que:

$$\frac{d\widetilde{E}_{3}(\mathbf{r}', \mathbf{z}')}{dz} = -\frac{jk_{3}}{2n_{3}^{2}}e^{j\Delta kz}d_{eff}\frac{E_{0}^{2}}{2}e^{-\alpha_{1}z}e^{-\frac{\alpha_{3}}{2}(L-z)}\frac{1}{1+j\zeta} \times \left\{\frac{1}{1+j\zeta'}\exp\left[\frac{-2\left[x'-\rho(L-z)\right]^{2}+\left[y'\right]^{2}\right]}{\omega_{0}^{2}(1+j\zeta')}\right]\right\}$$
(3.66)

⁵² Supõe-se que o observador encontra-se em um meio de mesmo índice de refração, de modo que os efeitos de refração podem ser desprezados.

onde $\zeta' = 2(z'-f)/b$ e o termo $\exp(-\alpha_3(L-z)/2)$ foi introduzido para levar em conta a atenuação do pacote de onda ao se propagar do ponto onde é criado até o ponto de observação. Nesse momento, podemos integrar (3.66):

$$\widetilde{E}_{3}(r',z') = -\frac{jk_{3}}{2n_{3}^{2}}d_{eff} \frac{E_{0}^{2}}{2}e^{-\frac{\alpha_{3}}{2}L} \int_{0}^{L} \left\{ \frac{e^{-\alpha z}e^{j\Delta kz}}{1+j\zeta} \times \left\{ \frac{1}{1+j\zeta'} \exp\left[\frac{-2\left[x' - \rho(L-z) \right]^{2} + \left[y' \right]^{2} \right]}{\omega_{0}^{2}(1+j\zeta')} \right] \right\} \right] dz$$
(3.67)

onde $\alpha = \alpha_1 - \alpha_3/2$. Fazendo agora o ponto de observação a uma distância infinita do cristal ($z' \rightarrow \infty$), é possível mostrar que a expressão (3.67) se reduz a:

$$\widetilde{E}_{3}(r',z') = -\frac{k_{3}}{2n_{3}^{2}} d_{eff} \frac{E_{0}^{2}}{2\zeta'} e^{-\alpha_{3}L/2} e^{-2(1-j\zeta')(u^{2}+v^{2})} \int_{0}^{L} \frac{e^{-\alpha z} e^{j\Delta k z} e^{4ju\beta\zeta}}{1+j\zeta} dz \qquad (3.68)$$

onde foram definidos

$$u = \frac{x' - \rho(L - f)}{\omega_0 \zeta'}, \quad v = \frac{y'}{\omega_0 \zeta'}, \quad \beta = \frac{\rho}{\theta_0}$$
(3.69)

Definindo agora

$$\kappa = \frac{\alpha b}{2}, \ \sigma = \frac{b\Delta k}{2}, \ \sigma' = \sigma + 4\beta u, \ \xi = \frac{L}{b}, \mu = \frac{(L-2f)}{L}$$
(3.70)

e fazendo a mudança de variáveis $\zeta = \frac{2(z-f)}{b}$, a integral de (3.68) pode ser escrita como:

$$\int_{0}^{L} \frac{e^{-\alpha z} e^{j\Delta k z} e^{4j u\beta\zeta}}{1+j\zeta} dz = \frac{b}{2} e^{-\alpha f} e^{j\Delta k f} \int_{-\zeta(1-\mu)}^{\zeta(1+\mu)} \frac{e^{-\kappa \zeta} e^{j\sigma' \zeta}}{1+j\zeta} d\zeta$$
(3.71)

Substituindo em (3.68) e fazendo $I_3 = |E_3|^2 / 2\eta_3$, obtemos:

$$I_{3}(r',z') = -\frac{k_{3}^{2}}{8\eta_{3}n_{3}^{4}} d_{eff}^{2} \frac{E_{0}^{4}}{\zeta'^{2}} e^{-\alpha_{3}L} e^{-4(1-j\zeta')(u^{2}+v^{2})} b^{2} \pi^{2} e^{-2\alpha f} \left| \int_{-\zeta(1-\mu)}^{\zeta(1+\mu)} \frac{e^{-\kappa \zeta} e^{j\sigma' \zeta}}{1+j\zeta} d\zeta \right|^{2}$$

$$(3.72)$$

Para encontrarmos a potência total, integramos a intensidade sobre a área para obtermos a expressão:

$$P_{3} = \frac{1}{32\eta_{3}} \frac{k_{3}^{2}}{n_{3}^{4}} d_{eff}^{2} E_{0}^{4} b^{2} \pi \omega_{0}^{2} e^{-\alpha' L} \xi h(\sigma, \beta, \kappa, \xi, \mu)$$
(3.73)

onde $\alpha' = \alpha_1 + \alpha_3/2$ e a função $h(\sigma, \beta, \kappa, \xi, \mu)$ é chamada de *integral de recobrimento de Boyd-Kleinman* ou ainda *fator de focalização de Boyd-Kleinman*, dada por:

$$h(\sigma,\beta,\kappa,\xi,\mu) = \frac{2\pi^{3/2}}{\xi} e^{\mu\alpha L} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-4u^2} \left| \int_{-\xi(1-\mu)}^{\xi(1+\mu)} \frac{e^{-\kappa\zeta} e^{j(\sigma+4\beta u)\zeta}}{1+j\zeta} d\zeta \right|^2 du \qquad (3.74)$$

Na situação na qual a eficiência do processo é máxima, não há perdas no cristal ($\alpha = 0$) e, pela simetria do problema, podemos considerar que o feixe é focalizado no centro do cristal (f = L/2). Dessa forma, $\kappa = \mu = 0$ e só restam 3 parâmetros para analisarmos. Define-se:

$$h(\sigma, B, \xi) \equiv h(\sigma, B\xi^{-1/2}, 0, \xi, 0)$$
 (3.75)

onde $B = \rho \sqrt{Lk_1}/2 = \beta \sqrt{\xi}$ é um parâmetro constante para um dado experimento, já que os termos *L*, k_1 e ρ são fixos. Nosso objetivo é determinar o valor máximo de *h*, que deve ser encontrado variando-se ξ e σ . Destes dois, o primeiro é o mais simples de ser alterado, pois ele depende apenas do quanto focalizamos o feixe. Portanto, para cada valor de ξ , calcula-se σ para

104

maximizar *h*, cujo valor máximo escrevemos como $h_m(B,\xi) \equiv h(\sigma_m, B, \xi)$. A figura 13 mostra gráficos de $h_m(B,\xi)$ para diferentes valores de *B*.



Figura 19. Fator de focalização de Boyd-Kleinman em função do grau de focalização para diferentes valores de B. Figura obtida de [37].

Observe pela figura que, para cada valor de *B*, existe um único valor de ξ que maximiza $h_m(B,\xi)$. Chamamos esse valor de ξ_m . Fazendo algumas simplificações em (3.73) e considerando, portanto, que as perdas são desprezíveis, a *máxima potência de segundo harmônico* pode ser escrita em função das recentes definições como:

$$P_{3}^{\max} = \frac{16\pi^{2}d_{eff}^{2}L}{\varepsilon_{0}c\lambda_{1}^{3}n_{3}n_{1}}P_{1}^{2} \cdot h_{m}(B,\xi_{m})$$
(3.76)

A expressão (3.76) nos fornece alguns resultados importantes: vemos que a potência de sinal de 2° harmônico é proporcional ao comprimento do cristal nãolinear e ao quadrado do coeficiente não-linear do material. No caso especial no qual B = 0 (ausência de *walk-off*), observe pela figura 19 que $h_{mm}(0) = 1.068$ e que esse valor ocorre para $\xi_m = 2.84$, ou seja, quando o parâmetro confocal é dado por:

$$b = \frac{L}{2.84} \tag{3.77}$$

A expressão (3.77) é chamada de *condição de máxima eficiência de conversão*. Note que, em situações onde há *walk-off* (B > 0), o valor ideal de ξ é menor, assim como o valor máximo de *h*. É interessante perceber que, mesmo na melhor situação possível, $\Delta k \neq 0$, o que pode parecer estranho à primeira vista pois contraria a nossa intuição desenvolvida com ondas planas.

3.5.2. Análise para SFG

A situação se complica bem mais quando existem *duas* ondas na entrada do cristal que interagem para produzir uma terceira. É fácil perceber o motivo: a presença de dois feixes implica na existência de duas distâncias focais, dois parâmetros confocais, etc. Entretanto, muito da intuição adquirida no caso de SHG também se aplica no caso mais genérico de SFG. É possível mostrar⁵³ que a expressão para a potência máxima de sinal convertido, supondo que as perdas no cristal não-linear são desprezíveis, é dada por:

$$P_{3}^{\max} = \frac{32\pi^{2}d_{eff}^{2}L}{\varepsilon_{0}cn_{3}^{2}\lambda_{1}\lambda_{2}\lambda_{3}}P_{1}P_{2}\cdot h_{m}(k,B,\xi_{1m},\xi_{2m})$$
(3.78)

Não é difícil perceber que (3.78) é uma generalização de (3.76). A principal diferença está na definição da integral de recobrimento h_m , que agora precisa levar em conta a presença de dois feixes. Os parâmetros da função são dados por:

$$k = \frac{\lambda_1}{\lambda_3}; \quad B = \frac{\rho}{2} \left[L \frac{(k_1 + k_2)}{2} \right]^{1/2}; \quad \xi_i = \frac{L}{b_i}$$
(3.79)

⁵³ A demonstração das expressões a seguir se encontra além do escopo dessa tese. Para uma explicação detalhada sobre a interação de dois feixes gaussianos no contexto de SFG, ver a referência [38], de onde foram extraídas as figuras 20 e 21.

Mais uma vez, *B* pode ser encarada como uma constante em um dado experimento, assim como *k*. Os únicos parâmetros que podemos variar são os ξ_i , cujos valores correspondentes à máxima potência de soma de freqüências são chamados de ξ_{im} . A expressão para $h_m(k, B, \xi_{1m}, \xi_{2m})$ será omitida⁵⁴; no entanto, as figuras 20 e 21, abaixo, mostram resultados obtidos por métodos numéricos contendo todas as informações de interesse, incluindo a dependência de *B* e *k*.



Figura 20. Os valores de ξ_{1m} (3 curvas inferiores) e ξ_{2m} (3 curvas superiores) para diferentes valores de *k*, em função de *B*. Figura obtida de [38].



Figura 21. Valor máximo do fator de focalização em função de k e B. Obtida de [38].

⁵⁴ Assim como (3.74), a integral de recobrimento para SFG não possui solução analítica.

Muitas informações podem ser extraídas das figuras 20 e 21. Podemos resumi-las da seguinte forma: se B = 0 (ausência de *walk-off*), os feixes devem ser focalizados da mesma forma que no caso de SHG, isto é, satisfazendo $\xi_{1m} = \xi_{2m} = 2.84$. Nesse caso, também é obtido o resultado $h_{mm} = 1.068$. Porém, se $B \neq 0$, cada feixe deve ser focalizado de uma forma distinta, e a potência máxima obtida sempre será inferior ao caso de ausência de *walk-off*. É curioso notar que, quanto maior o valor de k (ou seja, o quão mais distante em freqüência estiver o sinal de bombeio com relação ao sinal de entrada), maior é a diferença entre os fatores de focalização.

Podemos, nesse momento, definir a máxima eficiência de conversão como:

$$\eta_{SFG}^{\max} \approx \frac{32\pi^2 d_{eff}^2 L}{\varepsilon_0 c n_3^2 \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3} P_2 \cdot h_{mm}(k, B)$$
(3.80)

Onde $h_{mm}(k,B) \equiv h_m(k,B,\xi_{1m},\xi_{2m})$ pode ser determinada com o auxílio da figura 21. Observe que, assim como na primeira aproximação para ondas planas, não foi levada em conta a depleção de P_1 , de forma que, aparentemente, (3.80) pode atingir valores infinitos. No entanto, essa expressão é uma boa aproximação para situações nas quais a eficiência é inferior a 10%.

3.6. Geração de Soma de Freqüências de um ponto de vista quântico

Até agora, todos os resultados encontrados utilizaram conceitos puramente clássicos, isto é, a radiação eletromagnética sendo considerada apenas como um fenômeno ondulatório. No entanto, visto que estamos interessados na contagem de *fótons* – entidades quânticas por definição – é importante discutirmos os fenômenos não-lineares levando-se em conta a quantização do campo eletromagnético.

3.6.1. Considerações fundamentais

Talvez a pergunta mais fundamental que podemos fazer nesse momento é: como podemos descrever, de um ponto de vista quântico, o fenômeno de geração de soma de freqüências (SFG)? O ponto de partida para a resposta a essa pergunta encontra-se ilustrado pela figura 22.



Figura 22. Diagrama de energia para o processo de SFG.

Na descrição esquematizada na figura 22, o meio não-linear é considerado um aglomerado de átomos que representamos como sistemas quânticos de 2 níveis: um nível fundamental $|g\rangle$ e um nível excitado $|e\rangle^{55}$. Quando o átomo encontra-se no nível fundamental e os fótons de entrada, de freqüências ω_1 e ω_2 , encontram-se presentes, existe uma probabilidade de que eles sejam simultaneamente absorvidos e o átomo "pule" para o estado excitado. É evidente que, para que isso ocorra, a condição

$$\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = E(e) - E(g) \tag{3.81}$$

deve ser satisfeita, onde E(e) é a energia do estado excitado e E(g) a energia do estado fundamental. Após um certo tempo de vida τ , o átomo tende a retornar ao estado fundamental, emitindo um fóton de energia igual à diferença de energia de seus níveis. Ou seja,

$$\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 \tag{3.82}$$

⁵⁵ O estado excitado é, na verdade, um nível *virtual*, que não ocorre no átomo isolado.

A expressão (3.82) é chamada de *condição de conservação da energia*. Se cancelarmos o termo \hbar , recuperamos a familiar expressão $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, que representa o fenômeno de soma de freqüências.

Além da conservação da energia, sabemos que o processo ilustrado na figura 14 também deve satisfazer a *conservação do momentum*. Por essa razão, é também necessário que

$$\hbar \mathbf{k}_3 = \hbar \mathbf{k}_1 + \hbar \mathbf{k}_2 \tag{3.83}$$

seja satisfeito. Observe também que, cancelando \hbar , considerando uma situação na qual os 3 fótons propagam-se na mesma direção e usando a definição $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$, (3.83) pode ser rescrita como

$$\Delta k = 0 \tag{3.84}$$

que é exatamente a condição de casamento de fase. No entanto, vimos na seção 3.4 que Δk pode ser diferente de zero, às custas de perda de eficiência (no caso de ondas planas) ou mesmo como condição necessária para máxima eficiência (no caso de feixes gaussianos). No caso dos feixes gaussianos, é importante lembrar que, devido ao princípio da incerteza de Heisenberg, os fótons não possuem um valor definido de momentum, já que o feixe encontra-se localizado no espaço. Para as ondas planas, embora teoricamente (3.84) deva ser rigorosamente satisfeito, um pequeno $\Delta k \neq 0$ é admissível pois ele pode ser compensado, por exemplo, por vibrações da rede cristalina (ou seja, pela emissão de um fônon), de forma que o momentum total é conservado.

3.6.2. Eficiência quântica de conversão

Supondo, portanto, que as condições de conservação de energia e momentum são satisfeitas, existe uma certa *probabilidade* de que ele ocorra. Na realidade, estamos interessados no caso em que o sinal em ω_2 pode ser considerado um campo clássico, de forma que o efeito de depleção dos fótons de

energia $\hbar \omega_2$ possa ser desprezado⁵⁶. Isto é, estamos interessados na probabilidade de um fóton isolado que incida sobre o meio não-linear, de freqüência ω_1 , seja convertido em freqüência para $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Essa *probabilidade de conversão* pode ser definida como a razão entre as taxas de fótons na entrada (freqüência ω_1) e saída (freqüência ω_3) do cristal não-linear, que pode ser calculada como:

$$\eta_{SFG} = \frac{P_3/(\hbar\omega_3)}{P_1/(\hbar\omega_1)} = \frac{P_3\omega_1}{P_1\omega_3}$$
(3.85)

onde P_i é a potência do sinal na freqüência ω_i . Observe que (3.85) impõe um limite natural para a potência que pode ser obtida pelo processo não-linear, pois, no melhor dos casos, todos os fótons em ω_1 são convertidos em freqüência. Isso corresponde a $\eta_{SFG} \le 1$ e, portanto, $P_3 \le P_1(\omega_3/\omega_1)$. Esse resultado é, mais uma vez, uma mera conseqüência do princípio de conservação de energia.

Usando o resultado obtido para feixes gaussianos na expressão (3.70), podemos escrever (3.76) como:

$$\eta_{SFG} = \frac{32\pi^2 d_{eff}^2 L}{\varepsilon_0 c n_3^2 \lambda_1^2 \lambda_2} P_2 \cdot h_{mm}(k, B)$$
(3.86)

onde $h_{mm}(k,B) \approx 1$ no caso de não haver *walk-off*. A expressão (3.86) é o resultado mais importante desse capítulo e será utilizada para estimar os máximos valores de eficiência que podem ser obtidos nos projetos de contagem de fótons.

⁵⁶ Devido à baixa eficiência dos processos não-lineares dessa tese, podemos também ignorar a depleção dos fótons em ω_1 , conforme a análise de Boyd-Kleinman.

3.6.3. Descrição quântica do processo de SFG

Apenas a título de completitude⁵⁷, essa seção tem como objetivo brevemente explicar como podemos modelar o processo de soma de freqüências usando a física quântica. Dado que a descrição quântica deve representar um processo que envolve 3 modos distintos, correspondentes às 3 freqüências envolvidas, é natural que ela utilize um espaço de Hilbert de 3 dimensões, com um vetor de estado representado por

$$|\Psi\rangle = |n_1\rangle \otimes |n_2\rangle \otimes |n_3\rangle \equiv |n_1, n_2, n_3\rangle$$
(3.87)

onde n_i representa o número de fótons no modo ω_i . O processo de soma de freqüências deve envolver uma transformação unitária que seja capaz de realizar a transformação

$$|1,1,0\rangle \rightarrow |0,0,1\rangle \tag{3.88}$$

na qual os fótons em ω_1 e ω_2 são destruídos para dar lugar à criação de um novo fóton em ω_3 , exatamente como vimos anteriormente nas relações de Manley-Rowe. Tal processo pode ser descrito pelo seguinte Hamiltoniano:

$$H = \sum_{i=1}^{3} \hbar \omega_i \left(\hat{a}_i^* \hat{a}_i + \frac{1}{2} \right) + \hbar g \left(\hat{a}_1^* \hat{a}_2^* \hat{a}_3 + \hat{a}_1 \hat{a}_2 \hat{a}_3^* \right)$$
(3.89)

Nesta expressão, \hat{a}_i é o operador de aniquilação em ω_i e a constante real g, chamada de *constante de acoplamento*, inclui o coeficiente não-linear d_{eff} . Observe que o primeiro termo de (3.89) representa a energia de um oscilador harmônico quântico, enquanto o segundo termo é o hamiltoniano da interação em

⁵⁷ O conteúdo dessa seção não é necessário para a compreensão do restante da tese e foi deliberadamente resumido. Para maiores detalhes sobre esse assunto, ver [39].

questão, que envolve a destruição de um fóton em ω_3 e a criação de dois fótons em ω_1 e ω_2 , juntamente com o processo reverso⁵⁸.

Para verificarmos que (3.78) é capaz, de fato, de descrever a transformação de (3.77), é preciso solucionar a equação de Schrödinger, dada por:

$$j\hbar\frac{\partial\Psi}{\partial t} = H\Psi \tag{3.90}$$

É possível mostrar [40] que, para a condição inicial $|\Psi(0)\rangle = |1,1,0\rangle$, a solução de (3.90) é dada por:

$$|\Psi(t)\rangle = \cos gt |1,1,0\rangle + j \sin gt |0,0,1\rangle$$
(3.91)

Portanto, fazendo $gt = \pi/2$, obtemos o resultado desejado. A variável *t* representa, nesse caso, o tempo de interação entre os fótons e o meio não-linear.

⁵⁸ Devido à reversibilidade do processo, (3.78) descreve o mesmo Hamiltoniano do processo reverso à soma de freqüências, no qual um fóton é espontaneamente convertido em dois fótons de menor freqüência (energia). Esse processo é chamado de *spontaneous parametric down-conversion* e é largamente aplicado na área de comunicações quânticas.