

F 530A: Instrumentação I

Desenho e Construção de um Amplificador Paramétrico Óptico

Aluna: Larissa Lubiana Botelho 117564 larissalbotelxo(arroba)xgmail.com

Orientador: Prof. Dr. Lazaro Aurélio Padilha Junior
padilhax(arroba)xifi.unicamp.br

Prof. Dr. René Alfonso Nome Silva

Coordenador: José Joaquín Lunazzi



Resumo

Fizemos um estudo da literatura introdutória aos conceitos da espectroscopia resolvida na escala de femtosegundos. Em seguida, desenvolvemos um autocorrelador combinando feixes de laser de 800nm com 800nm com geração de segundo harmônico (400 nm) como uma introdução prática. Como principal trabalho, desenvolvemos um amplificador paramétrico óptico não-colinear (NOPA, na sigla em inglês) com geração de luz branca contínua – que permite análises espectroscópicas de diversas moléculas dada sua larga faixa espectral - e de segundo harmônico, ambos a partir de feixes de 800nm. Esta etapa foi subdividida em duas partes: construção com a linha de atraso na geração de luz branca (WLG, na sigla em inglês) que se mostrou ineficaz dada a sensibilidade da geração luz branca (crítica com relação ao alinhamento) e que foi aprimorada com a realocação da linha de atraso na geração de segundo harmônico (SHG, na sigla em inglês), que corresponde à segunda etapa. A montagem do NOPA foi concluída, restando a caracterização do tempo zero. Por fim, caracterizamos a luz branca gerada em água e em um cristal de safira, afim de verificar qual era mais estável e, portanto, mais eficaz para montagens ópticas. Nestas atividades a aluna aprendeu a operar um laser de femtossegundos, o manuseio e utilização de espectrômetros, o processo de geração de segundo harmônico em cristais não-lineares, a geração de luz branca contínua e coerente a partir de laser de femtossegundos e desenhou e construiu instrumentos à laser utilizando óptica linear e não-linear.

1 Introdução

A descoberta da geração de segundo harmônico a partir de um laser de frequência bem definida, por Franken *et al.* em 1961, é comumente tomado como o início do campo conhecido como óptica não-linear^[4], que consiste no estudo de fenômenos que ocorrem devido à mudanças nas propriedades ópticas causadas pela presença de luz intensa. A não linearidade destes fenômenos está relacionada com o fato de que a resposta de um material em relação a um campo elétrico aplicado é não linear com a intensidade deste.

Podemos expandir a dependência da polarização (densidade de momentos de dipolo) de um material, $P(t)$, com o campo elétrico aplicado, $E(t)$, em uma série de potências^[4],

$$P(t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots \right] = P_1(t) + P_2(t) + P_3(t) + \dots \quad (1)$$

Onde χ_1, χ_2, χ_3 são, respectivamente, a susceptibilidade linear, a susceptibilidade óptica não-linear de segunda e de terceira ordens; e P_2, P_3 são as polarizações não-lineares de segunda e terceira ordens, respectivamente. Aqui, por simplicidade, os campos $P(t)$ e $E(t)$ foram tomados como quantidades escalares. Além disso, note que foi considerado que a polarização, $P(t)$, depende apenas instantaneamente do valor de E , portanto, é também assumido que as susceptibilidades não-lineares são constantes.

Desta forma, para campos poucos intensos, é possível desprezar os termos de altas ordens e ficar apenas com a primeira ordem, correspondente à óptica linear. No entanto, para feixes muito intensos, não é possível desprezar os termos de maior ordem da Equação (1), o que caracteriza o regime conhecido como óptica não-linear.

Para um laser com pulsos ultracurtos - pulsos de duração temporal na ordem de picossegundos (10^{-12}) ou menos -, é possível acessar o regime não-linear, o que pode ser entendido, de maneira simplificada, por meio do fato de que potência elétrica de um laser corresponde a quantidade de energia por ele carregada em um dado intervalo de tempo. Desta forma, para uma mesma quantidade de energia, quanto menor a duração temporal de um pulso, maior a potência de pico, e portanto, maior a intensidade.

A óptica não-linear é imprescindível para a espectroscopia resolvida na escala de femtossegundos, indispensável, por exemplo, para a comprovação experimental da existência de um estado de transição em reações químicas por Zewail *et al.*^[1]. Como um exemplo prático, podemos citar a geração do segundo harmônico:

Considere que um feixe intenso, representado abaixo, incide em um cristal cuja susceptibilidade não-linear de segunda ordem, $\chi^{(2)}$, é não nula.

$$E(t) = Ee^{-i\omega t} + c.c.$$

Neste caso, a polarização não-linear criada no material é dada por

$$P(t) = 2\epsilon_0 EE^* + (\epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 e^{-i2\omega t} + c.c.)$$

Note que o segundo termo corresponde a geração de radiação com duas vezes a frequência inicial, isto é, representa a geração do segundo harmônico. Já o primeiro termo não leva a geração de radiação eletromagnética, uma vez que a sua segunda derivada temporal é zero.

Podemos citar, ainda, a geração de luz branca-contínua, também conhecida como supercontínuo.

Na maior parte dos meios, no caso do aparato construído foi utilizado um cristal de safira, existe um pico de potência que pode ser encontrado acima do qual o pulso é transformado em um contínuo de luz branca. Uma forma pela qual é possível se obter tamanha intensidade é através do fenômeno de self-focusing no qual toda a intensidade do feixe (que varia radialmente, uma vez que o feixe é gaussiano) é concentrada em um único ponto, i.e., o material se comporta como uma lente convergente.

Um processo óptico de terceira ordem pode ser escrito como

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 \tag{2}$$

Sabendo que

$$E(t) = \epsilon \cos(\omega t) \tag{3}$$

E utilizando a relação $\cos^3 \omega t = \frac{1}{4} \cos 3\omega t + \frac{3}{4} \cos \omega t$, obtemos

$$P^{(3)}(t) = \frac{1}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}\epsilon^{(3)}\cos 3\omega t + \frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}\epsilon^{(3)}\cos\omega t \quad (4)$$

Analisando separadamente cada termo da Equação (4), é possível perceber que o primeiro é referente à geração de terceiro harmônico (saída de um feixe com frequência 3ω a partir de um feixe com frequência ω). O segundo termo da Equação (4) explicita uma contribuição não linear ao índice de refração experimentado por um feixe de uma dada frequência ω .

O índice de refração, na presença da não-linearidade (causada pela alta intensidade do feixe) pode ser escrito como $n = n_0 + n_2 I$, onde n é o índice de refração usual, n_2 é a constante óptica que caracteriza a contribuição da não-linearidade óptica e é proporcional à $\chi^{(3)}$ e I é a intensidade da onda incidente, que é proporcional à ϵ^2 .

O processo de self-focusing ocorre graças ao índice de refração dependente da intensidade. Ele pode ocorrer quando o feixe possui uma distribuição transversal de intensidade não uniforme e passa por um meio cujo n_2 é positivo^[4]; então toda a intensidade é focada em um único ponto, ou seja, o material se comporta como uma lente convergente. Este processo aumenta a intensidade incidente no material em um dado ponto, possibilitando a geração do supercontínuo.

2 Produção científica

2.1 Auto-correlador

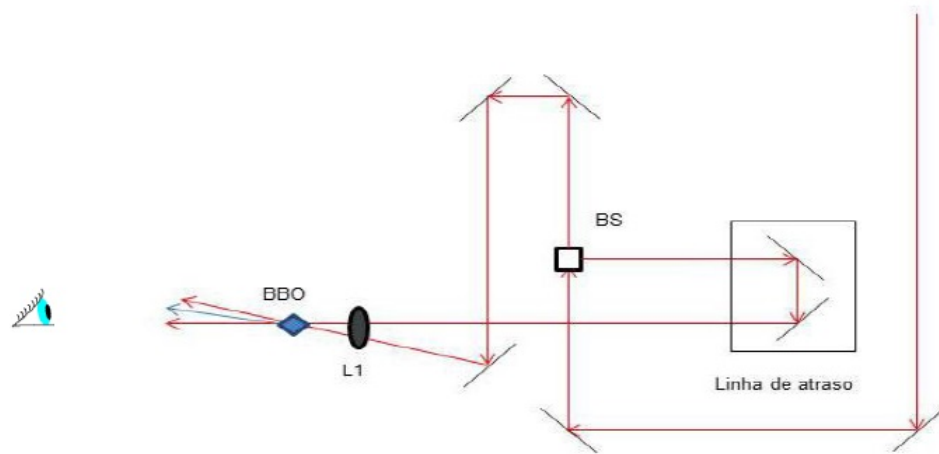


Figure 1: Esquema final do auto-correlador desenvolvido no projeto. BS: divisor de feixes de 4%; L1: lente com 100 mm de comprimento de foco (c.f.); BBO: cristal BBO para SHG.

Ao longo de toda a construção do auto-correlador e do NOPA foi utilizado um laser de Ti:Safira, da Coherent Mira e amplificador Coherent Legend, com comprimento de onda de 800nm, energia de 1mJ por pulso e duração temporal de 100fs. Lasers de Ti:Safira são lasers que possuem como meio de ganho um cristal de safira (Al_2O_3) dopado com titânio e normalmente são bombeados por um outro laser, este podendo ser lasers de íons argônio ou lasers de estado sólido com duplicação de frequência, como os lasers de Nd:YAG (neodymium-doped yttrium aluminium garnet, granada de alumínio ítrio dopada com neodímio), Nd:YLF (Neodymium-doped yttrium lithium fluoride, fluoreto de lítio ítrio dopado com neodímio), e Nd:YVO (Neodymium-doped yttrium orthovanadate, Ortovanadato de ítrio dopado com neodímio). No caso do laser utilizado, o bombeio é feito por Nd:YAG dobrado em 532 nm. Este laser foi utilizado ao longo de toda a construção do NOPA por capacidade deste laser de gerar pulsos ultracurtos.

A Figura 1 apresenta o esquema final do auto-correlador desenvolvido. Um feixe de femtossegundos de 800 nm da fonte é dividido, por um divisor de feixes de 4% (de intensidade), em dois feixes que seguem por trajetórias A e B e se encontram no cristal BBO (um cristal de Beta Borato de Bário). O caminho A é

composto pela linha de atraso – uma plataforma manualmente móvel – enquanto que o caminho B é fixo. Note que, como os feixes devem ser combinados com superposição espacial e ao mesmo tempo, i.e., a simultaneidade dos pulsos é indispensável para a geração do sinal de auto-correlação, os caminhos A e B devem ser do mesmo tamanho. O ajuste final das diferenças entre os comprimentos dos caminhos é feito através da linha de atraso. A Figura 2 elucida a relação espacial e temporal envolvida em toda a espectroscopia resolvida na escala de femtossegundos, apresentando o comportamento do sinal de auto-correlação ao transladar a linha de atraso.

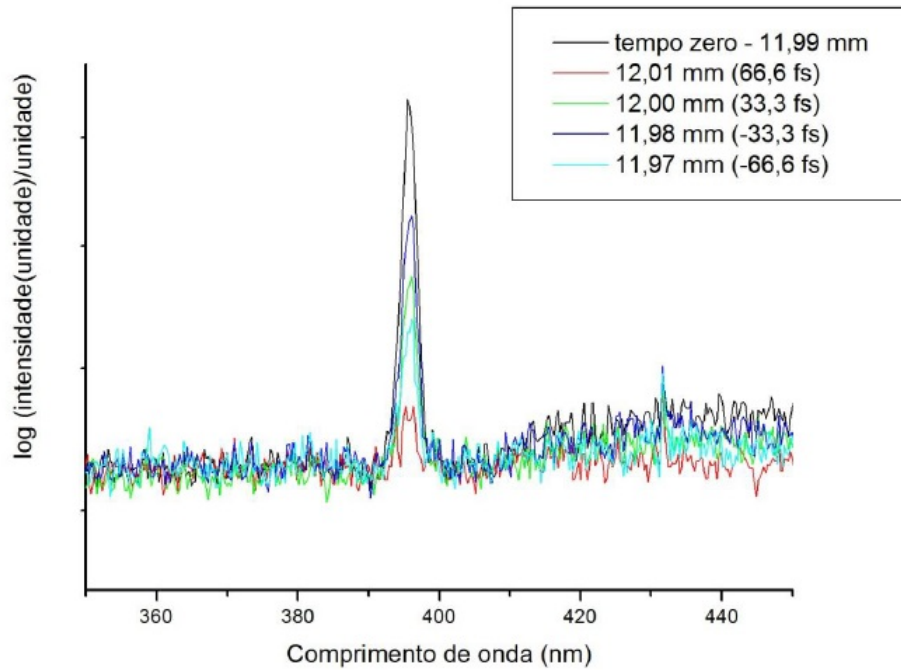


Figure 2: Espectro do sinal de auto-correlação quando a linha de atraso se encontrava no ponto zero (11,99mm), 12,00 mm que corresponde a um passo de aproximadamente 33,3 fs (pela equação (3)), 12,01 mm ($\approx 66,6$ fs), 11,98 mm ($\approx -33,3$ fs) e 11,97 mm ($\approx -66,6$ fs).

Sabemos que para que ocorra a geração do sinal de auto-correlação a relação

$$\Delta t_A = \Delta t_B$$

deve ser satisfeita. Sabemos, também, que Δt está relacionado com ΔS pela

equação

$$\Delta t = \frac{\Delta S}{c}$$

Mas a velocidade da luz, c , é constante; assim, quando trasladamos a linha de atraso para longe do ponto zero (ponto no qual ocorre a geração do sinal de auto-correlação) – encontrado trasladando a linha de atraso-, o ΔS do feixe que passa pela linha de atraso (este podendo ser tanto o prova quanto o bombeio) é modificado e, conseqüentemente, Δt do feixe também é alterado, perdendo a simultaneidade dos feixes e o sinal de auto-correlação, como pode ser verificado na Figura 2.

A caracterização do sinal de auto-correlação finalizou esta etapa introdutória.

2.2 NOPA

O processo de amplificação paramétrica óptica não-colinear tem como princípio básico a amplificação em intensidade de um feixe de baixa frequência e baixa intensidade (feixe de prova) por meio de sua combinação, em um cristal não linear (no caso, um BBO), com um feixe de altas intensidade e frequência (o bombeio), resultando em um terceiro feixe, denominado ocioso (Idler, em inglês), que possui menor frequência que o prova e o bombeio.

No caso do NOPA desenvolvido, o feixe ampliado foi o feixe de luz branca gerado em um disco de safira (Figura 3). A princípio, por causa da baixa potência passada pelo divisor de feixes utilizado – apenas 4% da intensidade – a luz contínua é utilizada como feixe de prova e, após ser combinada com o feixe de 400 nm no cristal de BBO, passa a ter maior potência (princípio do NOPA) e pode passar a atuar com o feixe de bombeio. A luz branca é caracterizada por sua larga amplitude espectral, propriedade que justifica sua aplicação no estudo espectroscópico de uma grande variedade de moléculas.

A construção deste instrumento passou por duas etapas principais, sendo a primeira corresponde à construção com a linha de atraso em WLG, a segunda com a linha de atraso em SHG.

Na primeira etapa, o NOPA foi construído com o mesmo esquema do auto-correlador, como pode ser observado na Figura 3.

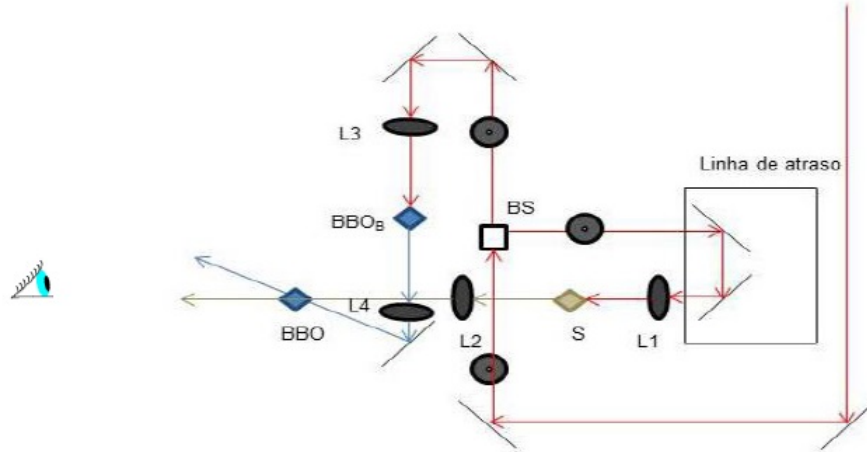


Figure 3: Esquema NOPA. BS: divisores de feixes de 4%; L1: lente de 100 mm f.l.; S: disco de safira; L2:lente de 100 mm f.l.; L3: lente de 100 mm f.l.; BBOB: cristal BBO para SHG com ângulo de $29,2^\circ$; L4: lente de 100 mm f.l.; BBO: cristal BBO para SHG de 32° .

Esta configuração se mostrou ineficaz dada à sensibilidade da geração de luz branca, crítica em relação ao alinhamento. Quando a linha de atraso foi trasladada, ocorreu uma grande variação na luz branca, como pode ser observado no espectro na Figura 4.

Esta grande variação é indesejável uma vez que, quando os espelhos da linha de atraso se encontravam mais próximos ao cristal, o espectro apresentou um grande pico em 800 nm e uma pequena faixa espectral, o que vai contra o princípio da utilização de luz branca por esta possuir largo espectro.

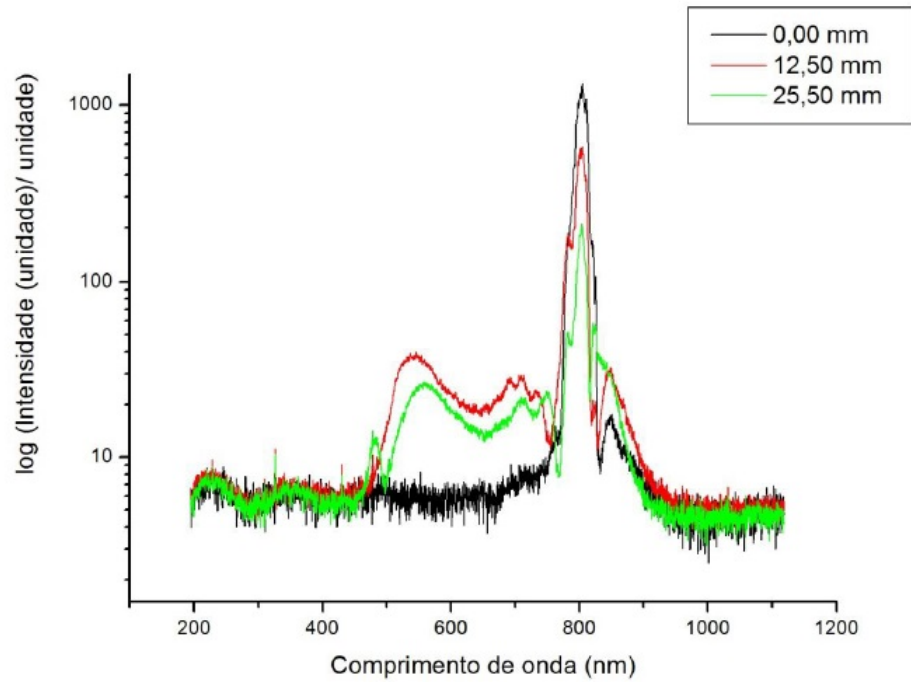


Figure 4: Espectro referente à WLG na primeira configuração do NOPA quando a linha de atraso se encontrava em 0,00 mm, 12,50 mm e 25,50 mm.

Mesmo aprimorando o alinhamento, o problema na WLG persistiu, levando à relocação da linha de atraso em SHG que acreditávamos ser menos sensível a problemas no alinhamento.

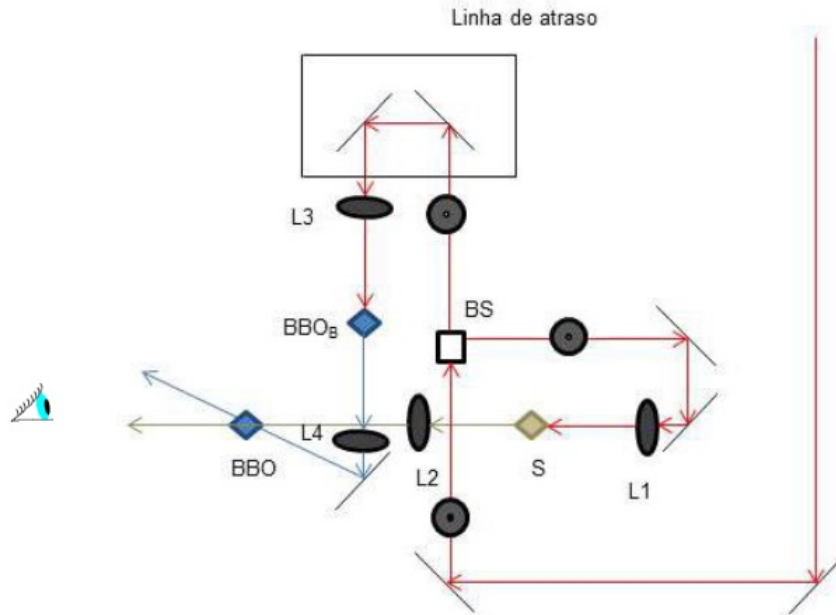


Figure 5: Esquema NOPA modificado. BS: divisores de feixes de 4%; L1: lente de 100 mm f.l.; S: disco de safira; L2:lente de 100 mm f.l.; L3: lente de 100 mm f.l.; BBOB: cristal BBO para SHG com ângulo de $29,2^\circ$; L4: lente de 100 mm f.l.; BBO: cristal BBO para SHG de 32° .

Os espectros da Figura 6 são referentes ao segundo harmônico gerado no $BBO_{B\rightarrow}$ (Figura 3) e confirmam a menor sensibilidade deste em relação ao alinhamento, uma vez que seus espectros sobrepostos evidenciam sua pequena variação quando a linha de atraso é transladada.

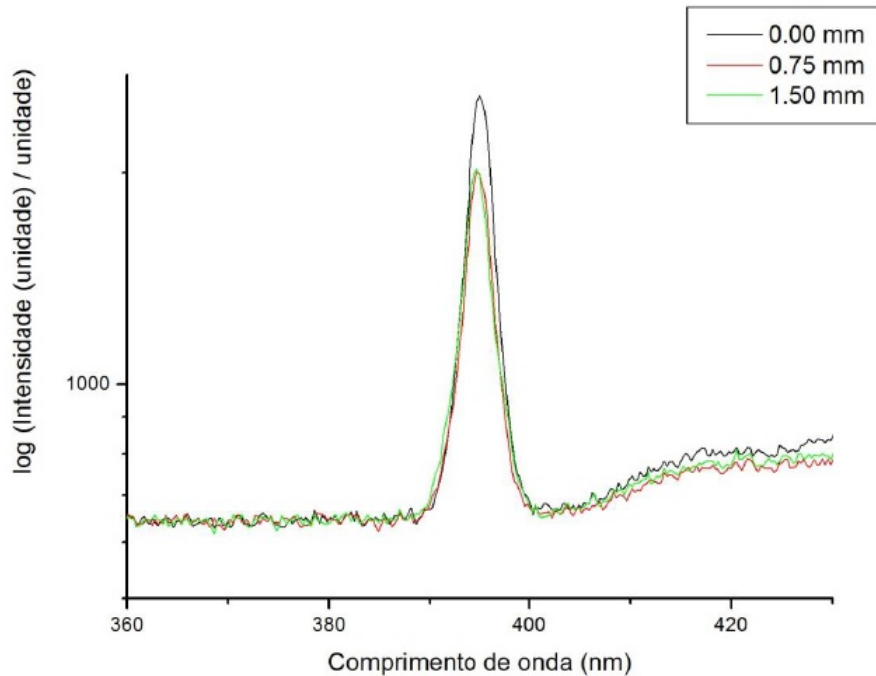


Figure 6: Espectros ampliados referentes ao segundo harmônico gerado na segunda configuração do NOPA quando a linha de atraso se encontrava em 0,00 mm, 0,75 mm e 1,5 mm.

Quando aumentamos a faixa de comprimentos de onda que podemos visualizar na Figura 6, obtemos a Figura 7 e nesta podemos observar geração de luz entre 400 nm e 500 nm, que é uma região de difícil alcance.

O espectro na Figura 8 é correspondente à WLG e não é mais alterado dado que, nesta montagem, a linha de atraso se encontra em SHG. Desta forma, o problema com a instabilidade da luz branca foi resolvido com a realocação da linha de atraso, resultando em uma geração estável e que abrange uma larga faixa de comprimentos de onda.

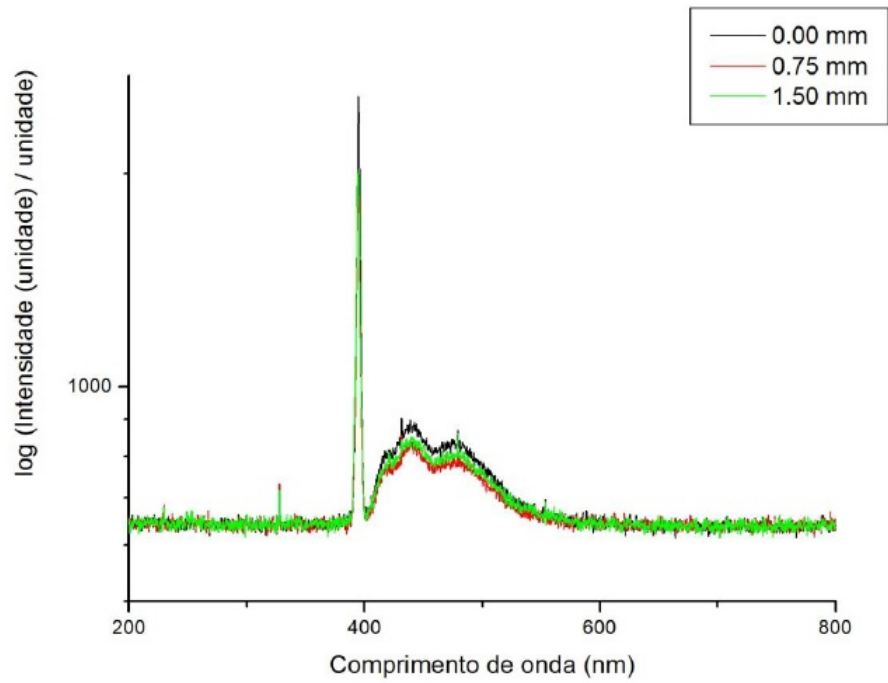


Figure 7: Espectro referente à SHG na segunda configuração do NOPA.

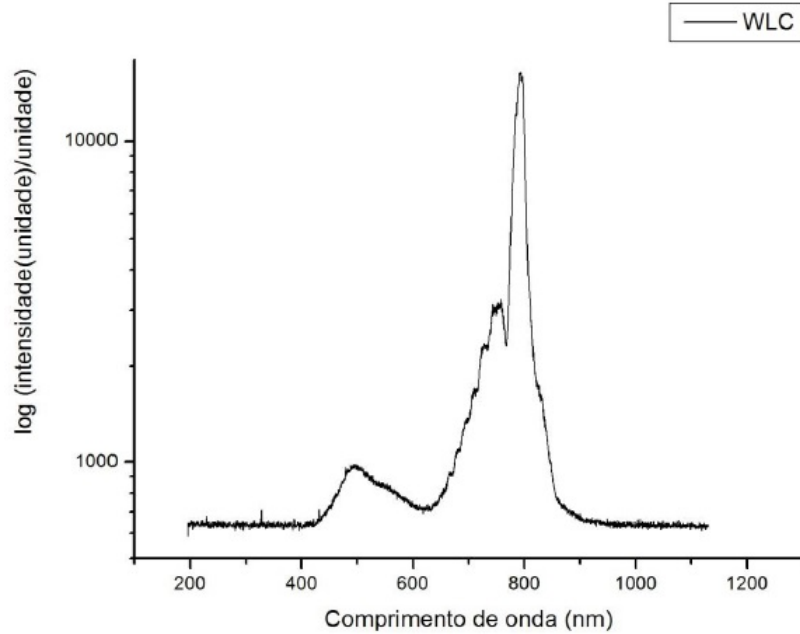


Figure 8: Espectro referente à WLG na segunda etapa da montagem do NOPA (linha de atraso em SHG).

2.2.1 Relação entre os ângulos interno e externo prova-bombeio e a orientação do cristal de BBO

Existem diferentes formas de combinação de fase entre os feixes, i.e., existem diferentes formas de combinação das polarizações dos feixes, – por exemplo, o feixe de bombeio paralelo à montagem e o prova perpendicular à montagem – dado que o cristal utilizado é birrefringente, i.e., possui diferentes índices de refração para as diferentes polarizações.

A escolha do tipo de combinação de fase depende do tipo de fenômeno envolvido, dos comprimentos de onda dos feixes e do tipo de material do cristal não-linear utilizado. Por exemplo, no caso de um amplificador paramétrico óptico (OPA, na sigla em inglês) na faixa do visível e utilizando como cristal não-linear um BBO, a combinação de fase do Tipo I é utilizada – prova ordinário e o bombeio extraordinário, i.e., são perpendiculares entre si. No caso do NOPA, a combinação de fase do Tipo II, onde ou o feixe de prova ou o Idler é paralelo ao feixe de bombeio, é utilizada

Com isto em mente, como é possível observar na Figura 9^[3], existe um ângulo ótimo ($3,7^\circ$) – para a orientação do BBO com $\theta \approx 31,3^\circ$ - interno ao BBO, de tal forma que a faixa do feixe de prova que pode ser amplificado é consideravelmente maior que os demais. Este ângulo interno não pode ser diretamente medido, mas

com o auxílio da Lei de Snell, podemos alcançar este ângulo por meio do ângulo externo que pode ser calculado com simples geometria.

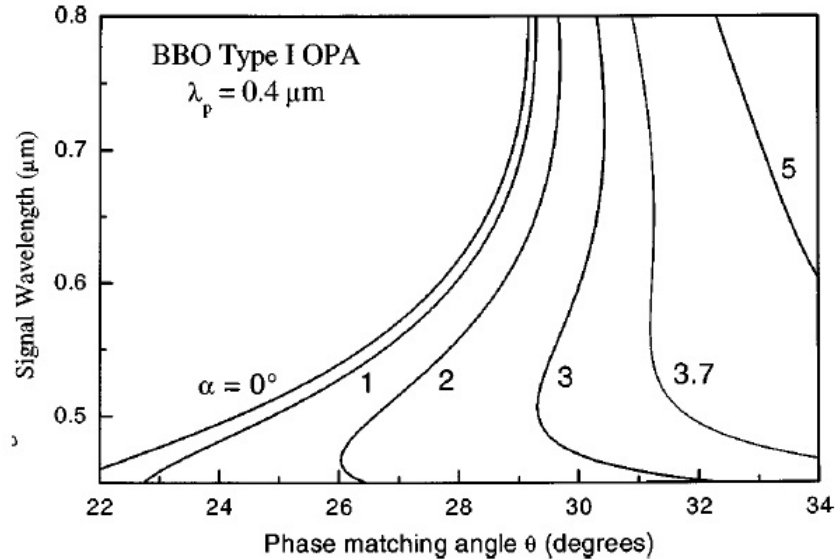


Figure 9: Relação entre os comprimentos de onda do feixe de prova que podem ser ampliados, a orientação do cristal de BBO e os ângulos entre os feixes de prova e bombeio internos ao cristal - para combinação de fase do Tipo I e feixe de bombeio de 400 nm^[3].

2.2.2 Sobreposição espacial dos feixes

Uma vez garantido que os tamanhos dos caminhos percorridos pelos feixes são os mesmos, ainda precisamos garantir a sobreposição espacial destes, de tal forma que eles sejam combinados no mesmo local e ao mesmo tempo. Uma sobreposição espacial efetiva pode ser obtida mais facilmente através do cone de superfluorescência. Quando este for alcançado, devemos posicioná-lo de tal forma que o feixe de prova se sobreponha ao anel exterior formado, como mostra a Figura 10^[2]. Desta forma, esta é uma parte por vezes problemática, uma vez que é necessário trabalhar o ângulo entre os feixes sem se perder o fenômeno da superfluorescência.

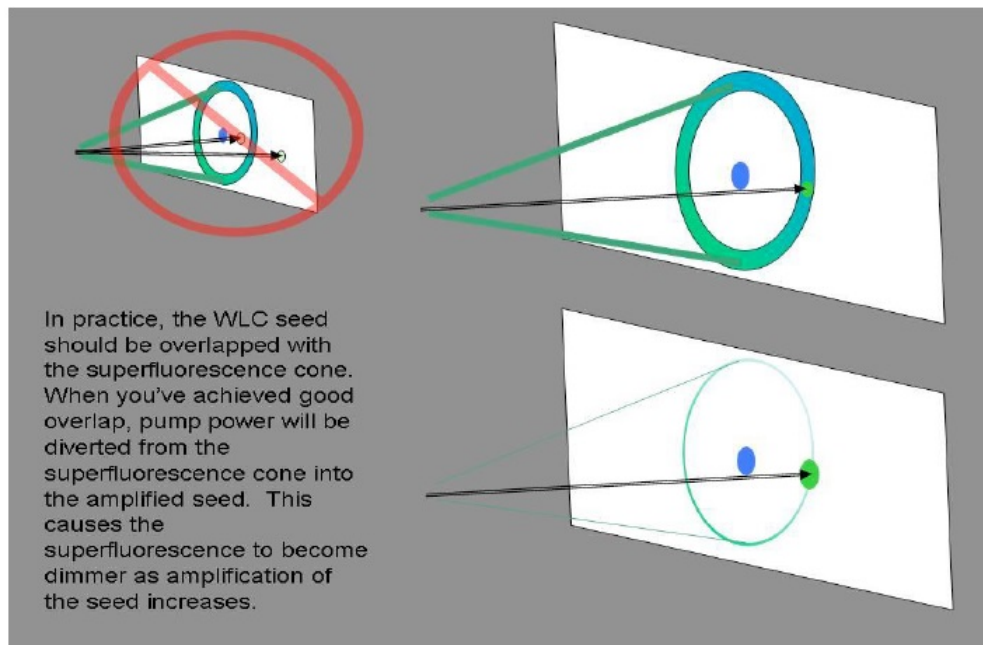


Figure 10: Sobreposição espacial entre os feixes prova e bombeio^[2].

Sabemos que a superposição temporal foi alcançada, uma vez que foi possível visualizar o sinal de auto-correlação. No entanto, apesar a obtenção do cone de superfluorescência – que pode ser observada na Figura 11 -, a superposição espacial não foi alcançada.



Figure 11: Fotografia do cone de superfluorescência obtido.

Podemos citar como possíveis causas da ineficácia em se obter a superposição a rápida divergência do feixe de luz contínuo, que além de cortado pelas lentes, chegava com um raio muito grande ao BBO da Figura 5, dificultando a superposição espacial e a dificuldade da superposição do feixe contínuo com o cone sem a perda do fenômeno de superfluorescência. Todas estas possíveis causas são claramente ilustradas pela Figura 12.

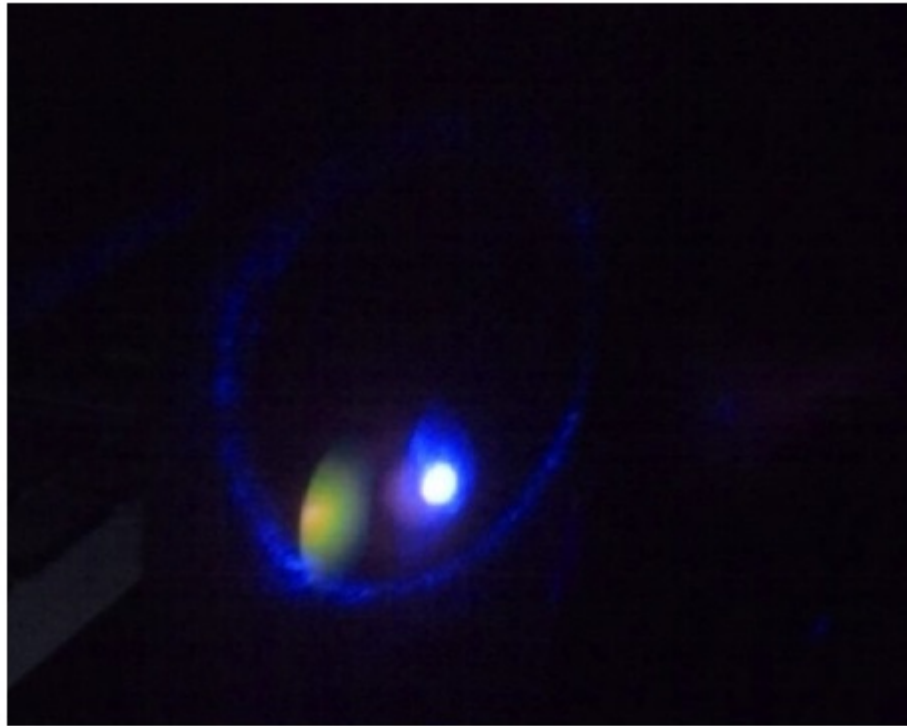


Figure 12: Fotografia do cone de superfluorescência em conjunto com o supercontínuo gerado.

2.3 Estudo da estabilidade da luz branca gerada em um cristal de safira e em água

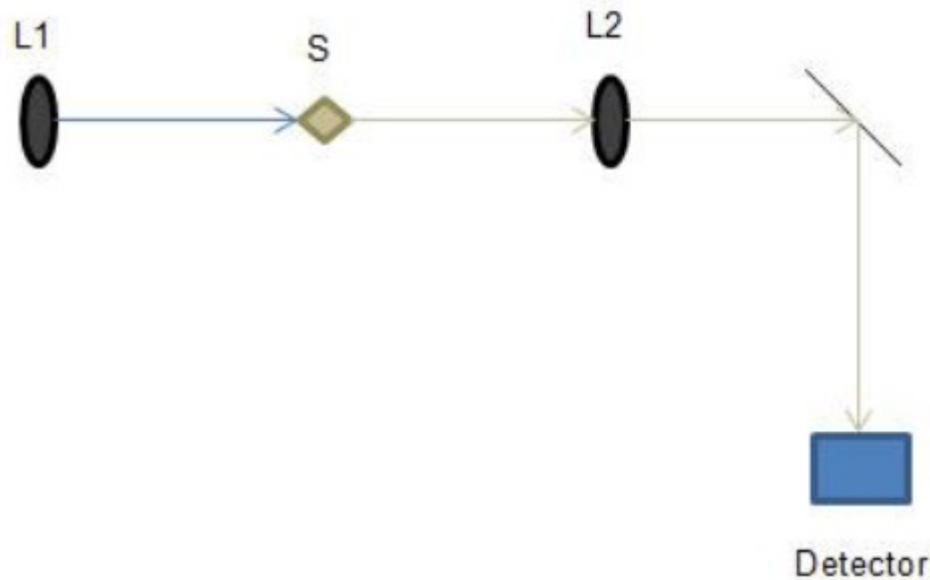


Figure 13: Esquema utilizado para análise da estabilidade da luz branca contínua gerada. L1 e L2: lentes com distância focal de 200mm; S: disco de safira de 1mm de espessura ou cubeta de 1cm de caminho óptico com água destilada; Espectrômetro: OceanOptics.

Sabemos que a energia de um fóton deve ser exatamente igual à diferença de energia entre os estados excitado (orbital de mais alta energia, mais externo) e fundamental de uma molécula ou átomo, para que ocorra a transição. Desta forma, se a luz contínua - que após passar pelo NOPA atuará como feixe de bombeio - for instável, a excitação pode ser comprometida e a análise espectroscópica ineficaz. Portanto, o estudo da estabilidade da geração de luz branca é indispensável.

Para diversos comprimentos de onda, foi testada a estabilidade do supercontínuo gerado em água e em um cristal de safira em um esquema simples como na Figura 13.

Visualmente, o supercontínuo gerado em água era mais instável que o gerado em safira. Foi possível observar a olho nu oscilações na luz branca gerada em água. Esta aparente instabilidade em comparação a luz gerada em um cristal de safira é confirmada no espectro da Figura 14, no qual o supercontínuo foi gerado a partir de 700nm.

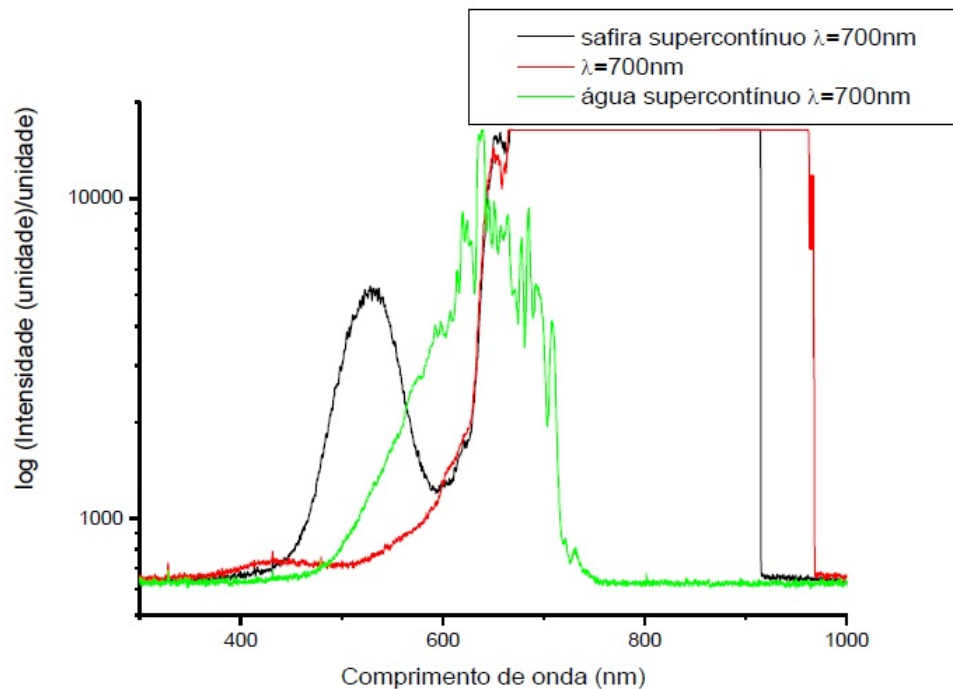


Figure 14: Espectro do supercontínuo gerado em safira e em água a partir de um feixe de 700nm.

No entanto, não foi possível fazer tal comparação para os demais comprimentos de onda por causa da dificuldade em obter espectros representativos, uma vez que a intensidade necessária para a geração de luz branca contínua aumenta conforme diminui o comprimento de onda, causando problemas com a escala do espectrômetro.

Apesar da maior instabilidade, a geração de supercontínuo em água apresenta como vantagem a ausência do problema de queima do cristal, existente na geração em um disco de safira. Desta forma, é possível fornecer maior potência para a geração de luz branca contínua em água.

Foi testada, ainda, a geração de supercontínuo a partir de um feixe de 560nm, no entanto esta não se mostrou eficaz em água ou mesmo no disco de safira, provavelmente por causa da baixa intensidade disponível do feixe neste comprimento de onda.

3 Conclusão

Este relatório apresenta avanços na montagem de um instrumento de espectroscopia de fluorescência resolvida no tempo na escala de femtossegundos. Os

principais avanços foram a montagem do auto-correlador, sua adaptação para inclusão de um dobrador de frequências na linha de bombeio e gerador de luz branca na linha de prova. Ambos os feixes foram combinados com dois objetivos: (i) geração do sinal NOPA e (ii) espectroscopia de bombeio e prova com duas cores.

A aluna apresenta profundo interesse na área de óptica não-linear, tendo feito duas iniciações científicas na área: a primeira sob a orientação do Prof. Dr. René Nome do Instituto de Química da UNICAMP em parceria com o Instituto de Física Gleb Wataghin, com a construção de um amplificador paramétrico óptico não-linear (NOPA, na sigla em inglês) - trabalho aqui apresentado-, e a segunda também sob a orientação do Prof. Doutor René Nome e sob coorientação do Dr. Ricardo Samad, no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na geração de altos harmônicos (HHG, na sigla em inglês). Esta disciplina ofereceu uma grande oportunidade para aprofundar o conhecimento em instrumentação e em óptica não-linear, apresentando a chance de aprender mais sobre os processos físicos envolvidos no aparato óptico bem como sobre a montagem e funcionamento do mesmo, aparato, o qual, é de grande importância para pesquisas de base, de ciência de materiais, bem como pesquisas e aplicações industriais por sua capacidade de gerar feixes de luz coerentes em diversos comprimentos de onda a partir de uma fonte de laser de frequência fixa.

4 Avaliação de Desempenho feita pelo Docente

A aluna Larissa Botelho esteve presente na maioria das reuniões de grupo e tem trabalhado no laboratório desenvolvendo o projeto inicialmente proposto. Note que o relatório versa, em grande parte, sobre o trabalho feito pela Larissa durante sua IC em 2014 e não no que temos feito ultimamente no laboratório. Ocorre que foi preciso comprar várias peças para a montagem e a entrega dessas peças atrasou, por isso a montagem ainda não está feita. Todavia, os testes com a geração de luz branca, que é o primeiro passo para o projeto, já foram feitos. Por fim, posso afirmar que a Larissa teve o comprometimento esperado com o projeto e aprovo tanto seu desempenho quanto o relatório apresentado.

Prof. Dr. Lazaro A. Padilha Junior Departamento de Eletrônica Quântica IFGW/UNICAMP

5 Referências Bibliográficas

[1]Baskin, S. J.; Zewail, A. H. Freezing atoms in motion: principles of femtochemistry and demonstration by laser stroboscopy. *Journal of Chemical Education*, Vol. 78, No 6, p.737-751, Jun 2001.

[2]WILSON, K. Guide to NOPAS.

[3]CERULLO, G.; SILVESTRI, S. Ultrafast Optical Parametric Amplifiers. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 74, No 1, Jan 2003.

[4]BOYD, R. W. *Nonlinearoptics*, Terceira edição, AP, 2008, p.1-3.

[5] Brodeur, A.; Chin, S. L. Ultrafast White-Light Continuum Generation and self-focusing in transparent condensed media. *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. 16, No 4, p.637-650, Apr 1999