



*UNIVERSIDADE  
ESTADUAL DE MARINGÁ  
PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA*

---

**Alcir Rosa Nunes**

**Avaliação quantitativa das propriedades ópticas e térmicas do  
monocristal Nd:YAG em função da temperatura**

Orientador

Prof.: Dr. Mauro Luciano Baesso

Co-orientador

Prof.: Dr. Antonio Medina Neto

Dissertação apresentada ao  
Departamento de Física da  
Universidade Estadual de Maringá  
Para obtenção do título de Mestre em Física

---

Maringá - Fevereiro - 2003.



*UNIVERSIDADE  
ESTADUAL DE MARINGÁ  
PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA*

---

**Alcir Rosa Nunes**

**Avaliação quantitativa das propriedades ópticas e térmicas do  
monocristal Nd:YAG em função da temperatura**

Este exemplar compreende a redação final da  
**dissertação defendida pelo aluno  
Alcir Rosa Nunes**

Maringá, 27 de Fevereiro de 2003.

Comissão julgadora :

---

**Prof. Dr. Mauro Luciano Baesso**

---

**Prof. Dr. Antonio Carlos Bento**

---

**Prof. Dr. Tomaz Catunda**

---

Maringá - Fevereiro - 2003.

**Alcir Rosa Nunes**

**Avaliação quantitativa das propriedades ópticas e térmicas do monocrystal  
Nd:YAG em função da temperatura**

Orientador  
Prof.: Dr. Mauro Luciano Baesso  
Co-orientador  
Prof.: Dr. Antonio Medina Neto

Dissertação apresentada ao  
Departamento de Física da  
Universidade Estadual de Maringá  
Para obtenção do título de Mestre em Física

Maringá, 27 de Fevereiro de 2003.

## *Agradecimentos*

*A minha esposa Fátima e meus filhos Ariadine e Victor pelo apoio e compreensão nestes últimos dias, e a alegria de todos os outros.*

*A toda minha família.*

*Aos colegas de graduação e pós-graduação, pela colaboração e amizade no decorrer de todo o curso.*

*Ao professor Dr. Mauro Luciano Baesso, pela orientação, apoio e incentivo.*

*Ao professor Dr. Antonio Medina Neto pela co-orientação.*

*Ao professor Dr. Tomaz Catunda pelo fornecimento das amostras.*

*Ao professor Dr. Luiz Antonio de Oliveira Nunes pelas medidas de conversão ascendente e de absorção de estado excitado.*

*Aos professores Dr. Antonio Carlos Bento, Dr. José Roberto Dias Pereira e Paulo R.B. Pedreira pelo apoio e ajuda no laboratório.*

*Aos professores, funcionários administrativos e da oficina do DFI.*

*Aos colegas do Grupo de Estudos de Fenômenos Fototérmicos.*

*A capes pelo apoio financeiro.*

## Resumo

O objetivo deste trabalho é utilizar a Espectroscopia de Lente Térmica combinada com as técnicas complementares de Calorimetria de Relaxação Térmica, Fotoluminescência e Interferometria de Fabry-Perot para determinar as propriedades ópticas e térmicas do monocristal Nd:YAG. A partir das medidas de lente térmica foram determinados os valores da difusividade térmica e do parâmetro  $\theta$ , que descreve a amplitude do sinal de lente térmica. A calorimetria de relaxação térmica foi empregada para a medida do calor específico, a interferometria de Fabry-Perot para determinar o parâmetro  $dS/dT$  (coeficiente de temperatura do caminho óptico) e a fotoluminescência para avaliar o espectro de emissão da amostra. Para todas as quatro técnicas os experimentos foram realizados no intervalo de temperatura entre ambiente e 200°C. Os experimentos de LT foram realizados no modo transiente e na configuração de feixe duplo no modo descasado, utilizando um laser de argônio em 514,5nm como feixe de excitação e um laser de He-Ne em 632,8nm como laser de prova. Na interferometria de Fabry-Perot utilizamos um laser de He-Ne em 632,8nm. Os resultados mostraram a ocorrência de franjas de interferência superpostas ao transiente da lente térmica, que se deslocavam ao longo do feixe quando a superfície do cristal estava em contato com o ar. Com a utilização de um trocador de calor em contato com a amostra, esses deslocamentos foram minimizados e assim os transientes da lente térmica puderam ser obtidos. A partir dos resultados obtidos, combinando-se os dados da lente térmica com aqueles das medidas complementares, o comportamento do coeficiente de temperatura do caminho óptico e do índice de refração e também do coeficiente de expansão térmica da amostra foram determinados para o intervalo de temperatura entre a ambiente até em torno de 200°C. É feita uma comparação entre o parâmetro  $dS/dT$  obtido a partir das medidas com o interferômetro de Fabry-Perot com aquele que governa a intensidade da lente térmica. Em conclusão, os resultados deste trabalho fornecem informações importantes sobre as variações das propriedades ópticas e térmicas do monocristal Nd:YAG, evidenciando a contribuição de cada uma delas sobre o aumento da intensidade da lente térmica quando a temperatura da amostra é aumentada. Os resultados sugerem que o procedimento adotado neste trabalho pode ser útil no estudo de outros materiais empregados como meio ativo para laser de estado sólido.

## Abstract

The aim of this work is to apply the Thermal Lens Spectrometry combined with complementary methods as Thermal Relaxation Calorimetry, Photoluminescence and Fabry-Perot Interferometry to measure the thermo-optical properties of the Nd:YAG monocrystal. From the thermal lens measurements, the thermal diffusivity and the parameter  $\theta$ , which describes the thermal lens signal amplitude, were obtained. The thermal relaxation calorimetry method was employed to determine the specific heat, the Fabry-Perot interferometry to measure the temperature coefficient of the optical path length ( $dS/dT$ ) and the photoluminescence to obtain the emission spectra of the sample. The experiments for these four different techniques were performed as a function of temperature in the range between room temperature and 200°C. The thermal lens measurements were carried out in the mode mismatched configuration and in the transient mode, using an Ar<sup>+</sup> ion laser at 514.5nm as the excitation beam and a He-Ne laser as the probe beam. In the Fabry-Perot interferometry, a He-Ne laser at 632.8nm was used. The results showed the occurrence of interference fringes superimposed over the thermal lens transient, which presented spatial dislocation along with the laser spot when the sample surface was in contact to the air. Using a heat sink device the intensity of these fringes was reduced and then the thermal lens transients were obtained. The results showed that the combination of thermal lens measurements with complementary techniques allowed to obtain the behavior of the temperature coefficients of optical path length and refractive index and also the thermal expansion coefficient of the sample for the temperature interval between room temperature and about 200°C. A comparison between  $dS/dT$  values obtained from Fabry-Perot interferometry measurements with that which drives the thermal lens amplitude is made. In conclusion, the results of this work provided important information about the variation of the thermo-optical properties of the Nd:YAG crystal, highlighting the contribution of each one of them in the significant increase of the thermal lens amplitude when the sample temperature is increased. The results suggest that the adopted procedure in this work may be useful in the study of others materials used as active medium for solid state lasers.

# Índice

1.Introdução	9
1.1.Espectroscopia de Lente Térmica	10
1.1.1.A formação da lente térmica	13
1.1.2.Modelo teórico para a ELT na configuração de dois feixes no modo descasado	15
1.1.3.Eficiência quântica de fluorescência	28
2.Objetivos	31
3.Experimental	32
3.1.Amostra	32
3.2.Descrição do experimento de lente térmica	34
3.2.1.Determinação dos parâmetros geométricos do sistema	36
3.3.Medidas complementares	40
3.3.1.Calor específico	40
3.3.2.Interferometria de Fabry-Perot	43
4.Resultados e Discussão	46
4.1.Resultados das medidas de LT no monocristal Nd:YAG à temperatura ambiente	46
4.2.Resultados de LT em função da temperatura	57
4.3.Medidas complementares	59
4.3.1.Calor específico	59
4.3.2.Medidas de fotoluminescência em função da temperatura	62
4.3.3.Determinação de $dS/dT$ a partir do interferômetro de Fabry-Perot	64
4.4.Determinação de $dS/dT$ em função da temperatura a partir dos dados da LT	66
4.5.Determinação do coeficiente de expansão térmica e de $dn/dT$ em função da temperatura a partir dos dados da LT e do interferômetro de Fabry-Perot	68
5.Conclusões	72
Bibliografia	74

# Capítulo 1

## Introdução

Embora tenha sido utilizado como meio ativo para laser de estado sólido desde a década de 60, os monocristais de Nd:YAG, objeto de estudo nesta dissertação, são ainda hoje um dos mais importantes materiais empregados na fabricação de lasers [1-12]. Com o advento dos lasers de diodo com alta potência e baixo custo, não só os lasers a partir do Nd:YAG que operam em 1,06 $\mu$ m tiveram ganho em eficiência, mas também os lasers compactos e estáveis em 532nm foram desenvolvidos [13,14]. Em outras palavras, os cristais de YAG continuam sendo importantes para a área de lasers.

Entre os fatores que afetam o funcionamento dos lasers, o processo de aquecimento do meio ativo, que ocorre como consequência da conversão de parte da energia absorvida em calor, é sem dúvida uma das variáveis do material que determina a eficiência do laser projetado [1,15,16]. Portanto, avaliar esta propriedade significa fornecer informações sobre o desempenho do referido laser.

O termo  $dS/dT$  que descreve a variação do caminho óptico da radiação em relação à temperatura em um determinado meio, é um dos parâmetros mais importantes de materiais a serem utilizados em aplicações ópticas. É importante conhecer o comportamento deste parâmetro em função da temperatura, para que se possa determinar a que tipo de aplicação o material pode ser destinado. Como meio ativo para lasers de estado sólido, por exemplo, é importante que  $dS/dT$  seja próximo de zero, uma vez que a cavidade do laser é um ambiente hostil, na qual a temperatura de operação pode variar significativamente. Como consequência, podem ocorrer desvios, autofocalização, despolarização ou aberrações no feixe laser. Um outro fator determinante é o processo de refrigeração do meio ativo que geralmente se adota. A remoção do calor ocorre majoritariamente na superfície do cristal fazendo com que um gradiente de temperatura na direção radial seja estabelecido [15,16]. Portanto, os mecanismos de transferência de calor são governados por gradientes térmicos que dependem, especialmente para a condutividade térmica, de como o valor desta propriedade varia com a temperatura. É sabido que a condutividade térmica de cristais na região de altas temperaturas tem um comportamento decrescente quando a temperatura do cristal aumenta. Assim, é provável que para grandes

variações de temperatura no cristal, pode ocorrer uma mudança no valor da condutividade térmica na forma de um gradiente, com um mínimo no centro do cristal e o máximo na sua borda, dificultando, conseqüentemente, o processo de refrigeração.

Por outro lado, desde sua descoberta na década de 60 a Espectroscopia de Lente Térmica (ELT) tem sido empregada no estudo de materiais que são utilizados como meio ativo para lasers de estado sólido [1,17,18]. Estes estudos utilizaram tanto a LT térmica intracavidade quanto a extracavidade. Entre suas características, o caráter remoto tem especial importância para este trabalho porque permite que um sistema de aquecimento seja utilizado para aquecer a amostra durante os experimentos. Além disso, a possibilidade de realização de estudos quantitativos sem a utilização de amostras referência é também um dos aspectos importantes da técnica.

Portanto, considerando a importância do estudo das propriedades ópticas e térmicas dos monocristais de Nd:YAG mencionadas anteriormente e a potencialidade da espectroscopia de lente térmica para estudos em função da temperatura, nossa hipótese neste trabalho é utilizar a ELT para estudar o monocristal de YAG dopado com  $\text{Nd}^{+3}$  no intervalo de temperatura entre  $22^{\circ}\text{C}$  e  $180^{\circ}\text{C}$ , que geralmente é o intervalo de temperatura que os meios ativos podem ser submetidos durante a operação laser. Uma vez que as constantes físicas que são determinadas a partir das medidas com a LT estão diretamente relacionadas com propriedades da amostra, tais como, calor específico, fluorescência e  $dS/dT$ , é importante, realizar medidas complementares com outras técnicas convencionais para determinar os valores dessas propriedades. Uma outra motivação importante para o trabalho é correlacionar os valores de  $dS/dT$  obtidos a partir das medidas com a interferometria de Fabry-Perot com aqueles determinados com a LT.

## **1.1 Espectroscopia de Lente Térmica**

Até a descoberta do laser na década de 60 [19], as fontes de radiação utilizadas emitiam luz em todas as direções. A constatação de que o laser, por apresentar coerência e distribuição espacial de luz, permitia a obtenção de alta densidade de potência por unidade de volume, revolucionou os estudos da interação da radiação eletromagnética com a matéria. Atualmente o laser é amplamente utilizado neste tipo de pesquisa.

O efeito de lente térmica (LT) foi observado por acaso quatro anos depois do desenvolvimento do primeiro laser. Entre os pesquisadores envolvidos nos experimentos, que

evidenciaram a ocorrência deste efeito, estavam os brasileiros R.C.C. Leite e S.P.S. Porto [20,21]. Esta primeira observação da LT aconteceu nos laboratórios da Bell Telephone em 1964 quando ao tentar estudar os espectros Raman de líquidos inseridos dentro da cavidade de um laser de He-Ne, os referidos pesquisadores notaram que a intensidade do centro do laser variava na escala de tempo de milissegundos. A figura 1.1 mostra a representação esquemática do primeiro experimento de LT realizado.

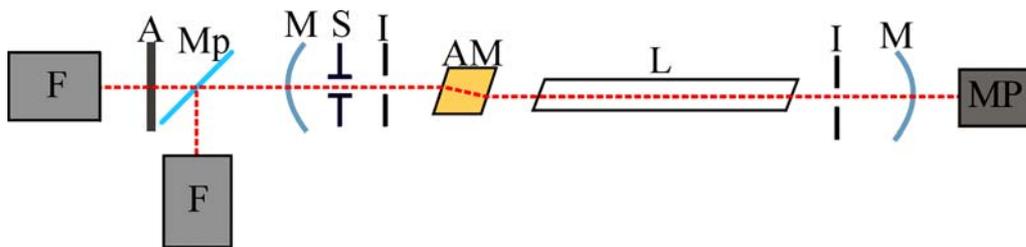


Figura 1.1: Montagem experimental da primeira observação do efeito de LT [20,21].

Uma observação importante feita pelos pesquisadores foi que o diâmetro do feixe era menor no espelho do lado da amostra, quando comparado com o do feixe do espelho do lado oposto. Com a remoção da amostra, os dois feixes recuperavam o valor do diâmetro inicial. Surgiu-se então a hipótese de que o efeito seria resultado da formação de uma lente gerada pelo aquecimento da amostra devido à absorção da luz do laser. Foi proposto que se tratava de uma lente gerada a partir do aquecimento da região iluminada, como resultado do processo de conversão da luz absorvida em calor. O perfil de intensidade gaussiano do feixe seria responsável pelo gradiente de temperatura com perfil radial também gaussiano. A conseqüente mudança no índice de refração na região iluminada dava então origem ao que passou ser denominado de efeito de lente térmica. O primeiro sinal de lente térmica obtido está representado na figura 1.2.

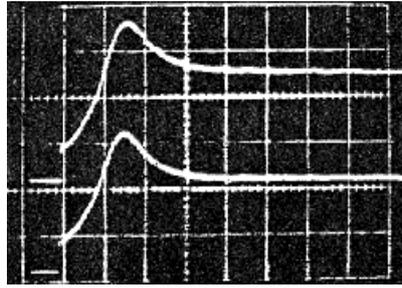


Figura 1.2: Primeiro sinal do efeito de lente térmica, obtido através do arranjo experimental ilustrado na figura 1.1 [20,21].

Na década de 70 Whinnery e Hu [22] observaram o efeito de lente térmica fora da cavidade do laser. Eles demonstraram que o efeito de LT com a amostra fora da cavidade era mais fácil de ser tratado teoricamente, além de ser mais fácil de ser realizado. A representação esquemática desta configuração experimental está demonstrada na figura 1.3.

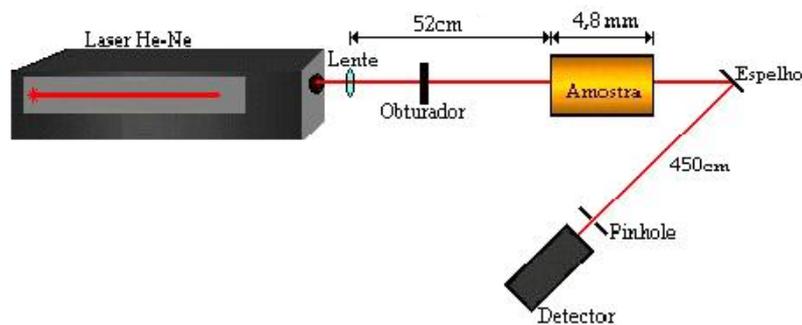


Figura 1.3: Primeira montagem experimental de LT com amostra fora da cavidade [22].

As configurações experimentais de lente térmica foram sendo modificadas ao longo dos últimos 30 anos [20-29], tanto com o intuito de aumentar a sensibilidade da técnica quanto em procurar torná-la mais flexível do ponto de vista espectroscópico. A utilização de dois feixes laser contemplou estes dois aspectos com vantagem em relação à configuração que utiliza apenas um laser. Com dois feixes laser, um é empregado como laser de excitação para gerar a LT, enquanto o segundo com potência menor é utilizado como feixe de prova. A configuração mais recente e considerada a mais sensível é a que usa dois feixes laser no modo descasado. Sua principal característica é a utilização do feixe de prova com diâmetro maior do que o de

excitação na amostra. Esta é a configuração utilizada no desenvolvimento deste trabalho, e sua representação esquemática está demonstrada na figura 1.4.

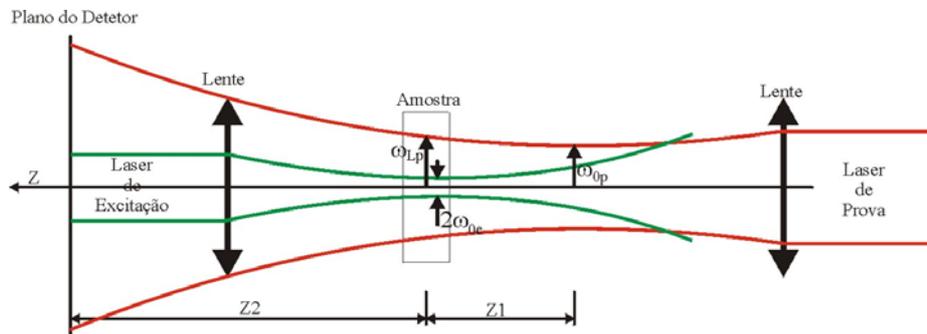


Figura 1.4: Representação do experimento de LT com feixe duplo no modo descasado.  $\omega_{LP}$  e  $\omega_{0e}$  são os raios dos feixes de prova e de excitação na amostra respectivamente;  $\omega_{0p}$  é o raio do laser de prova em sua cintura;  $Z_1$  é a distância confocal do laser de prova e  $Z_2$  é a distância entre o centro da amostra e o detector.

### 1.1.1 A formação da lente térmica

O princípio físico da lente térmica é baseado no fenômeno da refração da luz. Seja um feixe laser que chamaremos de feixe de excitação, com perfil de distribuição de intensidade gaussiano, como mostrado na figura 1.5.

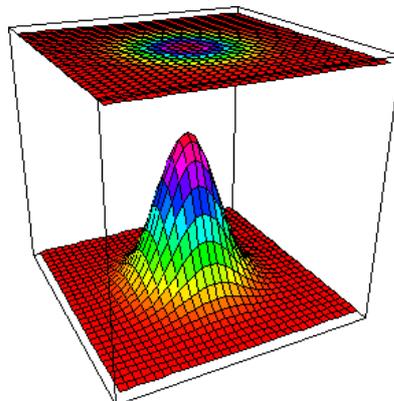


Figura 1.5: Perfil de um feixe laser com distribuição de intensidade gaussiana.

Na parte superior da figura 1.5 temos uma representação bidimensional que mostra um corte transversal do feixe de laser, na qual a mudança de cores ao longo do raio indica a variação na intensidade do feixe. Na parte inferior temos um gráfico tridimensional do mesmo feixe.

Quando parte da radiação eletromagnética é absorvida pela amostra e convertida em calor, este calor induzido produz uma distribuição radial de temperatura devido ao perfil gaussiano da intensidade do laser. Com isto, ocorre uma mudança também radial do índice de refração da amostra, dando-lhe o formato espacial de uma lente. No caso de amostras sólidas, poderá ocorrer ainda variação na espessura como resultado do calor gerado pelo laser. Assim, a variação do caminho óptico é quem determinará a LT [21]. Portanto, quando um outro feixe, que chamaremos de feixe de prova, passar pela amostra o mesmo sofrerá convergência ou divergência, que dependerá das características físicas da amostra, como representado na figura 1.6.

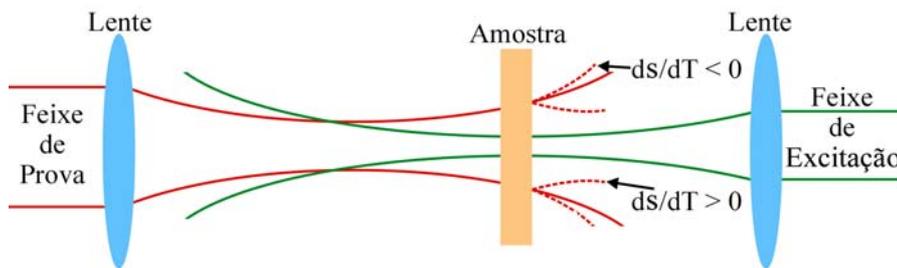


Figura 1.6: Formação da lente térmica convergente e divergente na amostra.  $ds/dT$  é o coeficiente de temperatura do caminho óptico da amostra no comprimento de onda do laser de prova.

Este efeito pode ser observado em gases, líquidos e sólidos mesmo quando estes meios são extremamente transparentes. Na figura 1.7 temos a representação do sinal de lente térmica obtido no osciloscópio para a lente térmica convergente (a) e divergente (b), onde estes sinais estão relacionados com a variação do caminho óptico na amostra devido ao aquecimento radial. Na lente divergente temos  $dS/dT < 0$  enquanto na lente convergente temos  $dS/dT > 0$ .

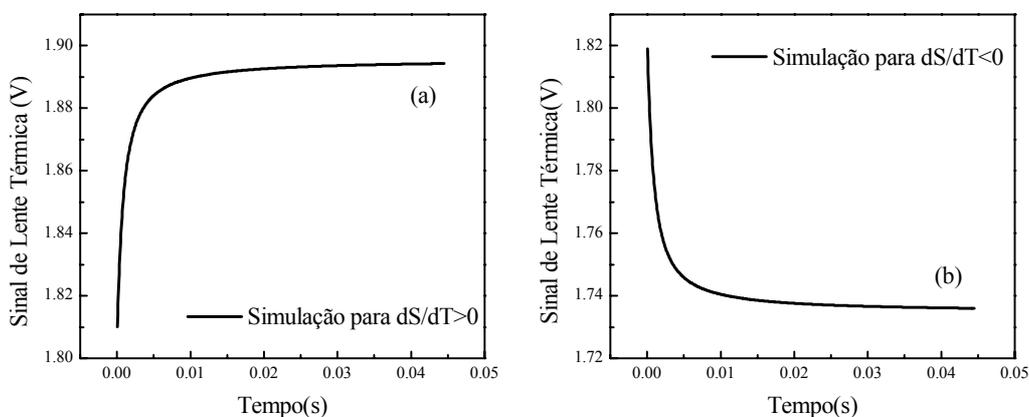


Figura 1.7: Sinal de lente térmica (a) convergente e (b) divergente.

É neste processo de interação da luz com amostra que as propriedades ópticas e térmicas do material analisado são perturbadas. Desta perturbação pode-se obter informações sobre as características da amostra tais como difusividade térmica, variação do caminho óptico ( $dS/dT$ ), coeficiente de absorção óptica, condutividade térmica e eficiência quântica de fluorescência.

### 1.1.2 Modelo teórico para a espectroscopia de lente térmica na configuração de dois feixes no modo descasado.

O primeiro modelo teórico para descrever a LT foi desenvolvido por Gordon e colaboradores [20,21] no mesmo artigo em que os referidos autores descreveram a primeira observação da LT. Este primeiro modelo foi denominado de parabólico porque em seu desenvolvimento, a LT foi considerada como sendo uma lente fina e ideal, portanto com um perfil radial parabólico. Uma das limitações deste modelo é o fato de o mesmo não prever os anéis de interferência que podem ser observados durante os experimentos de LT. Esta foi a principal motivação para o desenvolvimento do modelo aberrante. O modelo aberrante foi desenvolvido considerando-se a natureza aberrante da lente térmica, adotando-se a teoria de difração de Fresnel. Trata-se de uma descrição teórica mais realista do que o modelo parabólico, principalmente porque este modelo fornece uma expressão analítica para descrever o sinal de LT no detector e prevê os anéis de interferência induzidos durante a formação da lente térmica.

Inicialmente, o modelo aberrante foi desenvolvido para a configuração que utiliza um único feixe laser ou para a de dois feixes laser com o mesmo diâmetro na amostra, modo casado [30]. Posteriormente, o modelo aberrante foi estendido para a configuração descasada [24-26]. Como este é o modelo que foi utilizado para a análise dos dados experimentais obtidos neste trabalho, apresentaremos os passos principais utilizados para o seu desenvolvimento.

O modelo de lente térmica para a configuração descasada foi desenvolvido considerando-se o caso em que os dois feixes laser têm perfil de intensidade gaussiano. Este modelo está descrito em uma série de artigos científicos e teses publicadas [24-26,31-38]. As condições de contorno para o tratamento da lente térmica em três dimensões, necessárias quando se pretende estudar amostras finas e/ou com diâmetros da ordem do tamanho dos feixes laser utilizados no experimento, foram estabelecidas e discutidas nos trabalhos de Shen [27] e Shen e Baesso [25]. Recentemente foram realizadas adaptações no referido modelo, para que pudesse ser utilizado no estudo de amostras sólidas fluorescentes [28].

No presente estudo rerepresentaremos de forma sucinta as condições de contorno mencionadas anteriormente, demonstrando as condições experimentais que devem ser obedecidas, para que seja possível utilizar adequadamente as equações que descrevem o sinal de LT na análise dos dados experimentais.

Inicialmente, serão descritas as características da intensidade de um laser no modo transversal ou modo fundamental, que é o perfil dos lasers que são empregados nos experimentos, tanto para gerar quanto para provar a lente térmica.

### **Características de um feixe gaussiano**

O decréscimo da amplitude do campo elétrico com a distância  $r$  do eixo no feixe gaussiano é descrito pela equação [39]:

$$E(r) = E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{\omega^2}\right) \quad (1.1)$$

Portanto, a distribuição de intensidade do feixe é expressa por:

$$I(r) = I_0 \exp\left(-2\frac{r^2}{\omega^2}\right) \quad (1.2)$$

em que

$$I_0 = \frac{2P}{\pi\omega^2} \quad (1.3)$$

$\omega$  é a distância radial na qual a amplitude do campo elétrico decai para  $\frac{1}{e}$  de seu valor sobre o eixo e a intensidade  $I(r)$  diminui para  $\frac{1}{e^2}$  do seu valor axial. O parâmetro  $\omega$  é chamado de raio do feixe e  $P$  é a potência do feixe. As frações da potência total de um feixe gaussiano que estão contidas na abertura radial de  $r = \omega$ ,  $r = 1,5\omega$  e  $r = 2\omega$  são iguais a 86,5%, 98,9% e 99,9%, respectivamente. Quando um feixe gaussiano passa por uma abertura radial de  $3\omega$ , somente 10<sup>-6</sup>% da potência do feixe é perdida devido à sua obstrução.

Considerando agora a propagação de um feixe gaussiano, podemos observar que mesmo com uma distribuição de intensidade gaussiana, a largura do perfil de intensidade muda ao longo do eixo de propagação em toda seção reta do feixe. O feixe gaussiano se reduz a um diâmetro mínimo de  $2\omega_0$  na cintura, onde a fase da frente da onda é planar. Se medirmos a largura do feixe a uma distância  $z$  desta cintura, a lei de expansão para um feixe gaussiano assume uma forma simples. O raio do feixe a uma distância  $z$  de sua cintura expande-se como uma hipérbole, que tem a forma:

$$\omega(z) = \omega_0 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi\omega_0^2} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (1.4)$$

A tangente está inclinada de um ângulo  $\theta/2$  em relação ao eixo, conforme mostra a figura 1.8.

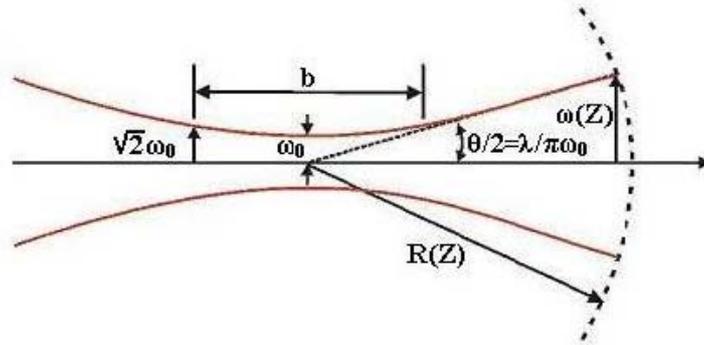


Figura 1.8: Geometria para um feixe laser.

O ângulo de divergência total para o modo fundamental é dado por:

$$\theta = \lim_{z \rightarrow \infty} \frac{2\omega(z)}{z} = \frac{2\lambda}{\pi\omega_0} \quad (1.5)$$

Destas considerações, para pontos distantes o suficiente, o raio do feixe aumenta linearmente com  $z$ , e o feixe diverge com a forma de um cone constante de ângulo  $\theta$ . O ponto mais interessante aqui é que, quanto menor o raio do feixe  $\omega_0$  na cintura, maior será a sua divergência.

Quando a onda viajante está suficientemente afastada da cintura do laser, ela tem uma frente de onda aproximadamente esférica, parecendo emanar de um ponto sobre o eixo do feixe na cintura. Se  $R(z)$  for o raio de curvatura da frente de onda que intercepta o eixo em  $z$ , então:

$$R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (1.6)$$

É importante notar que a frente de ondas no feixe gaussiano tem a mesma fase através de toda a superfície.

É conveniente especificar o parâmetro confocal como:

$$Z_c = \frac{b}{2} = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad (1.7)$$

em que  $b$  é a distância entre os pontos de cada lado da cintura do feixe para o qual  $\omega = \sqrt{2}\omega_0$ , e  $Z_c$  é a distância confocal do feixe laser, figura 1.8.

### Modelo aberrante para a lente térmica na configuração descasada.

Na configuração de modo descasado a amostra é iluminada por dois feixes laser, figura 1.4, representada para facilitar a leitura. Para obter-se maior densidade de potência na amostra, o feixe de excitação é focalizado na mesma através de uma lente. O aumento de temperatura é produzido através da conversão da energia absorvida em calor. A conseqüente mudança no índice de refração resulta na geração da lente térmica.

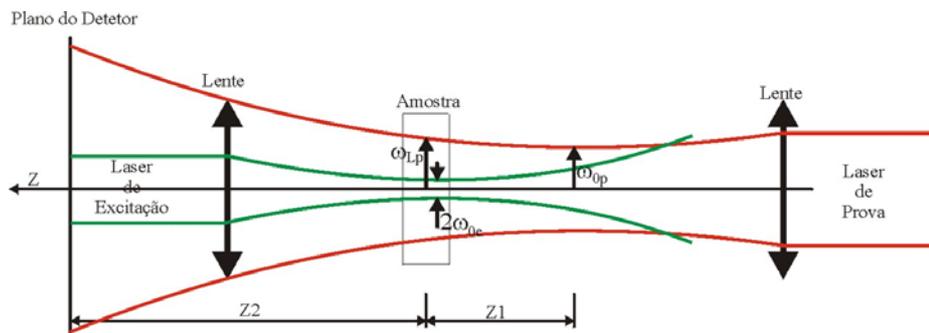


Figura 1.4) Arranjo experimental da LT com dois feixes no modo descasado.

Neste arranjo, quanto maior a razão  $\omega_{1p}/\omega_{0e}$  na amostra, maior será a sensibilidade da técnica.

A propagação do laser de prova através da lente térmica induzida pelo feixe de excitação resultará em uma variação da sua intensidade em um campo distante. A posição da cintura do feixe de prova é tomada como a origem ao longo do eixo  $z$ , enquanto a amostra é posicionada em  $Z_1$ . O plano do detetector é posicionado em  $Z_1 + Z_2$ . O raio do feixe de prova na cintura é definido como  $\omega_{0p}$ , os raios dos feixes de prova e de excitação na amostra são respectivamente  $\omega_{1p}$  e

$\omega_{0e}$ .

Na espectroscopia de lente térmica o aumento de temperatura é uma das variáveis mais importantes, porém o seu valor absoluto é difícil de ser calculado usando tanto o modelo teórico de lente térmica aberrante quanto o modelo parabólico, uma vez que ambos consideram a amostra com dimensões infinitas, em que o equilíbrio da lente térmica não poderia ser alcançado. Esta dificuldade deve-se ao fato de que a solução da equação de difusão de calor exige que a variação da temperatura induzida pela lente térmica seja finita e, portanto, nula na interface amostra-ar ou amostra-suporte.

O desenvolvimento do modelo aberrante ocorreu historicamente através de três etapas. Na primeira, as condições de contorno empregadas consideram que o calor gerado pelo laser de excitação vai a zero quando o raio  $r$  da lente térmica vai ao infinito [24,30]. Este é o denominado modelo aberrante infinito. Posteriormente, foram consideradas as condições de contorno para o caso de amostras finas [25] e ainda o tratamento tridimensional da lente térmica [25,27].

Enfatizamos que o desenvolvimento do modelo baseou-se nas seguintes suposições:

- A espessura da amostra deve ser menor do que a distância confocal do laser de prova;
- As dimensões radiais da amostra devem ser maiores do que as do raio do feixe de excitação  $\omega_{0e}$ .

- A potência absorvida pela amostra deve ser pequena, para evitar correntes de convecção no caso de amostras líquidas e distorção da LT no caso de amostras sólidas. Além disso,  $dn/dT$  não deve variar no interior da amostra.

### **Modelo radial infinito**

A descrição do referido modelo pode ser feita através de três passos principais:

- 1-Determinar o aumento local de temperatura  $\Delta T(r,t)$ ;
- 2-Determinar a variação no caminho óptico ( $dS/dT$ ), induzido pela variação de temperatura,  $\Delta T(r,t)$ , na amostra;

- 3-Determinar a intensidade  $I(t)$  para o campo elétrico do laser de prova na posição do detector (fotodiodo). Uma vez que a LT é de natureza aberrante podendo gerar anéis de interferência no detector, devemos utilizar a teoria de difração de Fresnel para descrever a propagação do laser de prova a partir do plano de saída da amostra, após passar pela lente

térmica, até o plano do detector.

### **Determinação do aumento de temperatura local da amostra.**

O calor induzido na amostra devido à absorção parcial do laser de excitação por unidade de comprimento e por unidade de tempo, no intervalo entre  $r$  e  $r + dr$  pode ser representado por  $Q(r)$ . Em que  $Q(r)$  é dado por [21,40]:

$$Q(r)dr = 2\pi A_e I(r) r dr \quad (1.8)$$

$A_e$  é o coeficiente de absorção óptica da amostra dado em  $cm^{-1}$ , no comprimento de onda do laser de excitação.

Podemos expressar a equação de difusão de calor como [21,40]:

$$c_p \rho \frac{\partial}{\partial t} [\Delta T(r,t)] - k \nabla^2 [\Delta T(r,t)] = Q(r) \quad (1.9)$$

Dados  $c_p$ ,  $\rho$  e  $k$  como: calor específico ( $J/g.K$ ), densidade ( $g/cm^3$ ) e a condutividade térmica ( $W/cm.K$ ) da amostra, respectivamente

Devemos considerar as seguintes condições de contorno:

$\Delta T(r,0) = 0$ , ou seja, para um tempo igual a zero não há mudança de temperatura na amostra, uma vez que a lente térmica ainda não foi gerada.

$\Delta T(\infty,t) = 0$  ( $t > 0$ ), ou seja, nesse limite radial o calor gerado pelo laser de excitação já foi totalmente atenuado, não provocando aumento de temperatura nesta região.

Assim, para a solução da equação de difusão temos [21,24,40]:

$$\Delta T(r,t) = \int_0^t \int_0^{\infty} \frac{1}{c_p \rho} Q(r') G(r,r',t') dt' dr' \quad (1.10)$$

em que  $G(r,r',t)$  é uma função de Green proposta por Carslaw e Jaeger [21,24,40],

$$G(r,r',t) = \frac{1}{4\pi k t'} \exp\left(-\frac{r^2 + r'^2}{4Dt'}\right) J_0\left(\frac{rr'}{2Dt'}\right) \quad (1.11)$$

em que

$$D = \frac{k}{c_p \rho} \quad (1.12)$$

$D$  é a difusividade térmica da amostra ( $cm^2/s$ ) e  $J_0$  a função de Bessel modificada. A variação  $\Delta T(r, t)$  de temperatura na amostra induzida pelo laser de excitação pode ser expressa por [21,24,40]:

$$\Delta T(r, t) = \frac{2P_e A_e}{c_p \rho \pi \omega_{0e}^2} \int_0^t \left[ \frac{1}{1 + (2t'/t_c)} \right] \exp \left[ \frac{(2r^2 / \omega_{0e}^2)}{1 + (2t'/t_c)} \right] dt' \quad (1.13)$$

Dado

$$t_c = \frac{\omega_{0e}^2}{4D} \quad (1.14)$$

como uma constante característica de tempo, que governa a formação de lente térmica.  $P_e$  é a potência do laser de excitação.

### **Determinação da variação do caminho óptico do laser de prova induzida pela formação da lente térmica.**

Podemos expressar a variação do índice de refração da amostra com a temperatura como:

$$n(r, t) = n_0 + \frac{dn}{dT} \Delta T(r, t) \quad (1.15)$$

Que se comporta como se fosse um elemento óptico, induzindo uma diferença de fase no feixe de prova [30].  $dn/dT$  é o coeficiente térmico do índice de refração.

A espessura da amostra caso esta seja sólida e homogênea, pode mudar durante a formação da lente térmica como mostra a figura 1.9. Neste caso o tratamento mais adequado, deve considerar a variação no comprimento do caminho óptico  $S(r, t)$  com a temperatura  $T$ , induzida pela lente térmica. Ou seja [26]:

$$S(T) = n(T)l(T) \quad (1.16)$$

A mudança no caminho óptico referente aos planos de incidência e saída após a formação da lente térmica com relação ao eixo, está representada na figura 1.9.

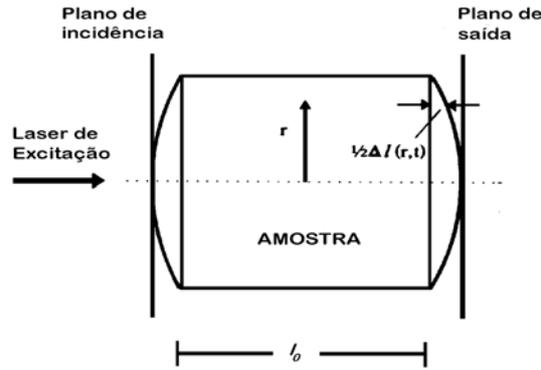


Fig. 1.9: Representação da mudança do caminho óptico depois da formação da LT.

Que podemos expressar como:

$$\Delta S(r,t) = n(r,t)l(r,t) + [\Delta l(0,t) - \Delta l(r,t)] - n(0,t)l(0,t) \quad (1.17)$$

em que  $\Delta l(0,t) - \Delta l(r,t)$  é o comprimento do caminho óptico através do ar em  $(r,t)$  e

$$\Delta l(r,t) = \left( \frac{\partial l}{\partial T} \right)_{T_0} \Delta T(r,t) \quad (1.18)$$

Expandindo (1.17) em série de Taylor, temos:

$$\Delta S(r,t) = l_0 \left[ \frac{(n_0 - 1)}{l_0} \left( \frac{\partial l}{\partial T} \right)_{T_0} + \left( \frac{\partial n}{\partial T} \right)_{T_0} \right] \times [\Delta T(r,t) - \Delta T(0,t)] \quad (1.19)$$

em que  $l_0$  é a espessura da amostra,  $n_0$  o índice de refração para a temperatura  $T_0$ , e

$$\left( \frac{dS}{dT} \right) = \left( \frac{n_0 - 1}{l_0} \right) \left( \frac{\partial l}{\partial T} \right)_{T_0} + \left( \frac{\partial n}{\partial T} \right)_{T_0} \quad (1.20)$$

é o coeficiente de temperatura do comprimento do caminho óptico da amostra. O primeiro termo da equação se refere à variação da espessura da amostra enquanto o segundo termo se refere à variação do índice de refração.

Enfatizamos que no caso de aquecimento não homogêneo, como ocorre quando uma amostra sólida é irradiada com um feixe laser, a equação (1.20) para  $dS/dT$  deve ser modificada para contemplar a contribuição do stress óptico que pode ser induzido. Desta forma,  $dS/dT$  para a lente térmica deve ser escrito como [16,26,41]:

$$\frac{dS}{dT} = (n_0 - 1)(1 + \nu)\alpha + \frac{dn}{dT} + \frac{1}{4}n_0^3 Y\alpha(q_{11} + q_{12}) \quad (1.21)$$

em que  $\Delta q = \frac{1}{4}n_0^3 Y\alpha(q_{11} + q_{12})$  é o termo de stress óptico,  $\nu$  é o coeficiente de Poisson,  $\alpha$  é o coeficiente de expansão térmica linear,  $Y$  é o módulo de Young e  $q_{11}$  e  $q_{12}$  são os coeficientes de stress ópticos.

Ao passar pela lente térmica, o feixe de prova sofrerá uma leve distorção na sua frente de onda. Esta distorção pode ser escrita como uma diferença de fase adicional, que é relacionada com a mudança no caminho óptico em relação ao eixo, como:

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda_p} l_0 \left( \frac{dS}{dT} \right) [\Delta T(r, t) - \Delta T(0, t)] \quad (1.22)$$

$\Phi$  é a diferença de fase induzida no feixe de prova, quando este passa pela lente térmica,  $\lambda_p$  é o comprimento de onda do feixe de prova,  $l_0$  é a espessura da amostra na temperatura inicial  $T_0$ , e  $dS/dT$  é a mudança no caminho óptico com a temperatura ( $K^{-1}$ ). Substituindo a equação (1.13) em (1.22), temos:

$$\Phi = \frac{\theta}{t_c} \int_0^t \frac{1}{(1 + 2t'/t_c)} \left\{ 1 - \exp \left[ \frac{-\left(2r^2 / \omega_{0e}^2\right)}{(1 + 2t'/t_c)} \right] \right\} dt' \quad (1.23)$$

em que

$$\theta = -\frac{P_e A_e l_0}{k \lambda_p} \left( \frac{dS}{dT} \right)_p \quad (1.24)$$

$\theta$  é aproximadamente a diferença de fase do feixe de prova entre  $r = 0$  e  $r = \sqrt{2}\omega_{0e}$ , induzida pela lente térmica.

#### **Determinação da propagação do feixe de prova.**

A amplitude complexa do campo elétrico do feixe de prova no modo  $TEM_{00}$  que incide na amostra pode ser escrita como [24,42]:

$$U_p(r, Z_1, t) = \sqrt{\frac{2P_p}{\pi}} \left( \frac{1}{\omega_{1p}} \right) \exp \left[ -j \frac{\pi}{\lambda_p} \left( 2Z_1 + \frac{r^2}{R_{1p}} \right) - \frac{r^2}{\omega_{1p}^2} \right] \quad (1.25)$$

Em que  $P_p$  é a potência total do feixe,  $R_{1p}$  é o raio de curvatura do mesmo na posição  $Z_1$ , e  $Z_1$  é a distância entre a cintura do feixe de prova e a amostra. A amplitude complexa do feixe de prova que sai da amostra, e que está sujeito a uma diferença de fase  $\Phi$  devido à formação da lente térmica pode ser expressa como [24,30,42]:

$$U_p(r, Z_1, t) = B \exp \left[ -j \left( \frac{\pi}{\lambda_p} \frac{r^2}{R_{1p}} + \Phi \right) - \frac{r^2}{\omega_{1p}^2} \right] \quad (1.26)$$

em que

$$B = \sqrt{\frac{2P_p}{\pi}} \frac{1}{\omega_{1p}} \exp \left( -j \frac{2\pi}{\lambda_p} Z_1 \right) \quad (1.27)$$

Assumimos que a potência do feixe de prova absorvida pela amostra é desprezível quando comparada com a potência do feixe de excitação.

Quando o feixe de prova sai da amostra e propaga-se até o detector, ele pode ser tratado a partir da teoria de difração de Fresnel. Considerando o centro do feixe de prova no detector, a amplitude complexa em coordenadas cilíndricas é dada por [24].

$$U_P(r, Z_1 + Z_2) = j \frac{2\pi}{\lambda_p Z_2} \exp\left(-j \frac{2\pi}{\lambda_p} Z_2\right) \int_0^\infty U_P(r, Z_1, t) \exp\left(-j \frac{\pi}{\lambda_p Z_2} r^2\right) r dr \quad (1.28)$$

$Z_1 + Z_2$  é a distância entre a cintura do feixe de prova e o plano do detector. Substituindo (1.26) em (1.28) e fazendo:

$$g = (r^2 / \omega_{1P}^2) \quad (1.29)$$

$$r dr = (1/2) \omega_{1P}^2 dg \quad (1.30)$$

$$C_1 = B \left( j \frac{\pi \omega_{1P}^2}{\lambda_p Z_2} \right) \exp\left(-j \frac{2\pi}{\lambda_p} Z_2\right) \quad (1.31)$$

temos

$$U_P(r, Z_1 + Z_2, t) = C_1 \int_0^\infty \exp\left(-g - j \left( \frac{\pi}{\lambda_p} \left( \frac{\omega_{1P}^2}{R_{1P}} + \frac{\omega_{1P}^2}{Z_2} \right) g + \Phi \right)\right) dg \quad (1.32)$$

Para um feixe gaussiano podemos escrever:

$$\omega_{1P}^2 = \omega_{0P}^2 \left[ 1 + \left( \frac{Z_1}{Z_C} \right)^2 \right] \quad (1.33)$$

$$R_{1P} = \frac{Z_1^2 + Z_C^2}{Z_1} \quad (1.34)$$

portanto

$$\frac{\pi \omega_{1P}^2}{\lambda_p} \left( \frac{1}{R_{1P}} + \frac{1}{Z_2} \right) = \frac{Z_1}{Z_C} + \frac{Z_C}{Z_2} \left[ 1 + \left( \frac{Z_1}{Z_C} \right)^2 \right] = V' + \frac{Z_C}{Z_2} (V'^2 + 1) = V \quad (1.35)$$

em que

$$V' = \frac{Z_1}{Z_C} \quad (1.36)$$

Tomando  $Z_2 \gg Z_c$  logo  $V \sim V'$ , e a equação (1.32) pode ser escrita na forma:

$$U_p(r, Z_1 + Z_2, t) = C_1 \int_0^{\infty} \exp[-(1 + jV)g] \exp(-j\Phi) dg \quad (1.37)$$

Esta integral só pode ser resolvida se a seguinte aproximação for adotada:

$$\exp(-j\Phi) \approx 1 - j\Phi \quad (1.38)$$

Com  $\Phi \ll 1$ . Logo temos a integral na forma:

$$U_p(r, Z_1 + Z_2, t) = C_1 \int_0^{\infty} (1 - j\Phi) \exp[-(1 + jV)g] dg \quad (1.39)$$

usando

$$m = \left( \frac{\omega_{1p}}{\omega_{0e}} \right)^2 \quad (1.40)$$

em que  $m$  é o quadrado da razão entre os raios dos feixes de prova e de excitação na amostra. A diferença de fase do feixe de prova é dada por:

$$\Phi = \frac{\theta}{t_c} \int_0^t \frac{1}{[1 + (2t'/t_c)]} \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{2mg}{1 + (2t'/t_c)}\right] \right\} dt' \quad (1.41)$$

Substituindo a equação (1.41) em (1.39), integrando em  $g$  e em  $t'$ , o resultado da intensidade do centro do laser de prova no detector ( $I(t) = |U_p(r, Z_1 + Z_2, t)|^2$ ) é:

$$I(t) = I(0) \left\{ \left[ 1 - \frac{\theta}{2} \tan^{-1} \left( \frac{2mV}{\left( (1+2m)^2 + V^2 \right) \left( \frac{t_c}{2t} \right) + 1 + 2m + V^2} \right) \right]^2 + \left[ \frac{\theta}{4} \ln \left( \frac{\left( 1 + \frac{2m}{(1+2m)} \right)^2 + V^2}{(1+2m)^2 + V^2} \right) \right]^2 \right\} \quad (1.42)$$

em que

$$I(0) = \left| \frac{C_1}{1 + jV} \right|^2 \quad (1.43)$$

$I(0)$  é o valor para  $I(t)$  quando  $t$  ou  $\theta$  é zero.

O segundo termo da equação (1.42) vem da aproximação realizada na integral de Fresnel. Através do método de calculo numérico pode-se verificar que este termo pode ser desprezado [24]. Portanto, devemos considerar somente o primeiro termo desta equação, como sendo:

$$I(t) \approx I(0) \left\{ 1 - \frac{\theta}{2} \tan^{-1} \left[ \frac{2mV}{\left( (1+2m)^2 + V^2 \right) \left( \frac{t_C}{2t} \right) + 1 + 2m + V^2} \right] \right\}^2 \quad (1.44)$$

lembrando que

$$m = \left( \frac{\omega_{1p}}{\omega_{0e}} \right)^2; V = \frac{Z_1}{Z_C} \text{ quando } Z_2 \gg Z_C; t_C = \frac{\omega_{0e}^2}{4D}; \theta = -\frac{P_e A_e l_0}{k\lambda_p} \left( \frac{dS}{dT} \right)_p$$

A equação (1.44) é a descrição do sinal de lente térmica no detector, e deve ser utilizada para ajuste teórico dos dados experimentais.

### 1.1.3 Eficiência Quântica de Fluorescência

A eficiência quântica de fluorescência  $\eta_F$  é definida como a probabilidade de emissão de um fóton por fóton absorvido. Na equação (1.24) foi considerado que toda a energia absorvida pela amostra é convertida em calor gerando então a lente térmica, o que nem sempre é verdadeiro. A figura 1.10 mostra um exemplo de amostra fluorescente. Este é o espectro de emissão para o monocristal Nd:YAG, obtido a partir da excitação da amostra com um laser de  $\text{Ar}^+$  sintonizado no comprimento de onda de 514nm.

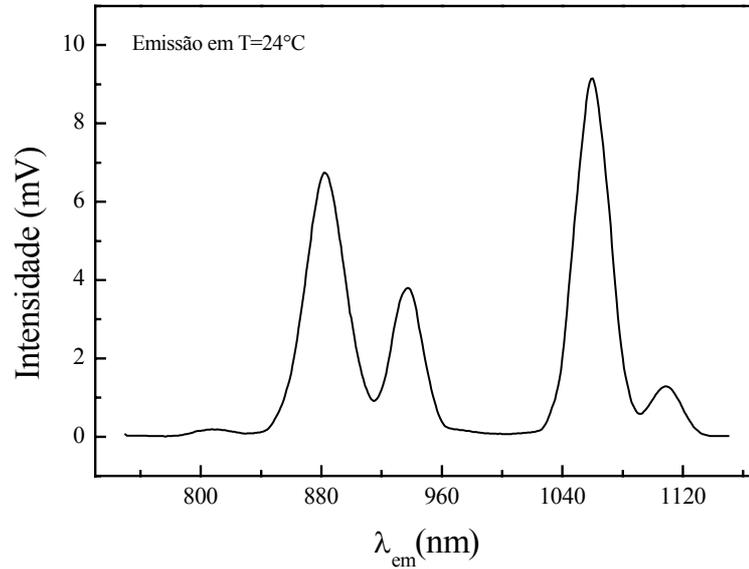


Figura 1.10: Espectro de emissão do Nd:YAG bombeado com laser de Argônio em 514 nm. A largura da fenda do monocromador foi ajustada para 1,5mm.

No caso de amostras fluorescentes, em geral após a absorção de radiação em um determinado comprimento de onda, ocorre a posterior emissão de parte desta radiação em outros comprimentos de onda. Conseqüentemente, a energia da radiação emitida não contribuirá para a formação da LT. No entanto, sempre haverá uma fração da energia absorvida que será convertida em calor. Portanto, em amostras fluorescentes a energia absorvida será convertida tanto em calor quanto em fluorescência. Conseqüentemente, a LT e a fluorescência serão complementares entre si. Devemos então introduzir um termo de correção na equação (1.24), de modo a considerar corretamente apenas a energia convertida em calor na geração da lente térmica [28].

Na figura 1.11 temos a representação de um sistema de quatro níveis de energia. Considerando que o decaimento de (2) para (3) seja totalmente radiativo ( $\eta_F = 1$ ), a fração de energia convertida em calor é:

$$\phi = 1 - \frac{\lambda_{ex}}{\langle \lambda_{em} \rangle}$$

No caso deste decaimento ser totalmente não-radiativo, toda a energia absorvida é convertida em calor ( $\eta_F = 0$ ) e temos como resultado a equação (1.24).

Portanto temos:

$$\phi = 1 - \eta_F \frac{\lambda_{ex}}{\langle \lambda_{em} \rangle} \quad (1.45)$$

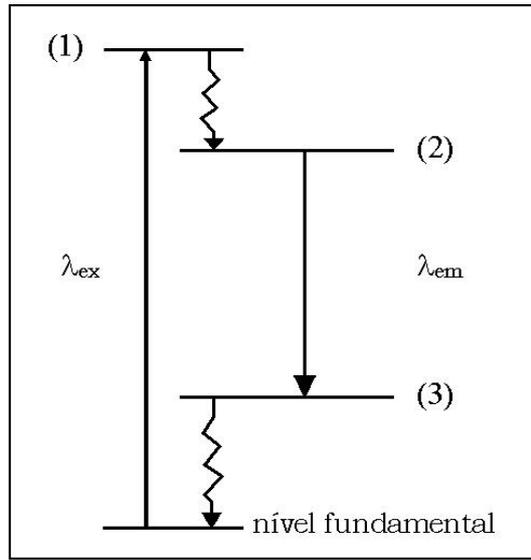


Figura 1.11: Representação de um sistema de quatro níveis.

Deste modo, podemos utilizar a espectroscopia de lente térmica para determinar  $\phi$ , e posteriormente calcular a eficiência quântica de fluorescência  $\eta_F$ . Reescrevendo a equação (1.24) para considerar a fluorescência, teremos:

$$\theta = -\frac{P_e A_e l_o}{k \lambda_p} \left( \frac{dS}{dT} \right)_p \left( 1 - \eta_F \frac{\lambda_{ex}}{\langle \lambda_{em} \rangle} \right) = -\frac{P_e A_e l_o}{k \lambda_p} \phi \left( \frac{dS}{dT} \right)_p \quad (1.46)$$

Esta é a equação que deve ser utilizada para a análise dos dados experimentais de LT de amostras fluorescentes.

## 2 Objetivos

O objetivo principal deste trabalho é utilizar a espectroscopia de lente térmica, a calorimetria de relaxação térmica, a interferometria de Fabry-Perot e a fotoluminescência para determinar as propriedades ópticas e térmicas do monocristal Nd:YAG:

1- À temperatura ambiente:

- Determinar os valores da difusividade térmica e do parâmetro  $\theta$ , que descreve a amplitude do sinal de lente térmica, para o monocristal Nd:YAG;
- Correlacionar os dados de difusividade térmica com as medidas de densidade e calor específico determinados separadamente, para calcular a condutividade térmica do cristal;
- Utilizar os valores do parâmetro  $\theta$  e da condutividade térmica, para determinar o parâmetro  $dS/dT$  do cristal;
- Correlacionar os dados da ELT com aqueles obtidos nas medidas com o interferômetro de Fabry-Perot, para determinar o coeficiente de expansão térmica e do coeficiente térmico do índice de refração da amostra.

2- Em função da temperatura

- Determinar os valores da difusividade térmica e do parâmetro  $\theta$ ;
- Correlacionar os dados da difusividade térmica com os valores da densidade e do calor específico para determinar a condutividade térmica da amostra em função da temperatura;
- Correlacionar os dados da difusividade térmica com os valores de  $\theta$  e da eficiência quântica de fluorescência, para obter a variação do caminho óptico da amostra em função da temperatura;
- Correlacionar os dados obtidos com a ELT com a medida de  $dS/dT$  no interferômetro de Fabry-Perot, para determinar o coeficiente de expansão térmica e o coeficiente térmico do índice de refração em função da temperatura.

## Capítulo 3

### Experimental

#### 3.1 Amostra

Os experimentos deste trabalho foram realizados em uma amostra do monocristal Nd:YAG fornecida pelo Dr. O. L. Antipov. A composição química da mesma é  $Y_3Al_5O_{12}$  com uma concentração de  $Nd^{+3}$  de 0,5%. Para os experimentos o cristal foi polido para obter-se um disco com 4,2 mm de espessura e 4 mm de diâmetro. O coeficiente de absorção óptica em 514nm foi determinado a partir de medidas espectrofotométricas, sendo  $0,26\text{ cm}^{-1}$ . A figura 3.1 mostra o diagrama dos níveis de energia simplificado para o  $Nd^{+3}$  [1]. O íon  $Nd^{+3}$  apresenta um sistema de quatro níveis fluorescentes. O nível laser inicial é o  $^4F_{3/2}$ .

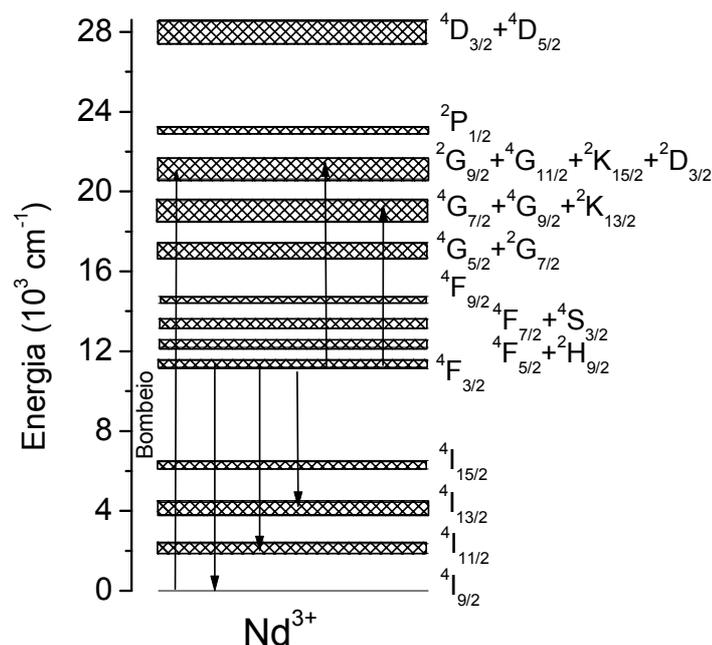


Figura 3.1: Diagrama dos níveis de energia simplificado para o  $Nd^{+3}$ .

No experimento de LT que pretendemos realizar, os processos de relaxação não radiativos mostrados na figura 3.1 são os responsáveis pelo aquecimento da região iluminada e conseqüentemente da geração do efeito de LT. Além da razão luz absorvida/luz emitida

representada na figura 3.1 podem ocorrer outros mecanismos, como por exemplo, absorção do estado excitado e ainda conversão ascendente de luz. Esses dois últimos processos são desprezíveis se comparados aos mencionados anteriormente. As figuras 3.2 e 3.3 mostram os espectros de absorção do estado excitado e de conversão ascendente realizados pelo professor Dr. Luiz Antonio de Oliveira Nunes do Instituto de Física da USP-SC. Nota-se que para obter esses espectros foi necessária a utilização de uma potência de 12 W para o laser de argônio com uma focalização feita com uma lente de 5cm de distância focal. Portanto, observa-se que esses dois efeitos são extremamente pequenos, e serão desprezados durante as análises dos nossos resultados de LT.

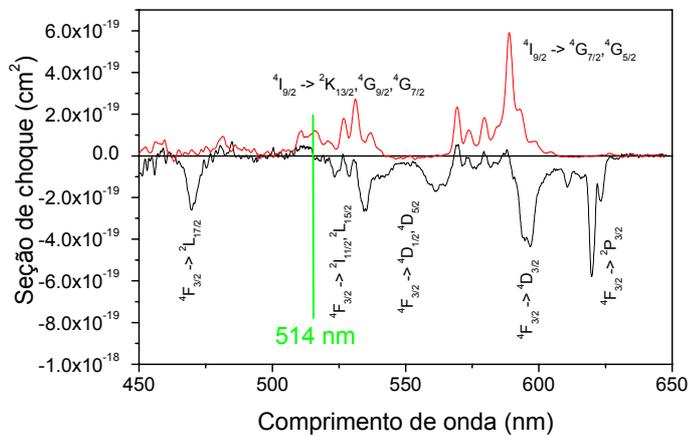


Figura 3.2: Espectro de absorção do estado excitado.

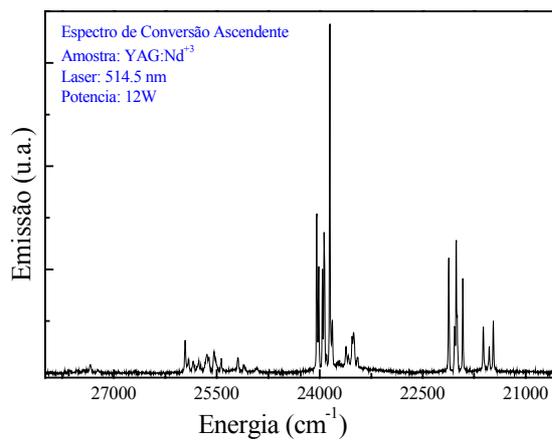


Figura 3.3: Espectro de emissão da conversão ascendente.

### 3.1 Descrição do experimento de lente térmica

Para a realização dos experimentos através da espectroscopia de lente térmica, utilizamos o arranjo experimental no modo descasado, representado na figura 3.4. LE é o laser de excitação; LP é o laser de prova;  $M_i$  são espelhos; O é o obturador; L1 e L2 são lentes convergentes; A é a amostra; UA é a unidade de aquecimento; CT é o controlador de temperatura da unidade de aquecimento;  $F_1$  é um filtro que permite a passagem da luz do laser de prova; P é um orifício com aproximadamente 2 mm de diâmetro; F1 e F2 são fotodiodos; OD é o osciloscópio digital e PC é um microcomputador.

Os lasers utilizados foram:

-Argônio, Coherent modelo Innova 90 Plus com 6 Watts, utilizado como laser de excitação;

-He-Ne, Uniphase com 2mW, utilizado como laser de prova.

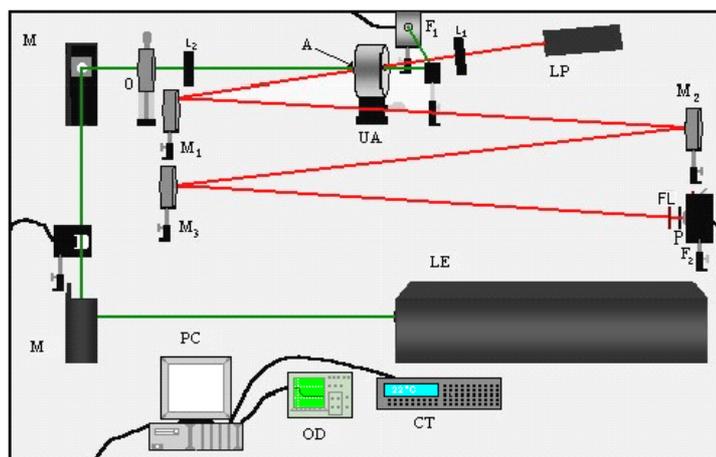


Figura 3.4: Configuração experimental de LT no modo descasado.

Utilizamos para os experimentos fotodiodos que possuem resposta linear para a variação de intensidade da luz e com tempo de resposta na escala de microssegundos. O osciloscópio utilizado foi da marca Hewlett-Packard, modelo 54615B, 500Mhz, equipado com memória para armazenamento de dados. O fotodiodo F1 foi utilizado como mecanismo de disparo para iniciar a aquisição dos dados a partir do início da formação da lente térmica.

Para os experimentos em função da temperatura, a amostra de Nd:YAG foi colocada em uma unidade de aquecimento elétrico utilizando resistores, conforme representado na figura 3.5.

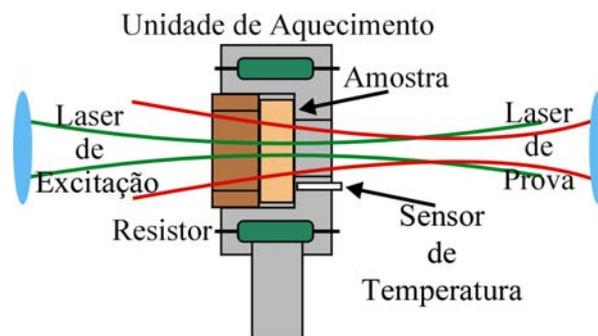


Figura 3.5: Unidade de aquecimento.

A temperatura da amostra foi variada no intervalo entre 20°C e 180°C utilizando um controlador de temperatura LakeShore 340. A abertura no centro da unidade de aquecimento permite a passagem dos dois feixes laser de modo que ambos estejam centralizados na amostra. As lentes L1 e L2 são montadas sobre transladores *XY* para permitir um perfeito alinhamento dos dois feixes. Todo sistema foi montado sobre uma mesa óptica, da marca Melles Griot, tamanho 1,8m x 2,0m. A incidência do laser de excitação na amostra foi controlada por um obturador de luz da marca Melles Griot, acionado por sinais digitais provenientes da porta de comunicação paralela do microcomputador Pentium II 450MHz. O sistema de aquisição utilizado foi uma placa de comunicação do tipo GPIB (Ziathec padrão IEEE488) comandada por instruções de código, executadas no ambiente gráfico Windows. O laser de prova, após passar pela amostra, foi desviado através dos espelhos M1-M2-M3 para o fotodiodo conectado ao sistema de aquisição de dados. Um diafragma com abertura de 2mm foi colocado sobre o fotodiodo possibilitando analisar somente o centro do feixe laser. O ângulo de inclinação do laser de prova na amostra foi aproximadamente 2° em relação ao feixe de excitação. Para impedir que a luz ambiente ou do laser de argônio contribuíssem para o sinal, um filtro com banda passante em 632,8nm foi posicionado na frente do fotodiodo, F2.

Para os experimentos os seguintes passos são adotados: a amostra é posicionada na cintura do feixe do laser de excitação e a aproximadamente 10cm da cintura do feixe do laser de prova, conforme mostra a Figura 3.5. Em seguida, através do espelho M3 realizamos o alinhamento de modo que o centro do feixe do laser de prova passe pelo diafragma, que se encontra na abertura do fotodiodo F2. Maximiza-se então o sinal no detector, através do ajuste do espelho M3. Durante este processo o feixe do laser de excitação fica interrompido através de um anteparo posicionado antes do espelho M. O próximo passo a ser seguido é fazer com que o feixe

do laser de excitação passe através da amostra. Para que se obtenha um perfeito alinhamento a lente L1 é ajustada de modo que o feixe do laser de excitação passe pelo centro do feixe do laser de prova. Nesta fase duas situações podem ocorrer: se a amostra apresenta  $dS/dT$  negativo, o laser de prova torna-se mais divergente ao passar pela lente térmica da amostra e portanto o sinal no fotodiodo F2 sofre uma redução; caso contrário, o feixe se torna mais convergente, aumentando o sinal no detector. Portanto, o processo de alinhamento consiste sempre em minimizar o sinal do laser de prova após passar pela lente térmica quando  $dS/dT$  for negativo ou maximiza-lo se  $dS/dT$  for positivo. Uma vez obtido o alinhamento, o experimento no modo transiente pode ser realizado automaticamente com o controle eletrônico do obturador. Ao abri-lo, o sinal gerado no detector é armazenado em função do tempo e assim uma curva transiente característica do tempo de formação da lente térmica é transferida para o computador. Um cuidado a ser tomado, é minimizar o possível atraso na geração do sinal devido à velocidade de abertura do obturador. Isto pode interferir nos valores dos dados do início do transiente, que é exatamente a região mais importante para o ajuste teórico dos dados obtidos. Nosso obturador é composto por cinco lâminas que se abrem radialmente, e assim, observamos que se o laser estiver centralizado, o referido atraso na geração do sinal pode ser significativamente minimizado.

Para as medidas em função da temperatura utilizamos uma taxa de aquecimento de  $1,3^{\circ}\text{C}$  por minuto e o intervalo de tempo entre dois transientes consecutivos foi de 35 segundos, dando uma resolução de aproximadamente dois pontos experimentais por  $^{\circ}\text{C}$ .

### **3.1.1 Determinação dos parâmetros geométricos do sistema**

Depois de obtida a curva para o transiente de lente térmica, para ajuste dos dados através da equação (1.44), é necessário determinar os valores de  $m$  e  $V$ . Isto é, precisamos determinar os parâmetros geométricos da configuração experimental adotada. Nesse procedimento, realizamos a medida da posição da cintura do feixe e do raio do mesmo, que pode ser realizado através de um experimento independente, no qual um orifício de aproximadamente  $25\mu\text{m}$  de diâmetro é colocado na frente de um fotodetector. Deste modo, monitoramos a intensidade do centro do feixe do laser em diferentes posições ao longo do eixo  $z$ , conforme está representado na figura 3.6.

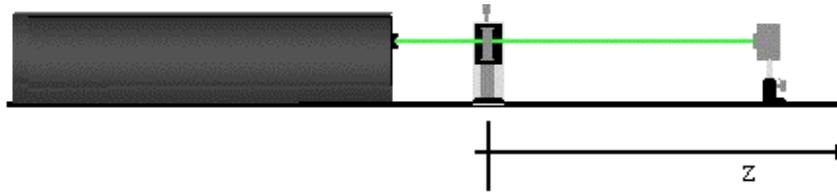


Figura 3.6: Montagem experimental para determinação dos parâmetros geométricos.

A intensidade de um feixe laser gaussiano  $TEM_{00}$  (modo fundamental) ao longo do eixo  $Z$  pode ser expressa por [39,42]:

$$I(r) = \frac{2P}{\pi\omega^2(Z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(Z)}\right) \quad (3.1)$$

E para o raio do feixe na posição  $Z$ :

$$\omega^2(Z) = \omega_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{Z}{Z_c} \right)^2 \right] \quad (3.2)$$

Nas equações anteriores,  $P$  é a potência do feixe laser,  $\omega_0$  é o raio na cintura ( $Z = 0$ ) e  $r$  é a coordenada radial. Como o orifício tem diâmetro muito menor que o do feixe laser, ele permite passar somente o centro do feixe. Assim, o detector descreve a mudança da intensidade em função da posição ao longo do eixo  $Z$ . As figuras 3.7 e 3.8 mostram os perfis dos feixes dos lasers de prova e de excitação.

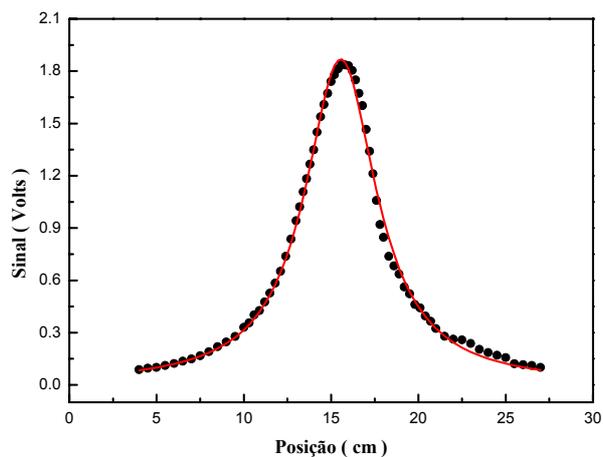


Figura 3.7: Perfil do laser de prova (He-Ne).

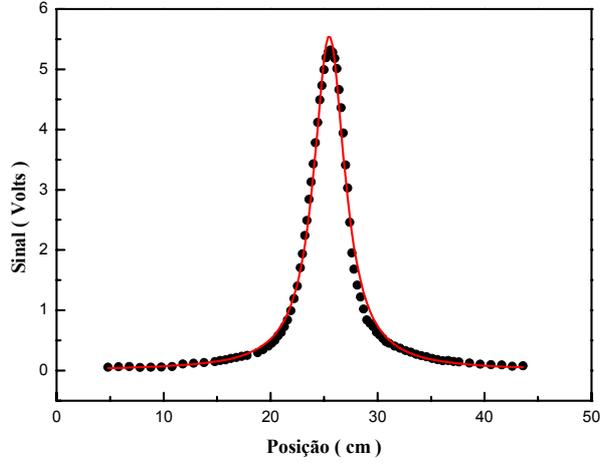


Figura 3.8: Perfil do laser de excitação (Argônio).

A potência no detector pode ser expressa como:

$$P_{\text{det}} = 2\pi \int_0^{\delta} I(r) dr \approx \frac{2P\delta^2}{\omega^2(Z)} \quad (3.3)$$

$$\delta^2 \ll \omega^2(Z) \quad (3.4)$$

em que  $\delta$  é o raio do orifício.

Substituindo  $Z$  por  $(Z-Z_0)$ , as equações (3.2) e (3.3) podem ser escritas como:

$$\omega^2(Z - Z_0) = \omega_0^2 \left[ 1 + \left( \frac{Z - Z_0}{Z_C} \right)^2 \right] \quad (3.5)$$

$$P_{\text{det}} \approx \frac{2P\delta^2}{\omega^2(Z - Z_0)} \quad (3.6)$$

$$\delta^2 \ll \omega^2(Z - Z_0) \quad (3.7)$$

Substituindo a equação (3.5) em (3.6) temos:

$$P_{\text{det}}(Z - Z_0) \approx \frac{2P\delta^2}{\omega_0^2} \left[ \frac{1}{1 + (Z - Z_0)^2 / Z_C^2} \right] \quad (3.8)$$

em que  $(2P\delta^2 / \omega_0^2)$  é uma constante que depende do feixe de laser usado no experimento

e

da área de incidência no detector;  $Z_0$  é a posição da cintura do feixe;  $\omega_0$  é o raio da cintura do feixe laser e  $Z_c$  é a distância confocal do laser devido à lente (colocada em  $Z = 0$ ).

A equação (3.8) pode ser usada para realizarmos os ajustes dos dados experimentais obtidos ao longo do eixo  $Z$ . Essa equação fornece os valores de  $Z_0$ ,  $Z_c$  e  $(2P\delta^2/\omega_0^2)$ .

Encontramos a distância confocal por:

$$Z_c = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad (3.9)$$

Assim, podemos determinar  $\omega_0$  (raio do feixe laser). Na Figura 3.7 temos o ajuste dos dados experimentais na medida da posição da cintura do laser de prova.

Utilizando o valor de  $Z_c$  encontrado podemos então calcular os raios dos lasers na amostra utilizando para isso a equação (3.10) e também os valores de  $m$  e  $V$ .

Os valores dos perfis dos lasers e os parâmetros geométricos usados nos experimentos foram:

Tabela 3.1 – Parâmetros experimentais utilizados.

Potência do laser de prova na amostra	$\approx 2\text{mW}$
Raio do laser de excitação na amostra ( $\omega_l$ )	$(4,9 \pm 0,1) \times 10^{-3} \text{ cm}$
Distância confocal do laser de excitação	$(1,47 \pm 0,02) \text{ cm}$
Distância confocal do laser de prova	$(2,05 \pm 0,02) \text{ cm}$
Raio do laser de prova na amostra ( $\omega_{lp}$ )	$(20,1 \pm 0,1) \times 10^{-3} \text{ cm}$
$m$	$(17,2 \pm 0,2)$
$V$	$(2,46 \pm 0,02)$
Comprimento de onda do laser de excitação	514,5nm

## 3.2 Medidas complementares

### 3.2.1 Calor específico

A técnica calorimetria de relaxação térmica utilizada neste trabalho foi também montada em nosso laboratório. A figura 3.9 mostra o diagrama experimental utilizado.

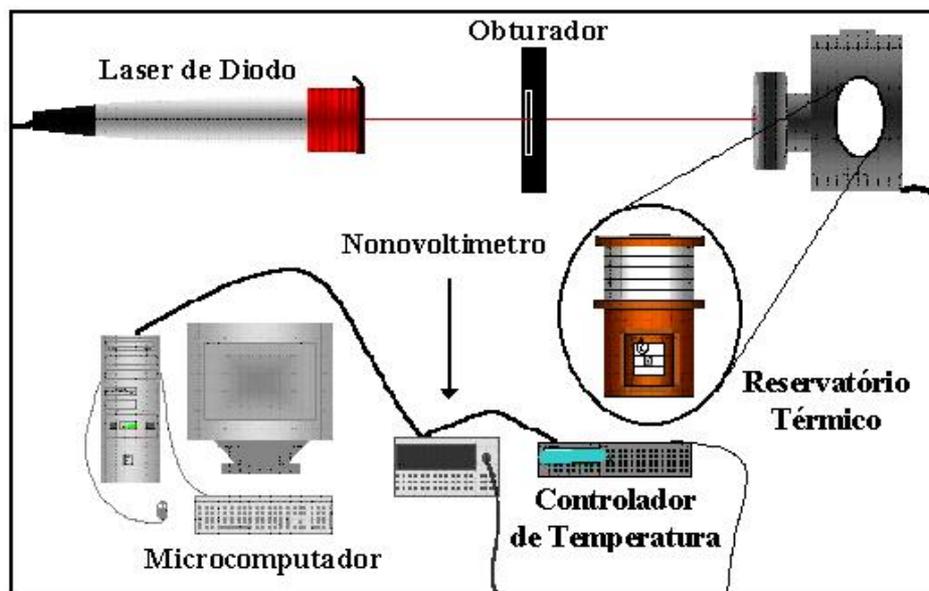


Figura 3.9: Montagem experimental da calorimetria de relaxação térmica.

O sistema consiste em um reservatório térmico de cobre, vazado para permitir a passagem dos fios do termopar. Um substrato de prata é acoplado ao reservatório térmico através de fios de cobre, os quais são fixados usando-se tinta prata. Para obter-se uma melhor uniformidade da temperatura na amostra e no suporte foi utilizada uma blindagem térmica. Nesta blindagem foi feita uma abertura para permitir a passagem do feixe laser. Com este arranjo são minimizados os eventuais efeitos de convecção térmica. Uma segunda blindagem, em aço inox, faz o isolamento externo. Finalmente, uma janela óptica localizada nesta blindagem permite a passagem do feixe laser.

A amostra foi fixada no substrato com pasta térmica, que permite um bom contato térmico e possui calor específico muito baixo. Para fornecer potência utilizamos um laser de diodo. A incidência desse feixe de luz no sistema (substrato-amostra) induz uma diferença de temperatura entre o substrato e o reservatório. Essa diferença é medida através de um termopar em configuração diferencial (substrato-reservatório), o qual foi ligado a um nanovoltímetro.

Assim, ao se interromper o feixe do laser o nanovoltímetro registra a queda de temperatura do sistema em função do tempo. A curva de decréscimo do sinal é transferida para o microcomputador por meio da interface GPIB, para posterior análise. A variação de temperatura utilizada em cada medida foi da ordem de 0,4K, o que permite uma resolução entre duas temperaturas consecutivas de aproximadamente 0,5K. Para esses experimentos é necessário que a estabilidade seja da ordem de mK, o que pode ser obtido com o controlador de temperatura utilizado. Um ponto importante a ser ressaltado é que para essas medidas não é necessário que o sistema esteja em uma câmara com vácuo.

### Modelo Teórico

Consideremos inicialmente o sistema (reservatório térmico + substrato) a uma temperatura inicial  $T_0$ . Quando o calor é fornecido ao substrato como resultado da absorção da luz do laser, gera-se uma diferença de temperatura entre o substrato e o reservatório [43-46]. Uma fração dessa energia térmica será conduzida para o reservatório através dos fios que sustentam o substrato, assim como do ar e da radiação. Deste modo temos:

$$P_{abs} = C_s \frac{d\Delta T_{sr}}{dt} + k\Delta T_{sr} \quad (3.10)$$

em que:

$P_{abs}$  é a potência total absorvida.

$C_s$  é a capacidade térmica do sistema.

$k$  é a condutância efetiva total do sistema (fios+ar+radiação).

$\Delta T_{sr}$  é a diferença de temperatura entre o substrato e o reservatório térmico.

A medida que o substrato absorve energia,  $\Delta T_{sr}$  aumenta, e conseqüentemente, aumenta também a quantidade de energia conduzida até o reservatório. Depois de um intervalo de tempo da ordem de um minuto, o sistema entra no regime estacionário e toda a energia fornecida ao substrato é conduzida ao reservatório térmico. Nesta situação tem-se:

$$P_{abs} = k\Delta T_{sr\max} \quad (3.11)$$

No instante em que se interrompe o feixe do laser, a energia acumulada ( $C_s\Delta T_{sr}$ ) do

substrato é transferida para o reservatório térmico. Assim, tem-se:

$$C_s \frac{d\Delta T_{sr}}{dt} + k\Delta T_{sr} = 0 \quad (3.12)$$

A medida em que o calor é transferido para o reservatório térmico, a diferença de temperatura diminui. De acordo com a solução da equação (3.12), temos que:

$$\Delta T_{sr} = \Delta T_{sr\max} \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) \quad (3.13)$$

em que o tempo de relaxação é:

$$\tau_s = \frac{C_s}{k} \quad (3.14)$$

Conhecendo a potência absorvida pelo substrato e medindo-se a diferença de temperatura máxima,  $\Delta T_{sr\max}$ , obtém-se a condutância térmica ( $k$ ), através da equação (3.11). Ajustando-se a curva de decaimento  $\Delta T_{sr}(t)$  versus  $t$ , determina-se o valor de  $\tau_s$ . Assim utilizando-se as equações (3.11) e (3.14) pode-se determinar a capacidade térmica ( $C_s$ ) do substrato, como:

$$C_s = \tau_s k = \frac{\tau_s P_{abs}}{\Delta T_{sr\max}(sr)} \quad (3.15)$$

Ao fixar-se a amostra no substrato (com pasta térmica), a capacidade térmica do sistema e o tempo de relaxação aumentarão. A partir do ajuste da curva de decréscimo da temperatura, determina-se os parâmetros  $\Delta T_s$  e  $\tau_s$ . Deste modo, medindo-se o sistema sem amostra (apenas com o substrato) e com a amostra (substrato+amostra) é possível determinar o calor específico da amostra da seguinte forma:

$$c_p = \frac{C_{sistema} - C_s}{m_{amostra}} = \frac{1}{m_{amostra}} \left( \frac{P\tau_{sistema}}{\Delta T_{sistema}} - \frac{P\tau_s}{\Delta T_s} \right) \quad (3.16)$$

Como exemplo da utilização do método, a figura 3.10 mostra duas curvas que representam o decaimento da temperatura para o substrato e para o substrato com uma amostra de alumínio.

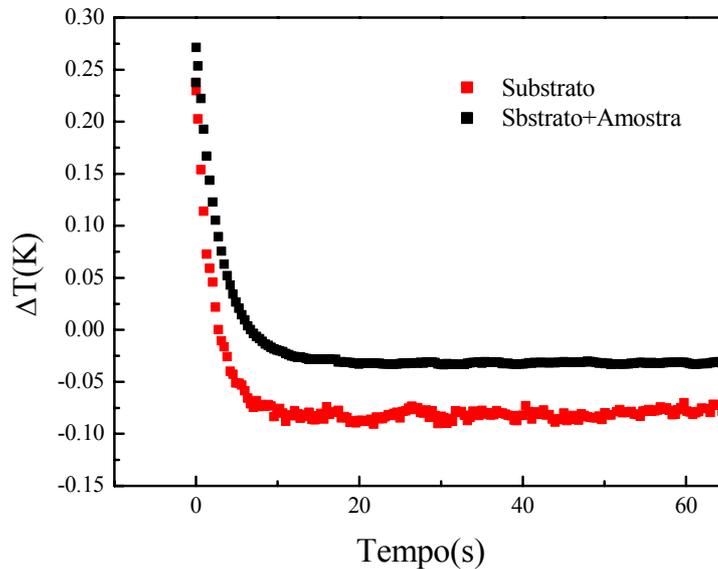


Figura 3.10: Transiente térmico para o substrato e para amostra+substrato.

Antes de realizarmos os experimentos de calor específico, devemos calibrar o sistema para saber o valor da potência do laser que chega ao substrato. Para isto, devemos fazer um conjunto de duas aquisições, a de um transiente para o substrato sem amostra e outro para o substrato com uma amostra padrão. Feito isto, determina-se o valor de  $\Delta T$  (variação da temperatura) e  $\tau$  (tempo de relaxação térmica) para os dois casos. Uma vez conhecidos os valores de  $\Delta T$  e  $\tau$  para estas duas situações, podemos determinar os valores de  $\Delta T$  e  $\tau$  da amostra. Como a amostra utilizada para calibração da potência é uma amostra padrão, o valor da capacidade calorífica é conhecido e os valores de  $\Delta T$  e  $\tau$  já foram determinados anteriormente, portanto, o valor da potência do laser que chega ao substrato é obtido pela equação (3.15).

### 3.2.2 Interferometria de Fabry-Perot

No interferômetro de Fabry-Perot, um feixe laser de He-Ne de 5mW é expandido por uma lente de comprimento focal 10cm e incide quase que perpendicularmente na superfície da amostra. As reflexões da primeira e segunda interface são então expandidas com uma segunda lente, e ajustadas de modo a produzir franjas de interferência na posição em que se encontra um fotodiodo, representado na figura 3.11. Utilizamos um controlador de temperatura da marca

LakeShore 340 para variar a temperatura de 22°C a 190°C a uma taxa de 2°C/minuto. O sinal foi monitorado utilizando-se um microvôltemetro e transferido a um microcomputador através de uma placa tipo GPIB para posterior análise.

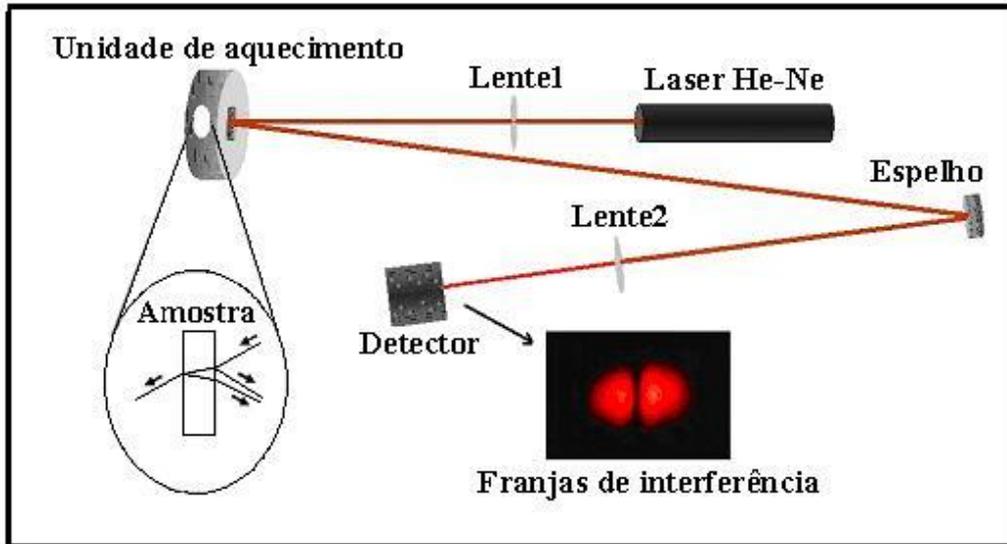


Figura 3.11: Representação do interferômetro de Fabry-Perot.

### Modelo teórico

A diferença de caminho óptico entre os dois feixes refletidos na primeira e segunda interface da amostra é dada por [47]:

$$\Delta S = 2nL \quad (3.17)$$

Têm-se máximos de interferência quando esta diferença de caminho óptico é igual a um número inteiro de comprimentos de onda, ou seja:

$$\Delta S = 2nL = \lambda m \quad \text{ou} \quad \Delta S = nL = \frac{\lambda}{2} m \quad (3.18)$$

Diferenciando (3.18) em relação a temperatura e dividindo toda a equação por  $L$  temos:

$$\frac{1}{L} \left( \frac{d}{dT} \Delta S \right) = \left( \frac{dn}{dT} \right) + n\alpha = \frac{\lambda}{2L} \left( \frac{dm}{dT} \right) \quad (3.19)$$

em que  $\frac{dL}{dT} = \alpha L$ , sendo  $L$  a espessura e  $\alpha$  é o coeficiente de expansão térmica da amostra.

Desta forma temos então que:

$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{Interf} = \left(\frac{dn}{dT}\right) + n\alpha = \frac{\lambda}{2L} \left(\frac{dm}{dT}\right) \quad (3.20)$$

$$\text{com } \frac{1}{L} \left(\frac{d}{dT} \Delta S\right) = \left(\frac{dS}{dT}\right)_{Interf}$$

O subscrito *interf* diferencia  $dS/dT$  obtido a partir do interferômetro de Fabry-Perot daquele obtida a partir da lente térmica.

Portanto, podemos escrever a variação de caminho óptico da amostra como:

$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{Interf} = \frac{\lambda}{2L} \left(\frac{dm}{dT}\right) \quad (3.21)$$

na qual  $\lambda$  é o comprimento de onda do laser utilizado,  $L$  é a espessura da amostra e  $dm$  é o número de franjas que passam pelo detector no intervalo de temperatura  $dT$ . Esta é a equação a ser utilizada para ajuste dos dados experimentais.

## Capítulo 4

### Resultados e discussão

#### 4.1 Resultados das medidas de LT no monocristal Nd:YAG à temperatura ambiente

A figura 4.1 mostra dois dos primeiros transientes de lente térmica da amostra de Nd:YAG obtido neste trabalho.

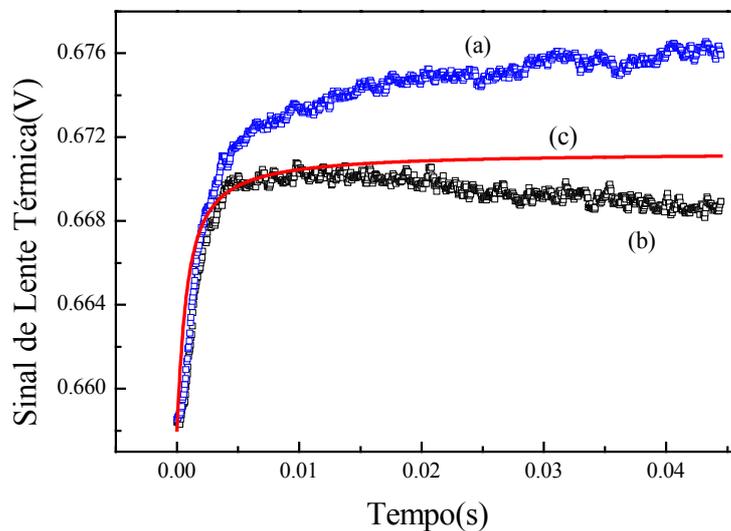


Figura 4.1: Transientes de lente térmica do Nd:YAG na temperatura ambiente. (a) e (b) são as curvas experimentais e (c) a curva simulada.

As curvas (a) e (b) mostram dois transientes muito semelhantes até aproximadamente dois milissegundos. Porém, acima deste intervalo de tempo a curva (a) tem um comportamento crescente, enquanto a curva (b) é decrescente. Estes transientes ora crescentes ora decrescentes ocorriam aleatoriamente em nossas primeiras medidas, sem que aparentemente uma lógica pudesse ser observada. Tratava-se de um resultado inesperado, principalmente porque havíamos tomado a precaução de adotar uma configuração experimental que garantisse que o diâmetro da amostra fosse muito maior do que o diâmetro do feixe de excitação, de modo a obedecer à

condição de amostra radialmente infinita, conforme prevê o modelo teórico da LT descrito no capítulo I. Esta condição é satisfeita quando a amostra, em termos radiais, é pelo menos 2,3 vezes maior do que o feixe de excitação [27]. O cristal de Nd:YAG utilizado tem 4 mm de diâmetro, enquanto o laser de excitação na posição da amostra tinha um diâmetro de aproximadamente 100 $\mu$ m, o que deveria obedecer a condição do modelo mencionada, e assim apresentar para o transiente de LT um perfil semelhante ao da curva (c), simulada a partir da equação (1.44).

Após muitas tentativas frustradas de obter o transiente da LT, verificamos que não se tratava de problemas de alinhamento e tão pouco de posicionamento da amostra, uma vez que sempre obtínhamos transientes semelhantes aos das curvas (a) e (b). Em um dos experimentos, observamos casualmente a presença de franjas de interferência no feixe de He-Ne refletido pela superfície da amostra. Notamos ainda que ao incidir o laser de excitação na amostra para induzir a lente térmica, estas franjas se deslocavam ao longo da direção transversal ao feixe, conforme o observado e mostrado na figura 4.2.

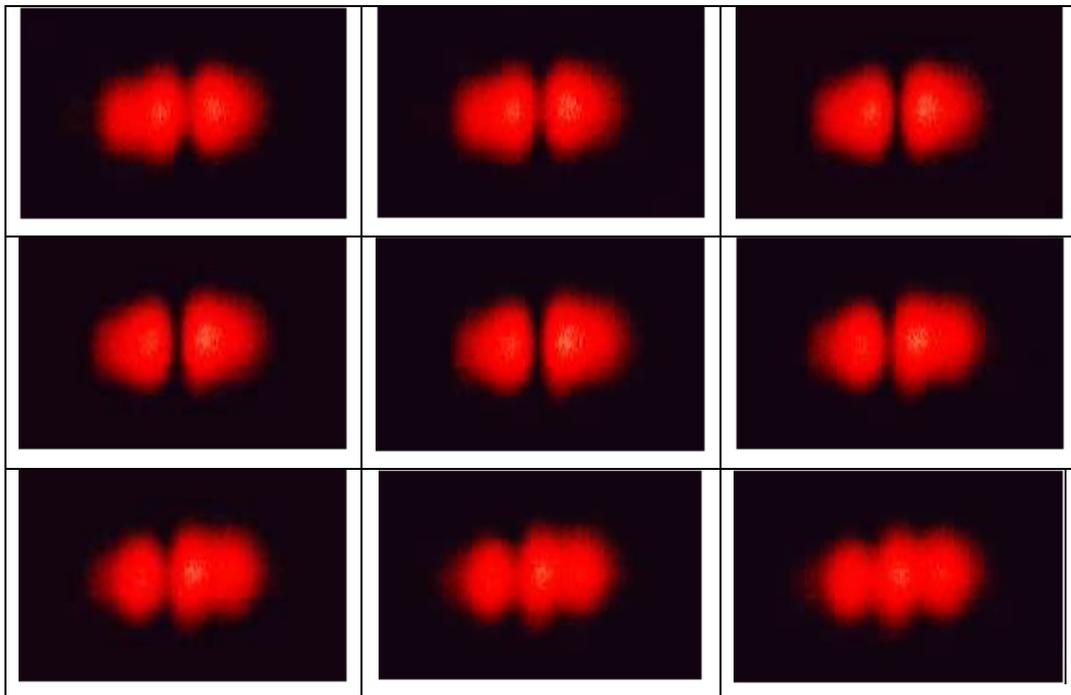


Figura 4.2: Franjas de interferência. A seqüência da esquerda para a direita mostra o deslocamento das franjas em função da iluminação da amostra com o feixe de excitação.

O deslocamento das franjas era um indicativo de que uma variação significativa no caminho óptico da amostra estaria ocorrendo. Eles foram observados tanto imediatamente após a iluminação com o laser de excitação, quanto logo depois de sua interrupção, com a diferença de que durante a relaxação da amostra o sentido do deslocamento das franjas era invertido.

Diante desta observação no padrão do feixe do laser de He-Ne refletido, passamos a considerar a hipótese de que o feixe transmitido pela amostra e que é direcionado até o detector, para que sua intensidade seja monitorada durante a obtenção do transiente de LT, também pudesse conter franjas de interferência. Isto ocorreria da seguinte forma: a fração do feixe que é refletido na segunda superfície da amostra e em seguida reflete na superfície incidente voltaria na direção do detector produzindo a interferência. Uma estimativa para a contribuição destas possíveis franjas na intensidade do laser de prova no detector deve considerar a espessura e o paralelismo das duas superfícies da amostra, assim como o índice de refração e o coeficiente de absorção óptica do cristal em 632,8nm. Como se trata de uma pequena fração do feixe, e que está sobreposta à parte transmitida do laser, não é possível observar visualmente as referidas franjas.

Para confirmar esta hipótese realizamos dois experimentos: inicialmente retiramos a amostra do arranjo experimental e com um translador micrométrico fizemos uma varredura ao longo do feixe, na direção X, determinando a intensidade da parte do feixe que ultrapassava um orifício de dois milímetros de diâmetro. Com este procedimento obtivemos a gaussiana mostrada na figura 4.3, curva (a). Em seguida retornamos a amostra ao arranjo experimental e repetimos o procedimento. O resultado está mostrado na mesma figura, curva (b). É possível verificar visualmente que com a amostra a forma do feixe apresenta um comportamento ligeiramente diferente do de uma função gaussiana, especialmente para as regiões distantes do centro do feixe. Em seguida realizamos ajustes teóricos com uma função gaussiana nas duas curvas, representados pelas linhas contínuas.

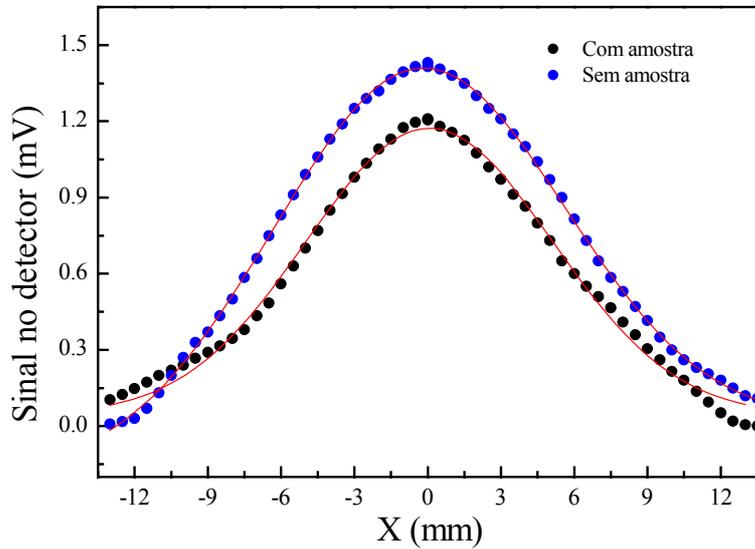


Figura 4.3: Perfil do feixe do laser de He-Ne ao longo do eixo  $x$ , transversal à direção de propagação.

O próximo passo foi subtrair as curvas ajustadas dos dados experimentais, o que está mostrado na figura 4.4. É evidente que as franjas de interferência estão presentes para o caso da curva com a amostra, provando, portanto, nossa hipótese. Há dois fatores que ainda podem interferir neste tipo de consideração: O primeiro é que o paralelismo da amostra não é perfeito e o segundo é que o filtro posicionado na frente do detector, para atenuar a intensidade do feixe ou ainda eliminar a luz ambiente, também pode contribuir para o padrão do feixe que atinge o detector.

É importante notar que embora estas franjas tenham uma intensidade da ordem de 0,6% da intensidade total do feixe, durante a formação da LT o deslocamento da franja de um máximo para um mínimo em um sinal de LT de 10%, pode significar uma flutuação de aproximadamente 6% na amplitude do sinal.

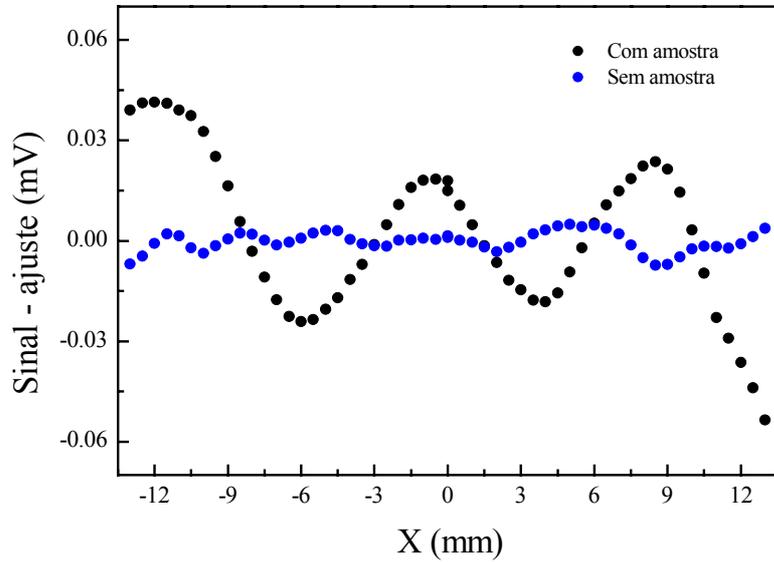


Figura 4.4: Diferença entre os dados experimentais e o ajuste teórico.

Uma vez demonstrada a ocorrência das franjas de interferência como mostrado na figura 4.4, decidimos realizar os experimentos de LT em intervalos de tempo maiores do que aqueles mostrados na figura 4.1, de modo que pudéssemos observar as franjas de interferência sobrepostas no sinal de LT. A figura 4.5 mostra as franjas de interferência sobre o sinal de LT no intervalo entre zero e 45 segundos para diferentes potências do laser de excitação. Nota-se que o aumento da potência induz um aumento no número de franjas, indicando que a temperatura da amostra está aumentando, mudando o caminho óptico e com isto, fazendo com que as franjas se desloquem ao longo do feixe na direção transversal.

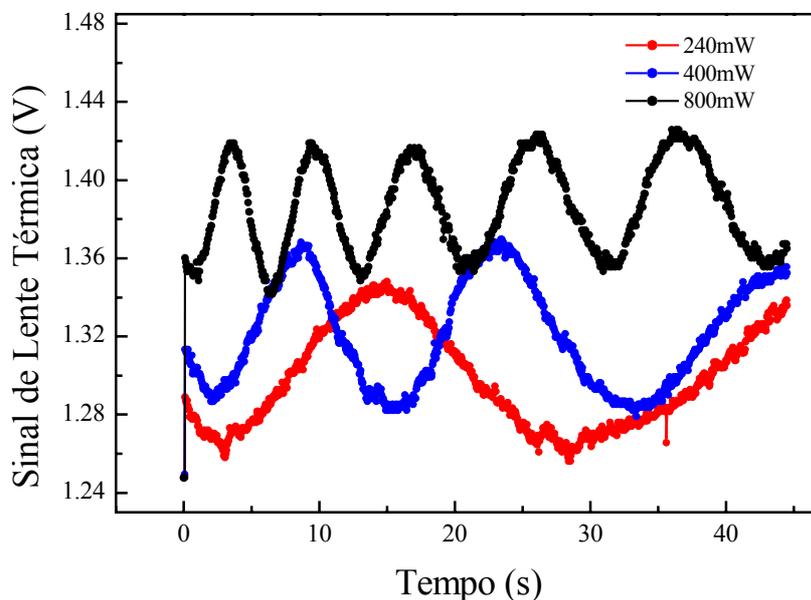


Figura 4.5: Sinal de LT obtido com amostra isolada termicamente e em tempo longo.

O alargamento das franjas em função do tempo é uma indicação de que a temperatura da amostra poderia atingir a condição de estado estacionário. Com esta indicação, decidimos realizar novos transientes com intervalos de tempo dez vezes maior, conforme mostra a figura 4.6. Essa figura mostra que o estado estacionário é certamente atingido para intervalos de tempo superiores a 4 minutos, independentemente da potência utilizada.

Estimamos que cada franja nas figuras 4.5 e 4.6 corresponda a um  $\Delta T \approx 3,8^{\circ}\text{C}$  (considerando:  $l_0 = 4,2\text{mm}$ ;  $n = 1,82$  e  $\lambda = 632,8\text{nm}$ ). Essa estimativa foi realizada adotando-se o mesmo procedimento utilizado nas medidas com o interferômetro de Fabry-Perot, que serão apresentadas mais adiante. A figura 4.6 mostra que até atingir o estado estacionário, para 800mW de potência, nove franjas passam pelo detector. Isto indica que a temperatura da amostra deve estar variando de aproximadamente  $35^{\circ}\text{C}$ . Acreditamos que este comportamento não havia sido observado nos experimentos de LT em vidros, provavelmente devido à baixa condutividade térmica destes materiais. O fato de a condutividade térmica do Nd:YAG ser alta, da ordem de 10 vezes maior do que a maioria dos vidros, indica que o calor gerado durante a formação da LT se

propaga rapidamente para a superfície do cristal. Uma vez que a condutividade térmica do ar é muito menor do que a do cristal, não haverá escoamento total do calor entre a amostra e o ar, fazendo com que ocorra um aumento de temperatura, conforme observado. Enfatizamos que esses experimentos apresentados até o presente momento foram realizados com as superfícies da amostra em contato direto com o ar.

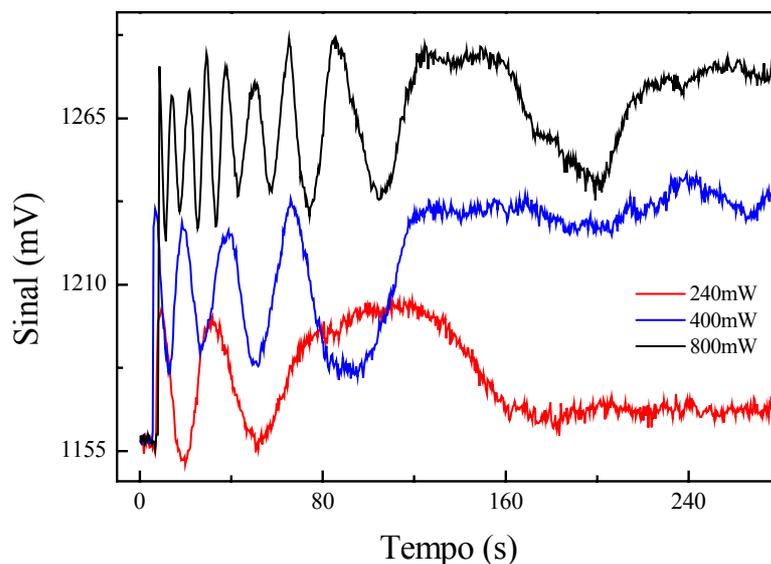


Figura 4.6: Sinal de LT em função do tempo.

Estes resultados indicam que se trata de uma condição experimental em que o experimento de LT não pode ser realizado, uma vez que as condições de contorno da continuidade do fluxo de calor e da temperatura na interface amostra-ar não são obedecidas. Portanto, nossa observação indica que é necessário introduzir um mecanismo eficiente de troca de calor nas bordas da amostra, escolher baixa potência para o laser de excitação e ainda utilizar curtos intervalos de tempo para a aquisição dos dados. Desta forma, acreditamos que os experimentos de lente térmica do Nd:YAG podem ser realizados adequadamente.

Decidimos então introduzir a amostra em um sistema de troca de calor de modo que este efeito pudesse ser evitado, conforme mostra a figura 4.7. O procedimento foi posicionar a amostra em uma camisa de alumínio com pasta térmica para melhorar o contato entre a amostra e o suporte. Este conjunto foi introduzido dentro da unidade de aquecimento.

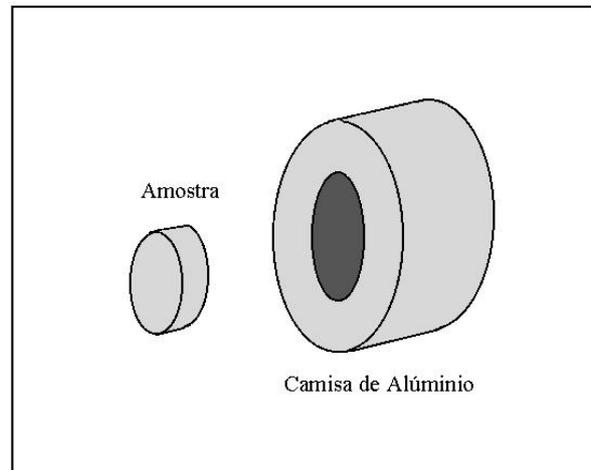


Figura 4.7: Acoplamento da amostra com a camisa de alumínio.

Para verificar a eficiência do procedimento, realizamos novas medidas em intervalos de tempo longos (até 45 segundos) e em potências diferentes. Vê-se na figura 4.8 que o procedimento adotado resultou em um transiente sem a presença do deslocamento das franjas de interferência superpostas sobre o sinal de LT. Isto indica que a incidência do feixe de excitação nesta condição, aparentemente não altera a temperatura da amostra como havia sido observado na condição anterior.

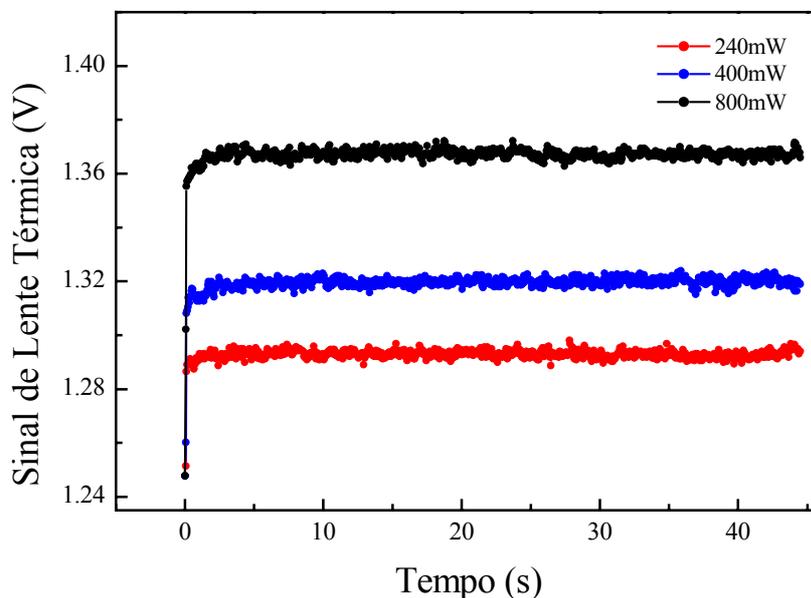


Figura 4.8: Sinal de LT com amostra na camisa de alumínio em tempo longo.

Verificamos assim, que o procedimento adotado permite a realização do experimento de LT, embora tenhamos ainda o problema de que, como fizemos o experimento em função da temperatura, as franjas se deslocam continuamente durante o processo de aquecimento, alternando máximos e mínimos no detector.

O próximo passo a ser adotado é a escolha da potência e do intervalo de tempo adequados à realização dos transientes da LT. Para determinar a melhor potência, realizamos medidas do parâmetro  $\theta$  em função da potência do laser de excitação para verificar a região em que este parâmetro varia linearmente com a potência, conforme o previsto pela equação (1.46). O resultado desta medida é mostrado na figura 4.9, na qual verifica-se que a linearidade se mantém até aproximadamente 640mW. Escolhemos utilizar a potência de 400mW por ser um valor intermediário e também por termos um sinal inicial de aproximadamente 4%, que é maior do que a relação sinal/ruído do sistema. A redução na taxa de aumento da amplitude de  $\theta$  em função da potência de excitação para a região acima de 640mW, pode ser uma indicação da ocorrência de

absorção do estado excitado e/ou processos de transferência de energia que podem resultar em conversão ascendente de luz, não contribuindo, portanto, para a formação da LT.

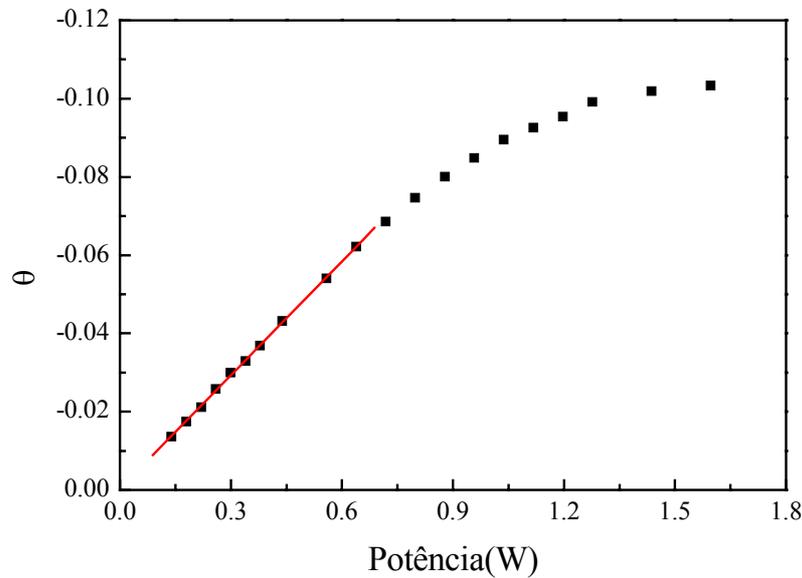


Figura 4.9: Medidas de  $\theta$  em função da potência para o Nd:YAG.

A figura 4.10 mostra um exemplo do transiente que foi obtido com a amostra na temperatura ambiente. A curva contínua representa o ajuste teórico realizado a partir da equação (1.44). Através do ajuste dos dados experimentais do sinal de lente térmica, obtivemos  $\theta = (-0,044 \pm 0,004)$  e  $t_c = (0,13 \pm 0,02)ms$ . Usando o valor de  $t_c$  na equação (1.14) obtivemos  $D = (0,045 \pm 0,007)cm^2s^{-1}$ , que está em bom acordo com o valor da literatura que é  $D = 0,048cm^2s^{-1}$  [15]. A potência do laser de excitação utilizada foi  $P_e = 400mW$ .

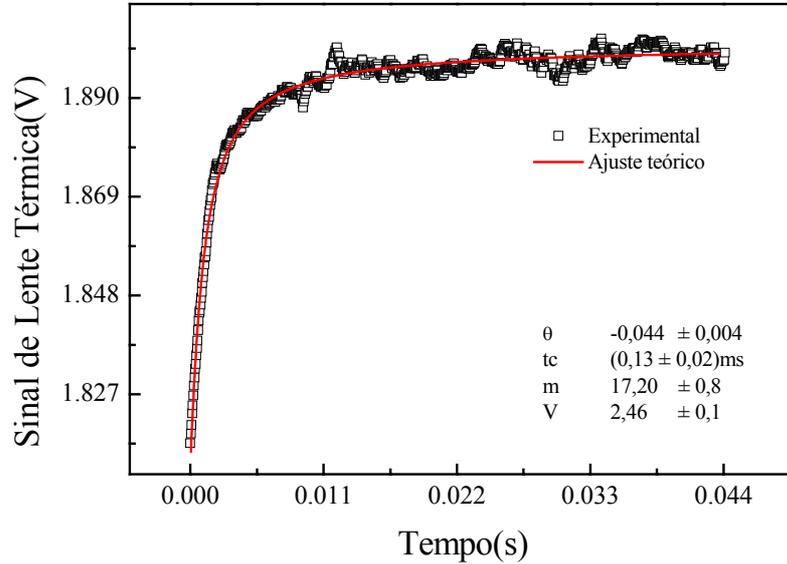


Figura 4.10: Transiente de LT para o Nd:YAG na temperatura ambiente. P = 400mW.

Para o calculo de  $dS/dT$  tivemos que fazer medidas complementares de calor específico para podermos calcular a condutividade térmica através da relação  $k = D\rho c_p$ . Obtivemos nestas medidas  $c_p = (0,62 \pm 0,02)J.(g.K)^{-1}$ , enquanto o valor da literatura é  $c_p = 0,59J.(g.K)^{-1}$  [15,48]. Utilizando os valores obtidos experimentalmente de  $D$  e  $c_p$  e a densidade obtida na literatura  $\rho = 4,56g/cm^3$  [48], calculamos a condutividade térmica do Nd:YAG como sendo  $k = (0,13 \pm 0,02)Wcm^{-1}K^{-1}$  em acordo com o valor encontrado na literatura,  $k = (0,11 - 0,13)Wcm^{-1}K^{-1}$  [4,15,49,50]. Assim, com os valores de  $\theta/P_e = (-0,11 \pm 0,01)W^{-1}$ , o comprimento de onda do laser de prova  $\lambda_p = 632,8nm$ , a espessura da amostra  $l_0 = 0,42cm$ , o coeficiente de absorção óptica  $A_e = 0,26cm^{-1}$  [38] e a eficiência quântica de fluorescência  $\eta_F = 0,95$  [38], com a qual calculamos o coeficiente térmico  $\phi = 0,54 \pm 0,01$ , e utilizando a equação (1.46) obtivemos o valor de  $dS/dT$  na temperatura ambiente,  $dS/dT = (15 \pm 3) \times 10^{-6}K^{-1}$ , que concorda com o valor  $dS/dT = 14 \times 10^{-6}K^{-1}$  encontrado na literatura [38].

Esses resultados demonstram que o procedimento adotado de introduzir a amostra em uma camisa de metal, contribuiu para minimizar o efeito das franjas de interferência sobre o sinal de LT, permitindo que os parâmetros  $\theta$  e  $t_c$  pudessem ser determinados e conseqüentemente o valor de  $dS/dT$  na temperatura ambiente.

#### 4.2 Resultados de lente térmica em função da temperatura

Nas medidas em função da temperatura adotamos o mesmo procedimento utilizado na temperatura ambiente. A figura 4.11 mostra o resultado de  $\theta$  normalizado pela potência, espessura e coeficiente de absorção óptica em função da temperatura no intervalo entre 22°C e 180°C. A taxa de aquecimento adotada foi 1,3°C/minuto, com intervalo de tempo entre os pulsos de 35 segundos. A escolha do intervalo de temperatura foi motivada pelo fato de este ser o intervalo de temperatura de operação de boa parte dos meios ativos dos lasers de estado sólido. Observa-se na figura 4.11 uma dispersão significativa no valor de  $\theta/(P_e A_e l_0)$  que como comentado anteriormente, deve-se ao fato de as franjas de interferência estarem se deslocando durante o processo de aquecimento, alternando máximos e mínimos no detector. Como o menor sinal está subestimado e o maior sobre-estimado, decidimos utilizar o valor de  $\theta/(P_e A_e l_0)$  obtido através do ajuste linear dos dados experimentais. Observa-se que o valor médio de  $\theta/(P_e A_e l_0)$  dobra em módulo neste intervalo de temperatura. Para avaliar quais as propriedades da amostra que governam o aumento do sinal de LT em função da temperatura, utilizaremos a equação (1.46) que repetimos a seguir para facilitar a leitura:  $\theta = -(P_e l_0 / \lambda_p) A_e k^{-1} \phi(dS / dT)$ .

A partir dessa equação e do fato que o coeficiente de absorção óptica se manteve constante em função da temperatura, temos a indicação de que  $dS/dT$ ,  $\phi$  e a condutividade térmica devem ser os parâmetros que provavelmente devem governar o aumento de  $\theta$  em função da temperatura. O outro parâmetro que é determinado diretamente a partir da LT é a difusividade térmica. A figura 4.12 mostra os resultados obtidos. O valor medido mostra uma redução de aproximadamente 55% se compararmos a temperatura de 180°C com a de 22°C. A curva contínua mostra o ajuste polinomial dos valores obtidos.

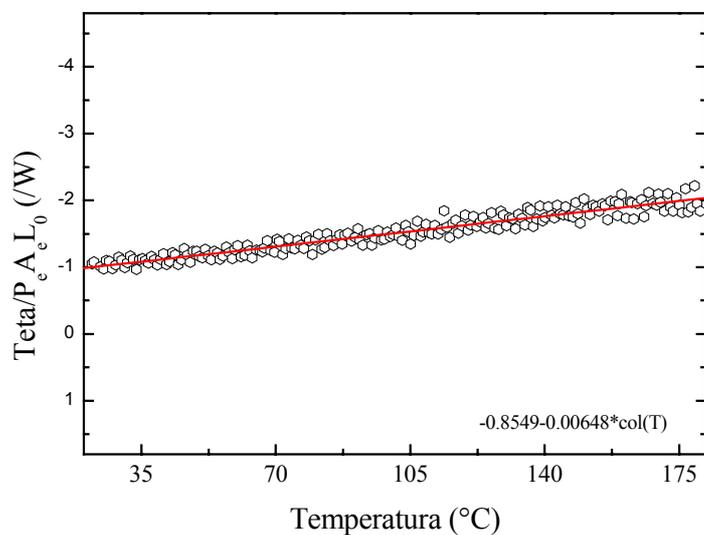


Figura 4.11:  $\theta$  normalizado pela potência, espessura e coeficiente de absorção óptica em função da temperatura. Erro estimado: ~10%.

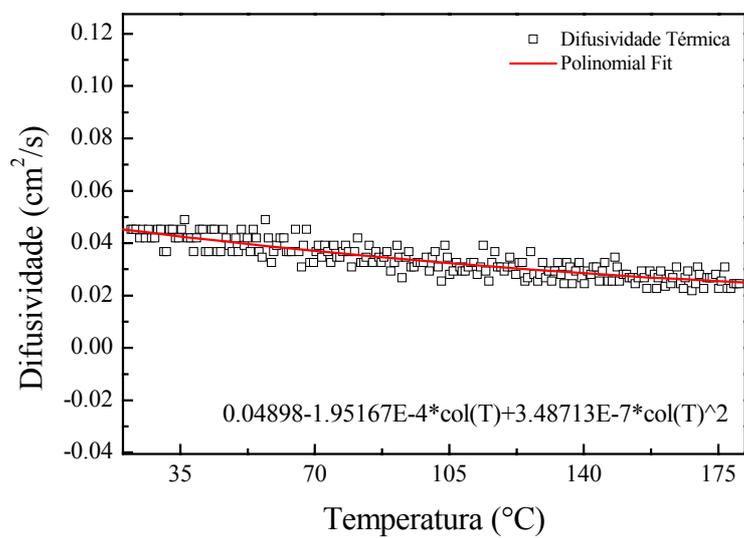


Figura 4.12: Difusividade térmica em função da temperatura para o Nd:YAG. Erro estimado: ~15%.

O decréscimo da difusividade térmica pode ser explicado a partir da teoria de Debye, ou seja, reescrevendo a difusividade térmica em termos da velocidade do som no meio, como:

$$D = \frac{1}{3} \bar{v} l_s$$

em que  $\bar{v}$  é a velocidade do som no meio e  $l_s$  é o livre caminho médio dos fônons do cristal. É conhecido que o livre caminho médio para cristais nessa região de temperatura cai exponencialmente. Portanto, o decréscimo no valor da difusividade térmica com o aumento da temperatura pode ser atribuído à diminuição no valor do livre caminho médio dos fônons do cristal.

### **4.3 Medidas complementares**

#### **4.3.1 Calor específico**

Utilizando o calorímetro de relaxação térmica, medimos o calor específico do Nd:YAG no intervalo de temperatura entre 24°C e 190°C. A figura 4.13 mostra o resultado desta medida, na qual observa-se que o calor específico aumenta aproximadamente 35%, se comparado seu valor na temperatura ambiente com aquele em 190°C. Esse resultado também está de acordo com o previsto para materiais cristalinos.

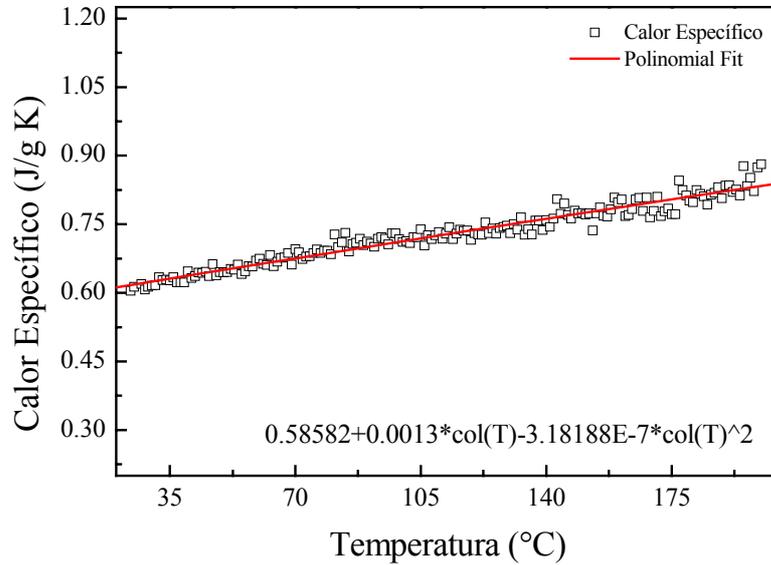


Figura 4.13: Calor específico do Nd:YAG em função da temperatura. Erro estimado: ~3%.

Devido à expansão térmica, a densidade da amostra varia durante o processo de aquecimento. A partir da medida do coeficiente de expansão térmica, podemos calcular a densidade em função da temperatura para o Nd:YAG, utilizando a equação:

$$\rho(T) = \rho_0 \left( \frac{1}{1 + 3\alpha\Delta T} \right) \quad (4.1)$$

em que  $\rho_0$  é a densidade em temperatura ambiente e  $\alpha$  é o coeficiente de expansão térmica que vamos considerar constante e igual a  $6,6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Essa aproximação será justificada mais adiante neste capítulo, logo após a apresentação dos resultados da LT e da interferometria de Fabry-Perot. O comportamento da densidade em função da temperatura está mostrado na figura 4.14.

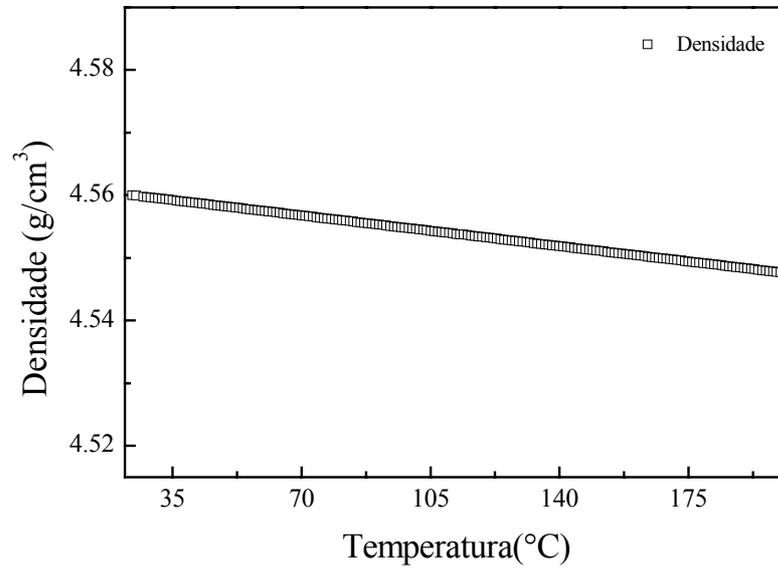


Figura 4.14: Densidade em função da temperatura.

Finalmente, com os valores da difusividade térmica, calor específico e densidade, podemos por meio da relação  $k = D\rho c_p$ , calcular a condutividade térmica do cristal Nd:YAG em função da temperatura, como mostrado na figura 4.15.

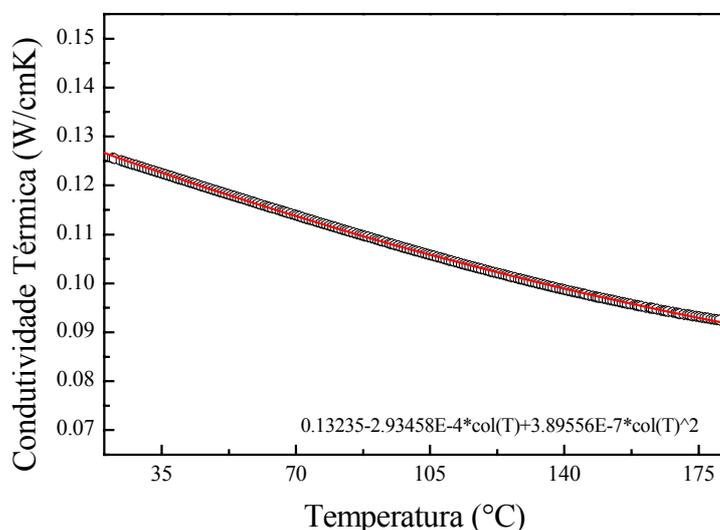


Figura 4.15: Condutividade térmica calculada a partir dos dados experimentais. Erro estimado: ~ 16%.

Nota-se que o valor da condutividade térmica na figura 4.15 diminui em torno de 25% quando comparado seu valor em 22°C com aquele obtido em 190°C. Resultados encontrados na literatura mostram que a condutividade térmica do Nd:YAG em função da temperatura em amostra cerâmica [51], varia entre 0,085W/cmK em 20°C e 0,065W/cmK em 200°C. Nota-se neste caso, que, embora a condutividade térmica da amostra cerâmica seja menor do que a da amostra cristalina, elas apresentam o mesmo comportamento de queda em função da temperatura. Esta diferença entre a condutividade térmica das duas amostras é coerente, já que devido à existência de microporos na amostra cerâmica, sua condutividade térmica deve ser menor do que a da amostra cristalina.

#### 4.3.2 Medidas de fotoluminescência em função da temperatura

Realizamos também medidas do espectro de emissão do Nd:YAG para verificar a queda da emissão em função da temperatura. A amostra foi excitada com um feixe de laser em 514nm com potência de 230mW. Uma lente foi posicionada no lado oposto à entrada do feixe de excitação

para focalizar a radiação emitida. Utilizamos uma grade de difração no intervalo entre 750nm e 1150nm e um filtro para impedir que o feixe do laser de argônio atingisse o detector. Portanto, a radiação detectada corresponde apenas à emissão da amostra. Na figura 4.16 temos o espectro de emissão para as temperaturas, (a) 25°C e (b) 200°C.

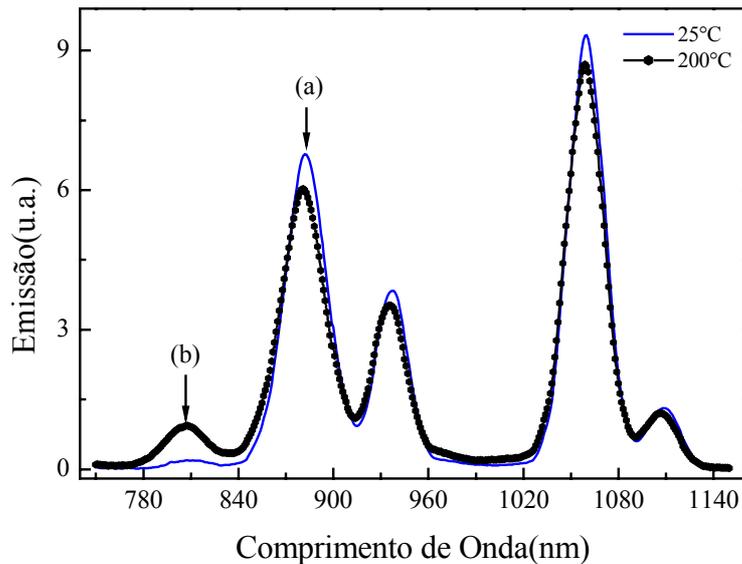


Figura 4.16: Espectro de emissão do Nd:YAG em função da temperatura ( $\lambda_{exc} = 514,5\text{nm}$ ): (a) 25°C e (b) 200°C.

Na figura 4.17 temos a variação na intensidade de emissão em função da temperatura, obtida a partir da variação da intensidade da banda de emissão em  $1,06\mu\text{m}$ . Salientamos que em todos os picos da figura 4.16 existem várias bandas de emissão e que devido a falta de resolução do nosso monocromador, não foi possível distingui-las. Observa-se um decréscimo na intensidade da emissão da ordem de 10%. Nestas medidas, determinamos também que o coeficiente de absorção óptica da amostra se manteve constante neste intervalo de temperatura.

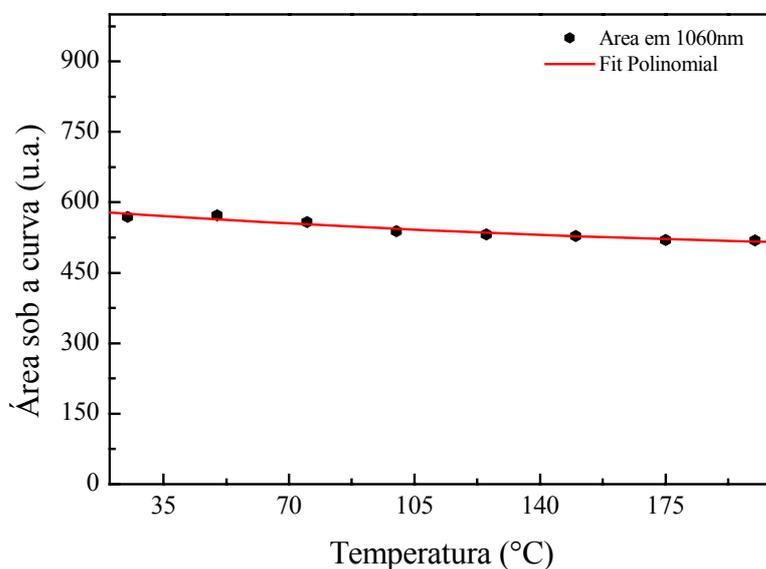


Figura 4.17: Queda na intensidade de emissão do Nd:YAG em 1,06μm em função da temperatura (área integrada). Erro estimado: ~ 3%.

### 4.3.3 Determinação de $dS/dT$ a partir do interferômetro de Fabry-Perot

A figura 4.18 mostra um exemplo do padrão das franjas de interferência no intervalo de temperatura entre 25°C e 40°C. O intervalo de temperatura entre os dois primeiros mínimos é de 3,9°C o que pela equação (3.21) resulta em um  $dS/dT = (19,5 \pm 0,8) \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  em temperatura ambiente. A figura 4.19 mostra o resultado de duas medidas diferentes de  $dS/dT$  em função da temperatura obtido a partir do interferômetro de Fabry-Perot e o valor de  $dS/dT$  médio (média das duas seqüências de experimentos). O valor de  $dS/dT$  aumenta aproximadamente 25% no intervalo entre 22°C e 190°C, como mostra a figura 4.19.

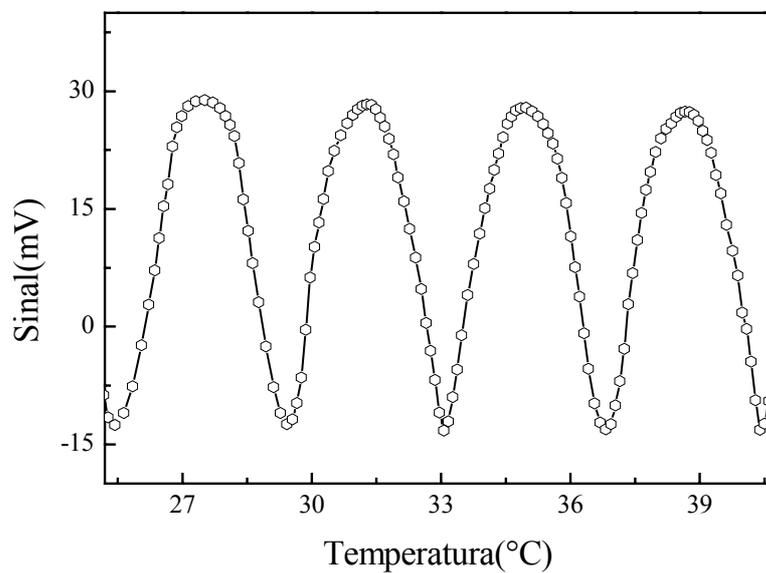


Figura 4.18: Padrão das franjas de interferência para o Nd:YAG.

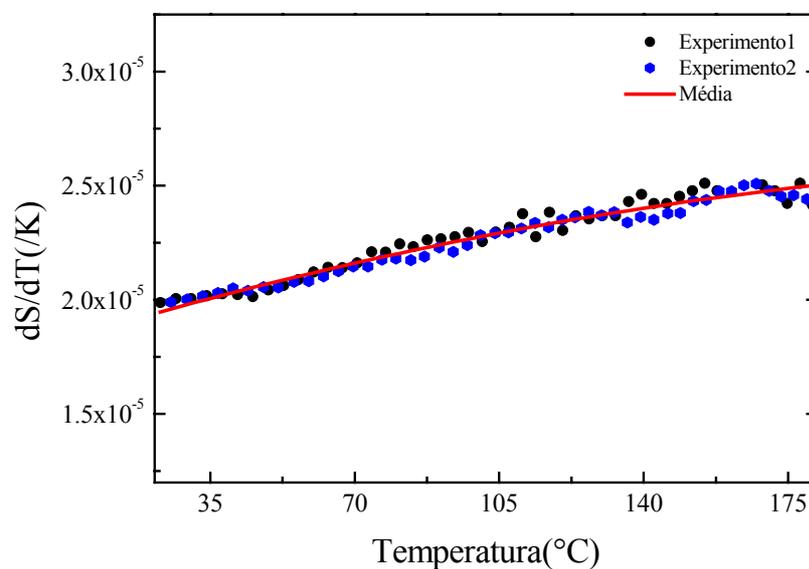


Figura 4.19: Resultado de  $dS/dT$  medido no interferômetro (duas seqüências de medidas e a média destas seqüências), como função da temperatura. Erro estimado:  $\sim 4\%$ .

#### 4.4 Determinação de $dS/dT$ em função da temperatura a partir dos dados da LT

Para calcular o valor de  $dS/dT$  em função da temperatura a partir dos valores do parâmetro  $\theta/(P_e A_e I_0)$  mostrado na figura 4.11 obtido para a lente térmica em função da temperatura, utilizamos a equação (1.46), ou seja:

$$\theta = -\frac{P_e A_e I_0}{k\lambda_p} \frac{dS}{dT} \left[ 1 - \eta_F \left( \frac{\lambda_{ex}}{\langle \lambda_{em} \rangle} \right) \right] = -\frac{P_e A_e I_0}{k\lambda_p} \frac{dS}{dT} \phi$$

Para este cálculo precisamos do comportamento da eficiência quântica de fluorescência em função da temperatura. Utilizamos dados da literatura que mostram que a eficiência diminui cerca de 10% no intervalo considerado [52]. Uma vez que esses dados da literatura só são mostrados para duas temperaturas em 20°C e 200°C, para obter o comportamento da eficiência quântica em função da temperatura tomamos como referência os dados da variação da intensidade do espectro de emissão mostrado na figura 4.17. A figura 4.20 mostra os valores calculados para a eficiência quântica.

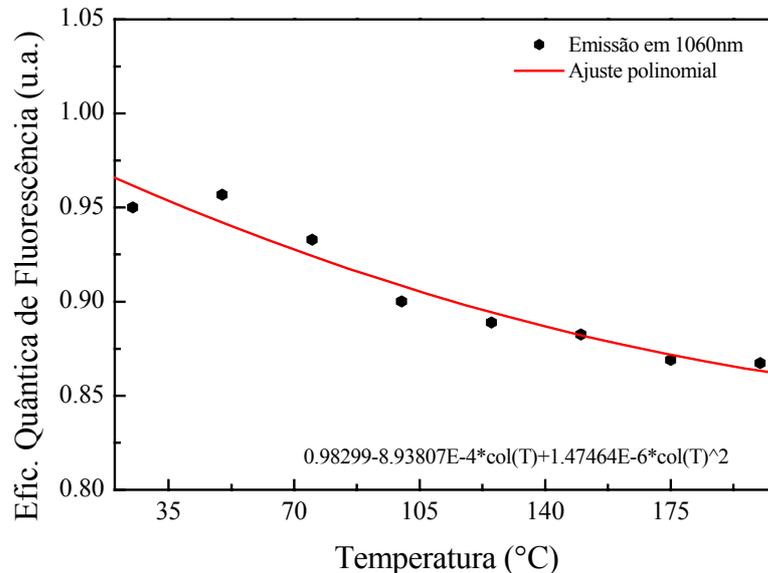


Figura 4.20: Eficiência quântica de fluorescência em função da temperatura. Erro: ~ 3%.

Com esses resultados determinamos o parâmetro  $\phi$  da equação 1.46, conforme mostra a figura 4.21.

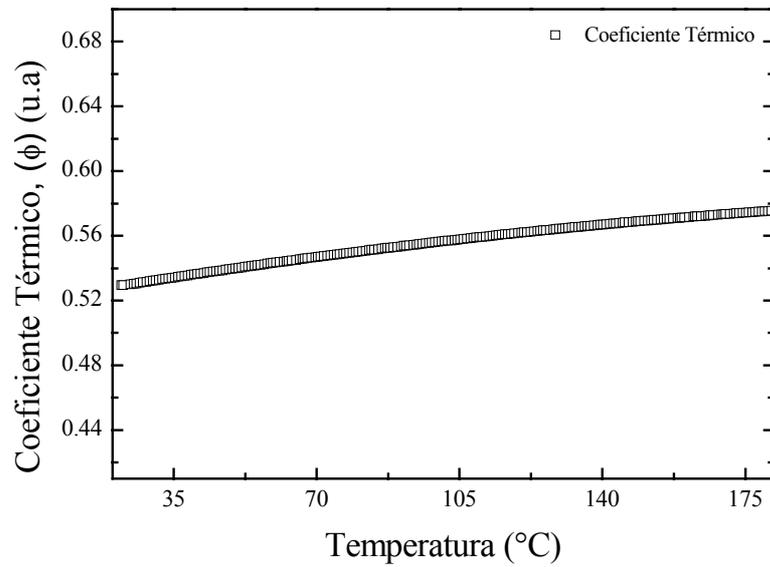


Figura 4.21: Coeficiente térmico para o Nd:YAG em função da temperatura. Erro:  $\sim 3\%$ .

Utilizando o coeficiente térmico da figura 4.21, a condutividade térmica calculada com os dados experimentais, o valor de  $\theta/(P_e A_e l_0)$  da lente térmica, calculamos  $dS/dT$  em função da temperatura para o Nd:YAG como mostra a figura 4.22. Observa-se que o valor de  $dS/dT$  aumenta aproximadamente 40% quando comparado seu valor em 22  $^{\circ}\text{C}$  com aquele em 180  $^{\circ}\text{C}$ .

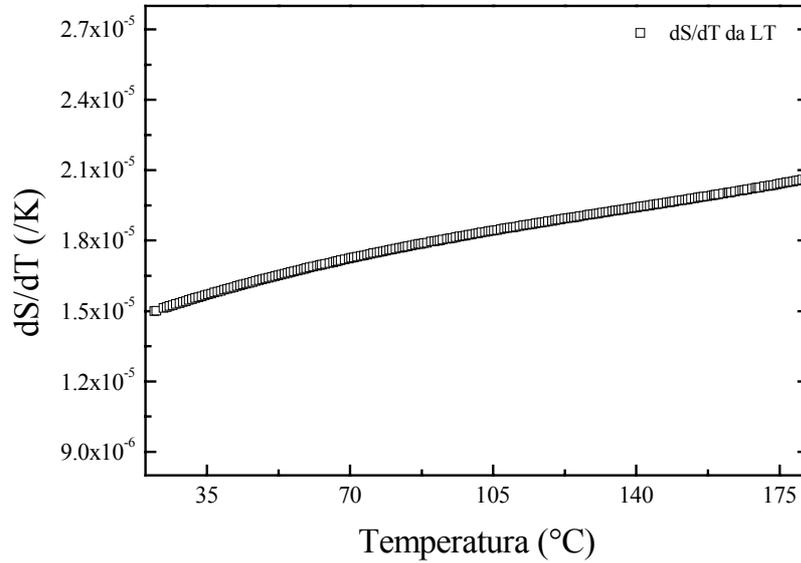


Figura 4.22:  $dS/dT$  da LT para o Nd:YAG obtido através da equação (1.46). Erro: ~ 20%.

#### 4.5 Determinação do coeficiente de expansão térmica e de $dn/dT$ em função da temperatura a partir dos dados da LT e do interferômetro de Fabry-Perot

O parâmetro  $dS/dT$  é uma das propriedades mais importantes de um material quando este é utilizado em sistemas ópticos. De acordo com a equação (1.21), a expressão de  $dS/dT$  para a LT pode ser escrita como:

$$\frac{dS}{dT} = (n_0 - 1)(1 + \nu)\alpha_T + \frac{dn}{dT} + \frac{1}{4}n_0^3 Y \alpha_T (q_{11} + q_{12})$$

O termo  $dn/dT$  da equação (1.21) é o mesmo  $dn/dT$  da equação (3.20).

Após determinar os valores de  $dS/dT$  a partir do interferômetro de Fabry-Perot e da LT, mostrados nas figuras 4.19 e 4.22, podemos verificar se a hipótese de considerar o coeficiente de expansão térmica,  $\alpha$ , realizada anteriormente no início desse capítulo, equação (4.1), pode ser testada. Isto pode ser realizado substituindo-se a equação (3.20) em (1.21), para obter os valores do coeficiente de expansão térmica da amostra em função da temperatura, como:

$$\alpha(T) = \frac{\left(\frac{dS}{dT}\right)_{Interf} - \left(\frac{dS}{dT}\right)_{THL} + \Delta q}{[1 - \nu(n_0 - 1)]} \quad (4.2)$$

Utilizando os valores obtidos na literatura de  $\nu = 0,25$  [48],  $n_0 = 1,82$  [49],  $\Delta q = 0,67 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [38] e os valores experimentais de  $(dS/dT)_{LT}$  e  $(dS/dT)_{Interf}$  em função da temperatura, calculamos o valor do coeficiente de expansão térmica em função da temperatura como mostrado na figura 4.23. Nota-se nessa figura que a variação no valor de  $\alpha$  entre a temperatura ambiente e  $180^\circ\text{C}$  é da ordem de 4%, indicando que a hipótese proposta de considerá-lo constante é aceitável. Salientamos que poderíamos adotar o procedimento de auto-consistência de substituir os valores de  $\alpha$  mostrados na figura 4.23 na equação (4.1) e repetir os cálculos até obter novamente o comportamento de  $\alpha$  em função da temperatura que mostrasse a convergência do processo. No entanto, como o resultado obtido mostra uma variação muito pequena desse parâmetro já na primeira interação, acreditamos não ser necessária a utilização do referido procedimento.

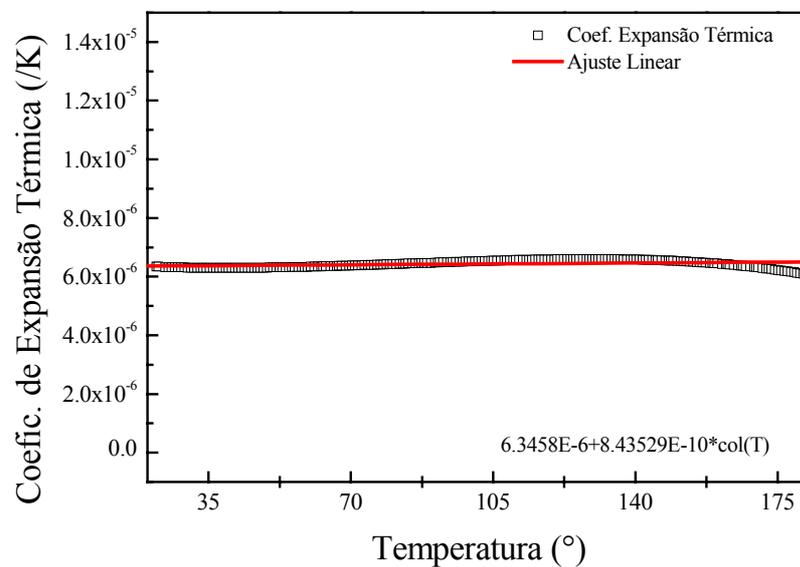


Figura 4.23: Coeficiente de expansão térmica do Nd:YAG em função da temperatura. Erro estimado:  $\sim 20\%$ .

Utilizando o valor de  $n_0 = 1,82$  [49], os valores de  $\alpha$  obtidos através do ajuste linear dos dados experimentais da Figura 4.23 e  $(dS/dT)_{Interf}$ , calculamos o valor do coeficiente de temperatura do índice de refração em função da temperatura utilizando a equação (3.20) como mostrado na figura 4.24. Verifica-se que  $dn/dT$  varia aproximadamente 65% entre 20°C e 180°C.

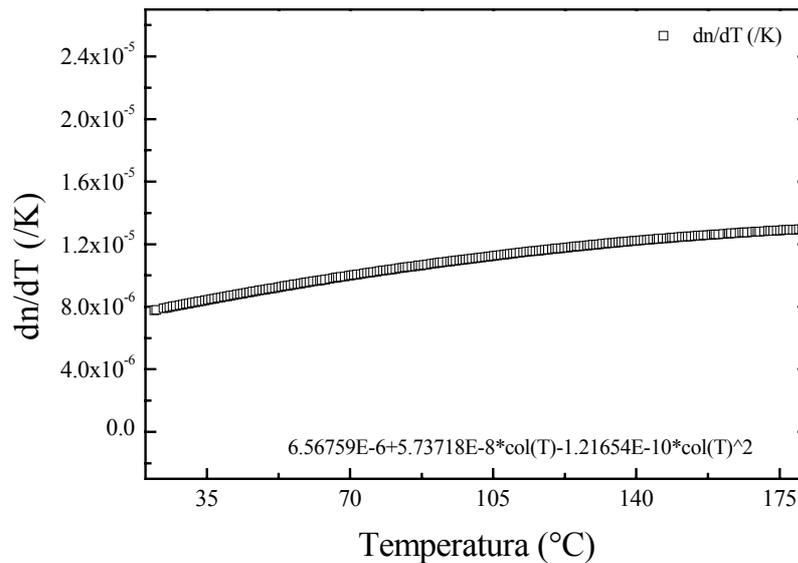


Figura 4.24:  $dn/dT$  em função da temperatura para o Nd:YAG. Erro estimado:  $\sim 20\%$ .

Os procedimentos adotados na realização dos experimentos propostos neste trabalho, permitiram uma ampla caracterização do cristal Nd:YAG em função da temperatura. A utilização das técnicas de ELT, Interferometria, calorimetria de relaxação térmica e as medidas de fotoluminescência, possibilitaram a determinação de parâmetros cujo conhecimento é fundamental para as aplicações ópticas deste material. Obtivemos assim, os valores em função da temperatura dos parâmetros,  $dS/dT$  da ELT e do interferômetro de Fabry-Perot, difusividade térmica, calor específico, condutividade térmica, coeficiente de expansão térmica e o coeficiente térmico do índice de refração. Chamamos atenção da importância da medida do parâmetro  $dS/dT$  tanto para a LT, quanto para o caso do aquecimento homogêneo da amostra, que poderá ser útil para aqueles que projetam sistemas ópticos a partir deste material.

A figura 4.25 mostra uma comparação entre os valores de  $dS/dT$  da LT com aqueles obtidos a partir da interferometria de Fabry-Perot. O menor valor no  $dS/dT$  da LT pode ser explicado se considerarmos que a mudança na espessura da amostra deve apresentar um perfil parabólico, o que faz com que parte do caminho óptico percorrido pelo feixe seja através do ar, conforme mostrado na figura 1.9 do capítulo 1.

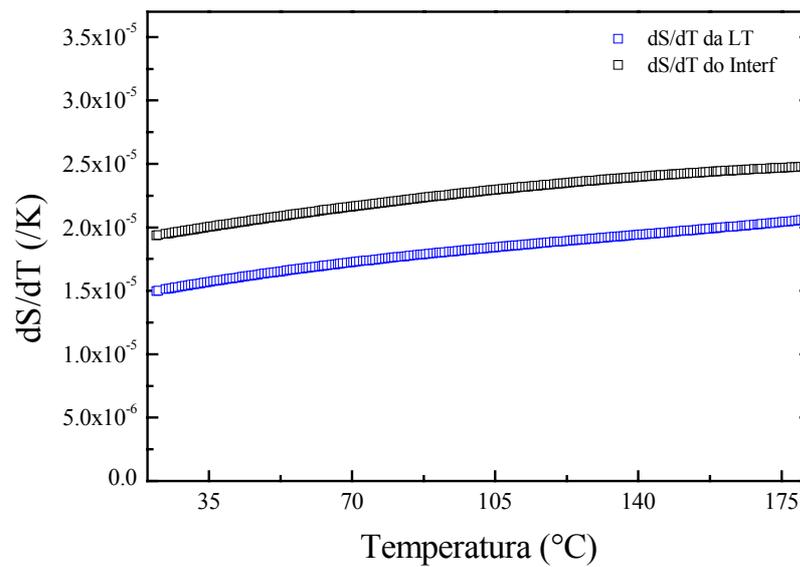


Figura 4.25:  $dS/dT$  da LT e do interferômetro em função da temperatura.

Finalmente, a partir da equação 1.24 pode-se notar que os resultados deste trabalho mostram que o aumento da amplitude da LT com a temperatura é predominantemente causado pela variação da condutividade térmica e de  $dS/dT$ .

## Capítulo 5

### Conclusões

Neste trabalho, utilizamos a ELT combinada a medidas complementares de calor específico, fotoluminescência e interferometria de Fabry-Perot, para investigar as propriedades térmicas e ópticas do monocristal Nd:YAG. Os resultados mostraram que a utilização da ELT no modo transiente, em regime de baixa potência e tempo curto, é vantajosa em relação às medidas na condição de estado estacionário, uma vez que minimiza a indução de carga térmica na amostra, que teria como consequência um aumento significativo da temperatura ainda durante a geração do transiente. Este procedimento permite a determinação da difusividade térmica e do deslocamento de fase do feixe de prova, que combinados com as medidas a partir de outras técnicas permitiram a obtenção de vários parâmetros ópticos e térmicos da amostra. Os experimentos no modo transiente, permitiram ainda que o deslocamento das franjas de interferência no detector pudesse ser minimizado.

A combinação das várias técnicas nas medidas em função da temperatura, permitiu a realização de uma ampla caracterização do material estudado. Com a ELT obtivemos os valores da difusividade térmica e  $\theta$  em função da temperatura e utilizando os valores de calor específico juntamente com a densidade calculada, obtivemos o comportamento da condutividade térmica. Através das medidas de fotoluminescência, foi possível determinar a variação do parâmetro  $\phi$  com a temperatura e determinar a variação do caminho óptico na LT para essa amostra.

Comparando as medidas da variação do caminho óptico na LT com as medidas no interferômetro de Fabry-Perot, determinamos os valores do coeficiente de expansão térmica e do coeficiente térmico do índice de refração.

Estes resultados indicam que o aumento da amplitude do sinal de LT em função da temperatura parece ser majoritariamente governado pelo decréscimo da condutividade térmica e pelo aumento do parâmetro  $dS/dT$ . Uma vez que estes processos térmicos determinam a eficiência e a qualidade do feixe dos lasers construídos a partir deste material, nossa observação poderá ser útil para o aprimoramento da geometria e dos mecanismos de refrigeração do laser projetado.

Finalmente, considerando que existe na literatura uma variabilidade grande entre os valores medidos para  $dS/dT$ , inclusive com pouca diferenciação entre  $dS/dT$  para um aquecimento com perfil radial, como é o caso da lente térmica, com aquele em que a amostra é homogeneamente aquecida, a exemplo dos dados obtidos a partir do interferômetro de Fabry-Perot, nossos resultados parecem ser inovadores e sugerem que o procedimento de combinar as técnicas utilizadas neste trabalho pode ser estendido para o estudo de outros materiais utiliza

# Bibliografia

- [1] Gan, F., "Laser Materials.", World Scientific, Singapura, (1995).
- [2] Devor, D. P., Deshazer, L. G., Optics Communications 46 97 (1983).
- [3] Wynne, R., Daneu, J. L. Fan, T. Y., Applied optics 38 3282 (1999).
- [4] Koechner, W., Applied Optics 9 2548 (1970).
- [5] Young, D. D., Jungling, K. C., Williamson, T. L., Nichols, E. R., IEEE J. Quantum Electron. QE-8, 720 (1972).
- [6] Xie, W., Tam, S-C., Lam, Y-L., Yang, H., Liu, J., Gu, J., Tan, W., Optics and Laser Technology 32 193 (2000).
- [7] Numazawa, T., Arai, O., Hu, Q., Noda, T., Meas. Sci. Technol. 12 2089 (2001).
- [8] Rapaport, A., Zhao, S., Xiao, G., Howard, A., Bass, M., Applied optics 41 7042 (2002).
- [9] Dianov, E. M., Karasik, A. Y., Neustruev, V. B., Prockhorov, A. M., Shcherbakov, Sov. Phys. Dokl. 20 622 (1975).
- [10] Uppal, J. S., Monga, J. C., Applied optics 24 3690 (1985).
- [11] Hodgson, N., Weber, H., IEEE J. Quantum Electron. 29 2497 (1993).
- [12] Levine, F. A., IEEE J. Quant. Electrón. QE-7 170 (1971).
- [13] Kuruvilla, T., Nandakumaran, V. M., Pramana J. of Phys., 54(3) 393 (2000)
- [14] Sousa, D. F., Nunes, L. A. O., Rohling, J. H., Baesso, M. L., J. Appl. Phys. In press (2003)
- [15] Eichler, H. J., Haase, A., Menzel, R., Siemoneit, A., J. Phys. D: Appl. Phys. 26 1884 (1993).
- [16] Sparks, M., J. Appl. Phys. 42 5029 (1971)
- [17] Izumitani, T., Toratani, H., J. Non-Cryst. Solids 40 611 (1980)
- [18] Akhmanov, S. A., Krindach, D. P., Migulin, A. V., Sukhorukov, A. P., Khokhlov, R. V., IEEE J. Quantum Electron. QE-4 568 (1968)
- [19] Maimam, T. H., Nature, 187 493 (1960)
- [20] Gordon, J. P., Leite, R. C. C., Moore, R. S., Porto, S. P. S. and Whinnery, J. R., Bull. Am. Phys. Soc. 9 501 (1964)
- [21] Gordon, J. P., Leite, R. C. C., Moore, R. S., Porto, S. P. S. and Whinnery, J. R., J. Appl. Phys. 36 3 (1965)
- [22] Hu, C., Whinnery, J. R., Appl. Opt. 12 72 (1973)
- [23] Higaishi, T., Imasaka, T., Ishibashi, T., Anal. Chem. 55 1907 (1983)

- [24] Shen, J., Lowe, R. D., Snook, R. D., Chem. Phys. 165 385 (1992)
- [25] Shen, J., Baesso, M. L., Snook, R. D., J. Appl. Phys. 75 3738 (1994)
- [26] Baesso, M. L., Shen, J., Snook, R. D., J. Appl. Phys. 75 3732 (1994)
- [27] Shen, J., “Theoretical Modelling of Photothermal Lens Spectrometry and Its Experimental Applications “, Tese de doutoramento apresentada a University of Manchester-Inglaterra, (1993).
- [28] Baesso, M. L., Bento, A. C., Andrade, A. A., Sampaio, J. A., Pecoraro, E., Nunes, L. A. O., Catunda, T., Gama, S., Phys. Rev. B 57 10545 (1998).
- [29] Baesso, M. L., Shen, J. and Snook, R. D., Chem. Phys. Lett. 197 255 (1992)
- [30] Sheldon, S. J., Knight, L. V., Thorne, J. M., Appl. Opt. 21 1663 (1982).
- [31] Pereira, J. R. D., “Espectroscopia de Lente Térmica aplicada ao estudo de Cristais Líquidos.“, Tese de Mestrado apresentada ao IFGW-Unicamp (1997).
- [32] Sampaio, J. A., “Investigação de vidros aluminato de cálcio dopados com íons terras-raras.”, Tese de Mestrado apresentada ao IFGW-Unicamp (1997).
- [33] Lima, S. M., “Aplicações da técnica de Lente Térmica em materiais ópticos.“, Tese de Mestrado apresentada ao Instituto de Física de São Carlos-USP (1999).
- [34] Duarte, A. R.,”Determinação das propriedades ópticas e térmicas de vidros aluminato de cálcio dopados com  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  através da Espectroscopia de Lente Térmica.”, Tese de Mestrado apresentada ao Departamento de Física da Universidade Estadual de Maringá (1999).
- [35] Pelicon, E. J.,”Aplicação da Espectroscopia de Lente Térmica para a determinação da eficiência quântica de fluorescência de sólidos em função da temperatura.”, Tese de Mestrado apresentada ao Departamento de Física da Universidade Estadual de Maringá (2001).
- [36] Rohling, J. H.,”Lente Térmica Diferencial: um novo método para a análise da transição vítrea de polímeros.”, Tese de Mestrado apresentada ao Departamento de Física da Universidade Estadual de Maringá (2001).
- [37] Falcão, E. A.,”Utilização da espectroscopia de lente térmica e da calorimetria de relaxação térmica para o estudo de materiais eletro-ópticos em função da temperatura.”, Tese de Mestrado apresentada ao Departamento de Física da Universidade Estadual de Maringá (2002).

- [38] Andrade, A. A. C., “Aplicações das Técnicas de Lente Térmica e Z-Scan ao Estudo de Sólidos Dopados.” Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Física de São Carlos-USP (2002).
- [39] Koechner, W., “Springer Series in Optical Sciences, Solid-State Laser Engineering, 4<sup>th</sup> Ed. (1996).
- [40] Carslaw, H. S., Jaeger, J. C., “Conduction of heat in solids “, 2<sup>th</sup> Ed., Clarendon Press, Oxford, (1959).
- [41] Klein, C. A., Optical Engineering, 29(4) 343 (1990).
- [42] Sigman, A. E., “Introduction to Lasers and Masers. “, 2<sup>th</sup> Ed., McGraw-Hill, New York, (1971)
- [43] Bachmann, R., DiSalvo, F. J., Geballe, T. H., Greene, R. L., Howard, R. E., King, C. N., Kirsh, H. C., Lee, K. N., Schwall, R. E., Thomas, H. U., Zubek, R. B., Rev. Sci. Instrum. 43 205 (1972).
- [44] Hatta, I., Rev. Sci. Instrum. 50 292 (1979).
- [45] Azechi, L. S., da Costa, R. F., Medina, A. N., e Gandra, F. C. G., Revista de Física Aplicada e Instrumentação Vol. 10, 70 (1995).
- [46] Medina, A. N., Caldeira, A. M. F., Bento, A. C., Baesso, M. L., Sampaio, J. A., Catunda, T., Gandra, F. G., J of Non-Cryst. Solids 304 299 (2002).
- [47] Fan, T. Y., Daneu, J. L., Applied optics 37 1635 (1998).
- [48] [www.polysci.com](http://www.polysci.com), “Site da empresa Northrop Grumman.”
- [49] Brauch, U., Applied Physics B 38 397 (1994).
- [50] Innocenzi, M. E., Yura, H. T., Fincher, C. L., Fields, R. A., Appl. Phys. Lett., 56[19] 1831 (1990)
- [51] Pature, N. P., Klemens, P. G., J. Am. Ceram. Soc., 80[4] 1018 (1997)
- [52] Liao, P. F., Weber, H. P., J. Appl. Phys. 45 2931 (1974).