

# Universidade Estadual de Maringá

Pós-Graduação em Física

## **Alysson Steimacher**

DETERMINAÇÃO DE PROPRIEDADES TÉRMO-ÓPTICAS DE VIDROS E CRISTAIS UTILIZADOS COMO MEIO ATIVO PARA LASERS DE ESTADO-SÓLIDO UTILIZANDO TÉCNICAS DE INTERFEROMETRIA ÓPTICA

> Dissertação apresentada ao Departamento de Física da Universidade Estadual de Maringá, como requisito para obtenção do título de Mestre em Física.

Maringá - PR, Março de 2004



# Universidade Estadual de Maringá

Pós-Graduação em Física

## Alysson Steimacher

### DETERMINAÇÃO DE PROPRIEDADES TÉRMO-ÓPTICAS DE VIDROS E CRISTAIS UTILIZADOS COMO MEIO ATIVO PARA LASERS DE ESTADO-SÓLIDO UTILIZANDO TÉCNICAS DE INTERFEROMETRIA ÓPTICA

Orientador:

Prof. Dr. Antonio Medina Neto

Idéias devem ser claras e chocolate espesso. Provérbio espanhol

#### Dedicatórias

De dedo em riste

Dedico a todos

De forma aleatória

Estas dedicatórias!

Não se sinta preterida, Muito menos preterido, Se nos nomes dos meus Versos teu nome estiver Excluído!

I. Kuhlmann

#### Agradecimentos

 À minha mãe, que sempre me incentivou nos estudos, meu irmão e minha irmã, pelo apoio e compreensão;

• À Fran, pelo amor, carinho e pelo apoio durante todo este trabalho;

• À Julio Verne, Arthur C. Clarke, Aldous Ruxley, Isaac Asimov, H. G. Wells, Mary Schelley, George Lucas, Stanley Kubrick, Carl Segan, Guy De Maupassant, Edgar Allan Poe, Frederick Pohl, Clifford D. Simak, Frank Herbert, Arthur Conan Doyle e outros, que por ventura me conduziram aos caminhos da ciência e do questionamento;

 Aos professores: Mauro Luciano Baesso, Antonio Carlos Bento, José Roberto Dias Pereira, Luiz Roberto Evangelista, Paulo T. Udo, Arlindo A. Savi, João Mura, Renato Cardoso Nery, Renio dos Santos Mendes, pela amizade, pelo apoio e pelo aprendizado constante;

• Ao professor Marcos Cesar Danhoni Neves, pela orientação no estagio docente, pela amizade e pelas longas e frutíferas conversas;

• Aos professores Tomaz Catunda (IF-SC-USP) e Sandro M. Lima, pelas amostras de vidros e cristais utilizadas neste trabalho, pelas discussões e sugestões;

• Ao professor Victor. C. S. Reynoso, do Grupo de Vidros e Cerâmicas da UNESP-Ilha Solteira, pelas amostras de vidro fosfato utilizadas neste trabalho;

• Aos amigos que fiz durante todo este tempo: Ademar Marques Caldeira Filho, Nelson G. Castelli Astrath, Kleto Zan e Sabrina Camargo, Gustavo Max Dearo Simonetti, Fernando Messias Freire, Otavio Akira Sakai, Jurandir H. Rohling, Paulo Roberto Borba Pedreira, Elderi Nogueira, Perseu Ângelo Santoro, Laudilene Olenka, Daniele Toniolo Dias, Evaristo Falcão, Alcir R. Nunes, Tânia M. Coelho e todo o pessoal do PET. Sem vocês isto teria sido muito mais difícil (e muito menos divertido...);

• À todos os funcionários do DFI; em especial à Akiko Nisida;

• Aos funcionários da oficina mecânica do DFI: Jurandir A. Pereira, Márcio H. Babata e Dirlei Damião; pela confecção das peças utilizadas na montagem deste trabalho;

• E por último, em especial, ao professor Antonio Medina Neto, pela orientação neste trabalho e na vida, pela amizade, pelas discussões entre os cafés na cantina, por ter acreditado em mim e neste projeto e por me mostrar que às vezes, para fazer ciência, é preciso ter fé...

Muito obrigado.

### Sumário

Resumo	XII
Abstract	XIII
Capitulo 1 – Introdução	14
Capitulo 2 – O coeficiente térmico do caminho óptico	17
2.1 - O coeficiente de expansão térmica (α)	19
2.2 – O índice de refração (n)	21
2.3 – O índice de refração n e a polarizabilidade	22
2.4 - O coeficiente térmico do índice de refração dn/dT	31
Capitulo 3 – Interferometria Óptica	
3.1 - Principio da superposição	35
3.2 - Interferência de duas ondas monocromáticas	35
3.3 – Interferência de dois feixes em uma placa paralela	38
3.4 - Interferência de múltiplos feixes	40
3.5 - Interferência óptica em cristais	43
Capítulo 4 – Montagem e Princípios de Medida do dS/dT	49
4.1 - Montagem experimental	49
4.2 - Princípios de medidas de dS/dT	51
4.3 - O dS/dT em Cristais anisotrópicos	52
4.3 – Caracterização do sistema	54
Capitulo 5 - Amostras medidas	58
5.1 - Vidros alumino-silicato de cálcio	58
5.1.1 - Amostras de Vidro aluminato de cálcio, preparadas em vácuo	59
5.1.2 - Amostras de Vidro aluminato de cálcio, preparadas em ar	59
5.2 - Vidros fosfato	59
5.3 - Vidros borato	60
5.4 - Vidros Calcogenetos	60
5.5 - Cristais LISAF e LISGAF	61
5.6 – Corte e Polimento das Amostras	62
Capitulo 6 – Resultados e Discussão	63
6.1 – Valores de dS/dT em temperatura ambiente	65
6.1.1 - Valores de dS/dT para os vidros aluminato de cálcio	66

6.1.2 - Valores de dS/dT para os vidros fosfato	68
6.1.3 - Valores de dS/dT para os vidros borato	68
6.1.4 - Valores de dS/dT para os vidros calcogenetos	69
6.1.5 - Valores de dS/dT para os cristais LISAF e LISGAF	70
6.2 - Medidas de dS/dT em função da temperatura em vidros	71
6.2.1 – Vidros aluminato de cálcio preparados em vácuo	71
6.2.2 – Vidros aluminato de cálcio preparados em ar	72
6.2.3 – Vidros fosfato	73
6.2.4 – Vidros borato	74
6.2.5 – Vidros Calcogenetos	76
6.2.6 – Comparação dos valores de dS/dT para os diferentes tipos de vidros	77
6.3 - Medida indireta do coeficiente de expansão térmica e polarizabilidade	78
6.4 - Medidas de dS/dT em função da temperatura em cristais	82
6.4.1 - Amostra de LISAF dopada com Cr (1,5 %wt) – eixo c paralela ao plano	82
6.4.2 - Amostra de LISAF dopada com Cr (1,5 %wt) – eixo c perpendicular ao plano	86
6.4.3 - Amostra de LISGAF não dopada – eixo c paralelo ao plano	88
6.4.4 - Amostra de LISGAF dopada com Cr (2,5 %wt) – eixo c perpendicular à superfície	90
Capitulo 7 - Conclusão	93
Referências Bibliográficas	96
Trabalhos apresentados e submetidos	99

### Índice de figuras

Figura 1 - Comportamento do coeficiente de expansão térmica em função o	la
temperatura para vidros fosfato com diferentes composições. [14]	21
Figura 2 - Mecanismos básicos de polarização [15]	24
Figura 3 – Placa plana paralela iluminada por um feixe de luz ilustrando	а
reflexão e formação de franjas de interferência em um ponto P	39
Figura 4 – Placa plana paralela iluminada por um feixe de luz ilustrando	а
reflexão de múltiplos feixes: As franjas de interferência são formada	IS
em P	41
Figura 5 - Variação da intensidade com a diferença de fase - Interferência d	le
dois feixes de intensidades diferentes, feixes de intensidades iguais	е
para múltiplos feixes	43
Figura 6 - Placa de cristal uniaxial ilustrando a decomposição de feixes:	а
interferência deve ocorrer no ponto P	45
Figura 7 – Simulação da Intensidade / em um cristal uniaxial	47
Figura 8 - Diagrama esquemático da montagem 1 - No detalhe: Padrão da	is
franjas de interferência no fotodiodo	49
Figura 9 - Diagrama esquemático da montagem 2. No detalhe: Padrão da	is
franjas de interferência no fotodiodo	50
Figura 10 - Desenho de amostras de cristal cortadas em diferentes eixos	53
Figura 11 – Interferograma para amostra de Quartzo QS	54
Figura 12 - Pontos de máximos e mínimos de interferência (m) em função o	la
temperatura para amostra de Quartzo QS	55
Figura 13 – Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostra de quartz	20
QS comercial	55
Figura 14 – Interferograma para amostra de água destilada e deionizada	56
Figura 15 - Gráfico do número de máximos m em função da temperatura T par	a
a amostra de água destilada e deionizada	57
Figura 16 – Gráfico de dn/dT em função da temperatura para amostra de águ	ia
destilada e deionizada. • Dados experimentais. ¾ Dados obtidos Re	ef.
[23]	57

Figura 17 – Interfero	ograma para amostras de aluminato de cálcio e borato, de
espessura	semelhante63
Figura 18 – Depend	lência térmica do número m para as amostras de vidro
aluminato d	de cálcio e vidro borato64
Figura 19 – Valores	s de dS/dT em função da Temperatura para os vidros
aluminato d	de cálcio e borato64
Figura 20 – Valores o	de dS/dT em temperatura ambiente para amostras de vidro
aluminato o	de cálcio, em função da concentração de dopante
Figura 21 – Dependê	ncia térmica do coeficiente de expansão volumétrico $\beta$ e do
coeficiente	de polarizabilidade $\phi$ para um vidro borosilicato.[17]69
Figura 22 – Gráfico de	e dS/dT em função da temperatura para vidros aluminato de
cálcio em c	liferentes concentrações de Nd <sub>2</sub> O <sub>3.</sub>
Figura 23 - Gráfico d	e dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro
aluminato o	de cálcio base (não-dopada) e amostra dopada com Nd $_2O_3$
(2 wt%)	
Figura 24 - Gráfico d	e dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro
fosfato dop	bado com $Cr_2O_3$ (0.05% wt) e amostra dopada com $Nd_2O_3$
(1% wt)	
Figura 25 - Gráfico d	e dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro
borato base	e e amostra dopada com 2% (wt)75
Figura 26 - Gráfico d	e dS/dT em função da temperatura para amostras de vidro
Calcogene	tos, com diferentes composições76
Figura 27 - Gráfico	de dS/dT em função da temperatura para amostras de
diferentes	tipos de vidro77
Figura 28 - Diferent	es valores de dS/dT em função da temperatura para as
montagens	; 1 e 2
Figura 29 - Coeficie	nte de expansão térmica em função da temperatura para
amostra de	vidro aluminato de cálcio dopada com Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1 %wt)
Figura 30 - Coeficie	ente térmico do índice de refração dn/dT em função da
temperatur	a: comparação entre o valor calculado e valor obtido na
literatura[2-	4]

### Índice de Tabelas

Tabela 1 – Classificação óptica dos cristais	44
Tabela 2 – Características da amostra de Quartzo QS usada como padrão	54
Tabela 3 – Composição, concentração e espessura da amostras de vidro	
aluminato de cálcio preparadas em vácuo	59
Tabela 4 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro	
aluminato de cálcio preparadas em ar	59
Tabela 5 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro fosfato	
preparadas em ar	60
Tabela 6 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro borato	
preparadas em ar	60
Tabela 7 – Composição, concentração e espessura da amostras de vidros	
Calcogenetos	61
Tabela 8 – Composição das amostras, concentração de dopante e espessura	62
Tabela 9 – Amostras de vidro utilizadas, dS/dT calculado e dS/dT medido.	
Valores para temperatura ambiente	66
Tabela 10 – Amostras de cristais utilizadas, dS/dT calculado e dS/dT medido.	
Valores para temperatura ambiente	66

#### Resumo

Neste trabalho, utilizamos a interferometria óptica para determinar o coeficiente térmico do caminho óptico (dS/dT) em função da temperatura para vidro e monocristais, entre temperatura ambiente (~27°C) e 180°C. As amostras estudadas incluem vidros óxidos, tais como aluminato de cálcio, fosfato e borato, preparados em diferentes condições e dopados com Nd ou Cr, e vidros da família dos calcogenetos (GLS e GLSO). Foram estudados também os monocristais LiSrAIF<sub>6</sub> (LISAF) e LiSrGaF<sub>6</sub> (LISGAF). Entre os vidros óxidos, o borato apresentou o menor valor de dS/dT: 10,5x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> em temperatura ambiente, enquanto para os fosfato e o aluminato de cálcio foram encontrados os valores de 12,2x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> e 19,5x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup>, respectivamente. Os valores de dS/dT para os vidros mostraram-se independentes da concentração de dopante, e das condições de preparação. Os calcogenetos apresentaram valores de dS/dT aproximadamente cinco vezes maior que os vidros óxidos. Os resultados obtidos para todas as amostras vítreas, mostraram um aumento de aproximadamente 20% nos valores de dS/dT em função da temperatura. Este comportamento pode ser atribuído tanto ao aumento do coeficiente de expansão térmico quanto do coeficiente térmico da polarizabilidade eletrônica.

Utilizando duas montagens interferométricas diferentes, determinamos o coeficiente de expansão térmica e o coeficiente do índice de refração (dn/dT) em função da temperatura para o vidro aluminato de cálcio, no intervalo de temperatura ambiente até 150°C. Para este caso verificamos que o coeficiente de expansão térmica permanece praticamente constante, enquanto dn/dT aumenta, o que implica que o coeficiente de polarizabilidade eletrônica ( $\phi$ ) é o fator dominante no comportamento de dS/dT, nesta região de temperatura. Para os monocristais de LISAF e LISGAF, observamos um efeito de modulação no padrão de interferência quando utilizamos um laser não polarizado, conseqüência da anisotropia destes cristais. A partir deste resultado, mostramos que é possível estimar os valores de dS/dT para os diferentes eixos cristalográficos e a diferença de dn/dT entre estes eixos, com uma única medida em função da temperatura. Estes resultados foram confirmados a partir das medidas de dS/dT em função da temperatura para os diferentes eixos ópticos da amostra, utilizando a montagem com laser polarizado.

Nossos resultados apresentaram ótima concordância com dados encontrados na literatura, mostrando que estes métodos, consideravelmente simples e de baixo custo, são ferramentas poderosas na caracterização de propriedades ópticas e térmicas, em função da temperatura, para vidros e monocristais utilizados como meio ativo de laser de estado sólido.

#### Abstract

In this work, the optical interferometric technique was used to determine the temperature coefficient of the optical path length (dS/dT) as a function of the temperature for several glasses and single crystals. The temperature range was between room temperature and 180°C. The studied samples included oxide glasses, such as low silica calcium aluminosilicate (LSCA), phosphates and borates, at different preparation conditions and doped with Nd or Cr, and also chalcogenides glasses (GLS and GLSO). Where also studied single crystals LiSrAIF<sub>6</sub> (LISAF) and LiSrGaF<sub>6</sub> (LISGAF). At room temperature, among the oxide glasses, the borate showed the smallest dS/dT value:  $1.05 \times 10^{-5}$  K<sup>-1</sup>, while for phosphate and LSCA the dS/dT values were  $1.22 \times 10^{-5}$  K<sup>-1</sup> and  $1.95 \times 10^{-5}$  K<sup>-1</sup>, respectively. These values are independent of the ion-doping concentration and the samples preparation conditions. For the chalcogenides glasses, the dS/dT values are around five times greater than value found for oxide glasses. The results showed that dS/dT increases about 20% for all samples with the temperature reaching. This behavior can be attributed to both an increase of the thermal expansion coefficient or the thermal polarizability coefficient.

Two different interferometric techniques were used for the determination of the thermal expansion coefficient and refractive index coefficient (dn/dT) in LSCA sample as a function of temperature, between room temperature and 150°C. In this temperature range, the thermal expansion coefficient is essentially constant, while dn/dT increases about 15%. This result indicate that the coefficient of the electronic polarizability ( $\phi$ ) is dominant in the thermal behavior of the dS/dT. For the single crystal LISAF and LISGAF, it was observed a modulation in the interferogram if a unpolarized laser is used. This fact is due to the anisotropy of the thermal - optical proprieties of these materials. Considering this effect, dS/dT was estimated for different crystallographic axis and the difference in dn/dT for these axis, using a single measurement. These results were confirmed by measurements of dS/dT as a function of temperature for different axis orientations, by means of experiments with polarized laser.

The results are in agreement with dS/dT values calculated using the data from literature and indicate that this low cost and considerably simple method, is a useful tool to measure the thermal – optical proprieties as a function of the temperature for semi-transparent glasses and single crystals used in solid state lasers.

#### Capitulo 1 – Introdução

Desde 1960, quando Theodore Maiman anunciou o funcionamento do primeiro laser da história[1], o estudo e desenvolvimento de vidros e cristais dopados com íons opticamente ativos, como metais de transição ou terras raras, tem sido objeto de pesquisa em diversos segmentos da óptica. O laser de Maiman, que utilizava um rubi sintético como meio ativo, logo deu lugar a outros lasers mais eficientes. Porém, a corrida no desenvolvimento de vidros e cristais, com propriedades ópticas e térmicas especiais, estava apenas no início.

Existem hoje em dia disponíveis no mercado diversos tipos de laser, classificados em diferentes categorias de acordo com seu meio ativo e sua potência. Atualmente o laser tem aplicações tecnológicas como a marcação ou corte de materiais na industria, nas telecomunicações, gravações e leitura de informações em diversos tipos de mídia e aplicações na medicina.

Os lasers de estado sólido, amplamente utilizados na medicina, na industria e na pesquisa científica, em sua maioria utilizam cristais dopados com terras raras ou com metais de transição (ex.: Cr) como meio ativo. Estes cristais apresentam grande eficiência quântica, alta difusividade térmica, baixo coeficiente de expansão, ou seja, parâmetros desejáveis em um meio ativo para laser. Entretanto, o crescimento desses cristais exige alta tecnologia e demanda tempo, e as técnicas são dominadas por apenas um pequeno número de pessoas no mundo. Todos estes fatores contribuem para o alto custo dos lasers que utilizam cristais como meio ativo. Uma alternativa viável é a utilização do vidro como meio ativo para o laser de estado sólido. Dentre as vantagens do vidro estão a produção em larga escala e o baixo custo se comparado com os cristais. Os vidros apresentam ainda maior resistência às variações abruptas de temperatura e maior resistência mecânica que a maioria dos cristais.

Seja para utilização como meio ativo para laser ou para utilização em telescópios, janelas ópticas, fibra óptica para telecomunicações, chaves-ópticas, ou qualquer sistema em que haja grandes variações de temperatura, é necessário conhecer as propriedades termo-ópticas dos vidros e cristais, visto que tais propriedades podem limitar o intervalo de temperatura de utilização de tais sistemas.

Um dos parâmetros mais importantes na caracterização e desenvolvimento destes novos materiais é o coeficiente térmico do caminho óptico de um sistema (dS/dT), que descreve a defasagem na frente de onda do laser ao passar por um meio submetido a uma variação térmica. O dS/dT carrega informações sobre o índice de refração, o coeficiente de expansão térmica, a polarizabilidade eletrônica e o coeficiente térmico do índice de refração (dn/dT), sendo de grande importância para o desenvolvimento de novos materiais ópticos a partir de vidros modificados, onde se procura otimizar as propriedades já conhecidas.

Dentre as técnicas mais utilizadas para as medidas de dS/dT está a Interferometria Óptica. O primeiro fenômeno de interferência, as cores exibidas por um filme fino conhecidas como "Newton's Ring" (Anéis de Newton), foram descobertas independentemente por Robert Boyle (1627-1691) e Robert Hooke (1635-1703)[5]. A partir das descobertas de Thomas Young (1773-1829) e Augustin Jean Fresnel (1774-1862) a interferometria tem sido utilizada para diversos fins. Os estudos de Young, por exemplo, permitiram-no calcular o comprimento de onda da luz de diversas cores.

Um dos mais famosos experimentos da história da física, a tentativa de Albert Abraham Michelson (1852-1931) de provar a existência do *ether luminiferous*, foi realizada utilizando um interferômetro que ficou conhecido como interferômetro de Michelson-Morley[6]. Embora a existência do *ether luminiferous* não tenha sido comprovada, o experimento de Michelson contribuiu enormemente para o aumento da precisão na determinação de caminhos ópticos, por meio da interferometria, devido a sua enorme sensibilidade.

Desde então vários tipos de interferômetros têm sido utilizados para os mais diversos fins. Na industria, interferômetros são utilizados em linhas de produção e no controle de qualidade de diversos tipos de materiais[7]. Devido à sua altasensibilidade, interferômetros têm sido utilizados como sensores de vibração, podendo detectar variações de amplitude da ordem de nanômetros[8]. Atualmente, alguns lasers possuem interferômetros que monitoram variações no comprimento da cavidade óptica. Na pesquisa, interferômetros são utilizados para a determinação de propriedades ópticas e térmicas de materiais, sólidos ou líquidos, com grande precisão.

Neste trabalho nós utilizamos técnicas de interferometria óptica para a determinação do dS/dT em função da temperatura de diversos tipos de vidros e

cristais. Também determinamos o coeficiente de expansão térmica, o coeficiente térmico do índice de refração e o coeficiente térmico da polarizabilidade eletrônica para o vidro aluminato de cálcio, através de duas montagens diferentes. Mostramos também ser possível determinar a posição dos eixos ópticos de cristais uniaxiais através uma montagem utilizando um polarizador. Os resultados se mostraram bastante promissores, apresentando ótima concordância com dados encontrados na literatura.

#### Capitulo 2 – O coeficiente térmico do caminho óptico

O coeficiente térmico do caminho óptico, dS/dT, é um parâmetro que descreve a defasagem da frente de onda de um laser ao passar por um meio submetido a uma variação térmica. O dS/dT, é um dos parâmetros mais importantes no desenvolvimento e caracterização de vidros e cristais para aplicação em óptica, fornecendo importantes informações sobre o índice de refração, o coeficiente de expansão térmica, a polarizabilidade eletrônica e o coeficiente térmico do índice de refração dn/dt destes materiais. O estudo destas propriedades pode auxiliar no desenvolvimento de novos materiais ópticos, a partir de vidros e cristais modificados, procurando otimizar as propriedades já conhecidas.

Em materiais ópticos sujeitos a grandes variações de temperatura, como meios ativos para lasers de estado sólido, janelas ópticas, espelhos para telescópios, etc., é importante conhecer o comportamento do dS/dT em função da temperatura, visto que alguns materiais têm sua utilização em um determinado intervalo de temperatura[9][10]. No caso de lasers de estado sólido, por exemplo, é desejável que o meio ativo possua um dS/dT baixo, pouco sensível a variações de temperatura, evitando assim efeitos como a autofocalização do laser. Por outro lado, dispositivos fotônicos e chaves ópticas requerem materiais com altos valores de dS/dT[11].

Embora seja um dos parâmetros mais importantes na caracterização de materiais ópticos, o dS/dT não é uma propriedade intrínseca do material. Ele depende do tipo de sistema em que está sendo medido e de como a variação térmica é induzida. Se, por exemplo, a variação térmica induzida no material for gerada por um laser, produzindo calor somente em uma "linha", o material sofre um aquecimento não uniforme, dependendo do perfil do laser, o que pode acarretar efeitos como o stress-óptico, que deve ser incluído no cálculo da variação do caminho óptico dS/dT[12]. No entanto, se a variação térmica na amostra for induzida de maneira uniforme, o termo de stress-óptico não existirá, se a amostra puder expandir livremente.

O coeficiente térmico do caminho óptico dS/dT é obtido derivando o caminho óptico *s* em função da temperatura, sendo que o caminho óptico é definido como a

distância percorrida pela luz em um sistema óptico ao longo de um caminho c[5], ou seja

$$s = \int_{C} n \, dl \tag{2.1}$$

na qual n é o índice de refração. Como tal grandeza depende do sistema óptico em que está sendo medido, o comprimento do caminho óptico pode se apresentar de diversas maneiras. Num sistema simples, em que um feixe de luz atravessa uma placa de material isotrópico, transparente, de espessura L e índice de refração nuniforme, o caminho óptico é dado por

$$s = nL \tag{2.2}$$

Quando provocamos uma variação no comprimento do caminho óptico, induzida por um aumento uniforme na temperatura do meio, temos o que chamamos de coeficiente térmico do caminho óptico, que é obtido derivando o comprimento do caminho óptico *s* de um determinado sistema em relação à temperatura. É importante ressaltar que tanto o índice de refração do material quanto sua espessura são dependentes da temperatura. Para o sistema simples considerado acima, o coeficiente térmico do caminho óptico ds/dT é obtido derivando a equação (2.2) em relação a *T*. Assim temos

$$\frac{ds}{dT} = L\frac{dn}{dT} + n\frac{dL}{dT}$$
(2.3)

Dividindo a equação (2.3) por L, temos

$$\frac{1}{L}\frac{ds}{dT} = n\frac{1}{L}\frac{dL}{dT} + \frac{dn}{dT}$$
(2.4)

na qual podemos definir  $\frac{dS}{dT} = \frac{1}{L}\frac{ds}{dT}$ , e usando o coeficiente de expansão linear *a*, dado por  $a = \frac{1}{L}\frac{dL}{dT}$ , podemos escrever a equação (2.4) como

$$\frac{dS}{dT} = n\mathbf{a} + \frac{dn}{dT} \tag{2.5}$$

Através deste exemplo podemos verificar que a variação no comprimento do caminho óptico do sistema, induzida por uma variação térmica, depende do índice

de refração, do coeficiente de expansão térmica e do coeficiente térmico do índice de refração (dn/dT). Estas grandezas e seus comportamentos em função da temperatura serão discutidos a seguir.

#### 2.1 - O coeficiente de expansão térmica (a)

Quando um material, sólido, líquido ou gasoso é submetido a uma variação de temperatura, este sofre uma variação em seu volume. Esta expansão térmica (ou contração) corresponde a uma variação do espaçamento interatômico médio do material. O coeficiente de expansão térmica de um material é um fator de proporcionalidade que mede a razão entre a variação (linear, superficial ou volumétrica) e o comprimento, área ou volume iniciais, em um dado intervalo de temperatura.

O coeficiente de expansão térmica volumétrica b é definido por [13]

$$\boldsymbol{b} = \frac{1}{V} \left( \frac{dV}{dT} \right)_{P}$$
(2.6)

Da relação termodinâmica

$$\left(\frac{dP}{dT}\right)_{V} \left(\frac{dT}{dV}\right)_{P} \left(\frac{dV}{dP}\right)_{T} = -1$$
(2.7)

e da definição da "constante de compressibilidade"  $\chi$  [13]

$$\boldsymbol{c} = -\frac{1}{V} \frac{dV}{dP} \tag{2.8}$$

podemos escrever o coeficiente de expansão térmica *b* como

$$\boldsymbol{b} = \boldsymbol{c} \left( \frac{dP}{dT} \right)_{V} \tag{2.9}$$

A derivada  $(dP/dT)_V$  pode ser calculada usando a equação de estado de Mie-Grüneisen [13]  $P(T,V) = P(0,V) + \mathbf{x}(U_D/V)$ , na qual  $\xi$  é o coeficiente de Grüneisen dado por

$$\mathbf{x} = -\frac{1}{\Theta} \frac{d\Theta}{dV} \tag{2.10}$$

Assim

$$\left(\frac{dP}{dT}\right)_{V} = \frac{\mathbf{x}}{V}C_{D}$$
(2.11)

na qual  $C_D$  é o calor específico a volume constante, que pode ser tomado como o calor específico segundo modelo de Debye. Portanto

$$\boldsymbol{b} = \frac{\boldsymbol{c}\boldsymbol{x}}{V} C_D \tag{2.12}$$

Como a "constante de compressibilidade"  $\chi$  varia pouco com a temperatura e o coeficiente de Grüneisen  $\xi$  é essencialmente constante, o coeficiente de expansão térmica varia do mesmo modo que o calor específico  $C_{D,}$  que é dado por[13]

$$C_{D} = \frac{dU_{D}}{dT} = 9\mathbf{h}Nk_{B} \left(\frac{T}{\Theta_{D}}\right)^{3} \int_{0}^{\Theta_{D}/T} \frac{x^{4}e^{x}}{\left(e^{x}-1\right)^{2}} dx$$
(2.13)

Nos limites termodinâmicos para o calor específico C<sub>D</sub>, temos que

$$C_{D} \sim T^{3}, \qquad T \to 0$$

$$C_{D} \sim constante, \qquad T \gg \Theta_{D}$$
(2.14)

Conseqüentemente, o coeficiente de expansão térmica

Na figura 1 apresentamos o comportamento característico do coeficiente de expansão térmica em função da temperatura, para vidros fosfato com diferentes composições, obtidos da ref. [14].



Figura 1 – Comportamento do coeficiente de expansão térmica em função da temperatura para vidros fosfato com diferentes composições. [14]

Podemos verificar na figura 1 que o comportamento do coeficiente de expansão térmica, na região de interesse deste trabalho (300 a 500 K), apresenta um aumento praticamente linear com a temperatura, tendendo a um valor constante para temperaturas muito acima da temperatura de Debye. Mais adiante veremos que o coeficiente de expansão térmica também tem um importante papel no coeficiente térmico do índice de refração (dn/dt).

#### 2.2 – O índice de refração (n)

A refração é o desvio que a luz sofre ao se propagar de um meio a outro, onde a velocidade de propagação entre os meios é diferente. O exemplo mais comum de refração de uma onda é o do desvio da luz ao passar do ar para um líquido.

O índice de refração n é definido como a razão entre a velocidade da luz no vácuo e a velocidade da luz no meio, ou seja

$$n = \frac{c}{v} \tag{2.16}$$

na qual c é a velocidade da luz no vácuo e v é a velocidade da luz no meio. O índice de refração ainda pode ser dado em termos da constante dielétrica  $\epsilon$  e permeabilidade magnética  $\mu$  por [5]

$$n = \sqrt{em} \,. \tag{2.17}$$

Para materiais dielétricos, isotrópicos e não magnéticos, em que  $m \approx 1$ , podemos escrever o índice de refração como

$$n = \sqrt{e} \tag{2.18}$$

que é a relação de Maxwell para o índice de refração[5].

Para compreendermos como o índice de refração depende da temperatura estudaremos as relações macroscópicas e microscópicas dos materiais dielétricos, como a polarizabilidade, a susceptibilidade elétrica e suas dependências com o campo elétrico.

#### 2.3 – O índice de refração n e a polarizabilidade

Todo meio material é composto de átomos, os quais são constituídos de entidades carregadas (núcleos atômicos e elétrons), que são afetados pela presença de um campo elétrico **E**. Os materiais dielétricos diferem dos materiais condutores por não apresentarem cargas livres em sua estrutura. Quando um campo elétrico é aplicado a um material dielétrico, causando um deslocamento das cargas negativas em relação às cargas positivas, como num dipolo elétrico, diz-se que o material está polarizado. Os materiais que possuem momentos de dipolo permanente são chamados de polar e os que adquirem momentos de dipolo quando sujeitos a um campo elétrico são chamados de não-polares.

Sob aplicação de um campo elétrico externo E, podemos distinguir quatro mecanismos básicos de polarização[15]:

- Quando o campo externo desloca o centro de carga da nuvem eletrônica de uma molécula em relação ao centro de carga de seu núcleo, resultando no aparecimento de momentos de dipolo induzidos, esta polarização é chamada de polarização eletrônica;
- <sup>o</sup> Quando átomos de diferentes tipos formam moléculas, normalmente não compartilham seus elétrons simetricamente e as nuvens eletrônicas são deslocadas excentricamente em torno dos átomos com maior poder de polarização. Assim, quando sujeitos a aplicação de um campo elétrico E, átomos (ou grupos de átomos) adquirem cargas de polaridades opostas que provocam deslocamentos em suas posições de equilíbrio. Este deslocamento induzido é chamado de polarização atômica.
- <sup>o</sup> A distribuição assimétrica de cargas entre átomos distintos que constituem as moléculas proporciona o surgimento de momentos de dipolo permanente, mesmo na ausência de um campo externo. Quando um campo elétrico externo é aplicado, tais momentos de dipolo experimentam um torque que tende a orientá-los na direção do campo. Este tipo de polarização é chamado de polarização de orientação ou polarizabilidade dipolar.
- Diferente dos três tipos anteriores, onde a polarização decorre de cargas ligadas localmente aos átomos, moléculas ou nas estruturas de sólidos ou líquidos, usualmente podem existir portadores de carga que podem migrar de um ponto a outro na estrutura do material. Quando tais portadores são impedidos de se mover por ficarem presos na estrutura do material, nas interfaces, ou mesmo por não conseguirem se descarregar livremente ou serem substituídos nos eletrodos, temos o surgimento de cargas espaciais ou interfaciais que provocam uma distorção do campo médio macroscópico aumentando a capacitância do material, como por exemplo, nos capacitores. Tal distorção é chamada de polarização interfacial.

Estes quatro mecanismos de polarização (caracterizados pela polarizabilidade eletrônica  $\gamma_{e}$ , polarizabilidade atômica  $\gamma_{a}$ , polarizabilidade dipolar  $\gamma_{d}$  e polarizabilidade interfacial  $\gamma_{i}$ ) estão representados na figura 2:



Figura 2 - Mecanismos básicos de polarização [15]

Sabendo que cada mecanismo descrito atua de forma independente, podemos definir a polarizabilidade total do meio material como a soma dos quatro parâmetros, caracterizada por  $\gamma$ , temos que

$$\boldsymbol{g} = \boldsymbol{g}_e + \boldsymbol{g}_a + \boldsymbol{g}_d + \boldsymbol{g}_s \tag{2.19}$$

Quando um campo elétrico E é aplicado a um meio dielétrico, tornando-o polarizado, a polarização elétrica P (momento de dipolo por unidade de volume) é dada por

$$\mathbf{P} = h\mathbf{E} \tag{2.20}$$

na qual o fator  $\eta$  é chamado de susceptibilidade dielétrica. A susceptibilidade dielétrica  $\eta$  esta relacionada com a constante dielétrica  $\epsilon$  por

$$\boldsymbol{e} = 1 + 4\boldsymbol{p}\boldsymbol{h} \tag{2.21}$$

O vetor polarização elétrica também pode ser definido como

$$\mathbf{P} = N\mathbf{p} \tag{2.22}$$

na qual N é o numero de moléculas por unidade de volume e **p** é o momento de dipolo.

Iremos assumir agora que o momento de dipolo **p**, estabelecido sob influencia de um campo **E** é proporcional ao campo interno **E**' do material. Para um material dielétrico, isotrópico e uniforme o campo interno é dado por [15]

$$\mathbf{E}' = \mathbf{E} + \frac{4\mathbf{p}}{3}\mathbf{P} \tag{2.23}$$

Assim, o momento de dipolo **p** pode ser escrito como

$$\mathbf{p} = \mathbf{g}\mathbf{E}' \tag{2.24}$$

na qual  $\gamma$  é a polarizabilidade do material. A polarizabilidade pode ser entendida como uma resposta do meio ao campo aplicado.

Assim, podemos escrever a polarização total como

$$\mathbf{P} = N\mathbf{p} = N\mathbf{g}\mathbf{E'} = N\mathbf{g}(\mathbf{E} + \frac{4\mathbf{p}}{3}\mathbf{P})$$
(2.25)

Resolvendo para **P**, em termos de **E** e usando a igualdade  $\mathbf{P} = h\mathbf{E}$ , encontramos uma relação entre a susceptibilidade dielétrica (parâmetro macroscópico) e a polarizabilidade  $\gamma$  (parâmetro microscópico), escrita como

$$\boldsymbol{h} = \frac{N\boldsymbol{g}}{1 - \frac{4\boldsymbol{p}}{3}N\boldsymbol{g}} \tag{2.26}$$

Uma vez que a constante dielétrica  $\varepsilon$  é dada por e = 1 + 4ph, podemos escrever a equação (2.26) como

$$\boldsymbol{e} = \frac{1 + \frac{\boldsymbol{8p}}{3} N\boldsymbol{g}}{1 - \frac{\boldsymbol{4p}}{3} N\boldsymbol{g}}$$
(2.27)

ou ainda, expressando em termos da constante dielétrica e do número de moléculas da amostra, temos que

$$\boldsymbol{g} = \frac{3}{4\boldsymbol{p}N} \left(\frac{\boldsymbol{e}-1}{\boldsymbol{e}+2}\right) \tag{2.28}$$

Esta equação é conhecida como equação de Clausius-Mossoti, pois Mossoti (em 1850), e Clausius (em 1879) estabeleceram que, para qualquer material, (e-1)/(e+2) deveria ser proporcional a densidade. Utilizando a relação de Maxwell para o índice de refração  $e = n^2$  e a equação de Clausius-Mossoti, Lorentz e Lorenz, mostraram independentemente e quase ao mesmo tempo (1880 e 1881, respectivamente) que a polarizabilidade média *g* está relacionada com o índice de refração *n* pela seguinte equação

$$g = \frac{3}{4pN} \left( \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)$$
(2.29)

que é conhecida como fórmula de Lorentz-Lorenz.

Para estimar os momentos de dipolo induzidos consideraremos um modelo simples de cargas (elétrons e íons) ligadas harmonicamente. Cada elétron com carga e está ligada sob ação de uma força restauradora

$$\mathbf{F} = -m\mathbf{W}_{0}^{2}\mathbf{r} \tag{2.30}$$

na qual *m* é a massa do elétron e  $w_0$  a freqüência da oscilação em torno do equilíbrio. Sob ação de um campo elétrico **E**, a carga é deslocada da sua posição de equilíbrio em **r**, onde temos que

$$m\mathbf{w}_0^2\mathbf{r} = e\mathbf{E} \tag{2.31}$$

Em conseqüência, o momento de dipolo induzido é

$$\mathbf{p} = e\mathbf{r} = \frac{e^2}{m\mathbf{w}_0^2} \mathbf{E}$$
(2.32)

Comparando a equação (2.24) com a equação (2.32), temos que a polarizabilidade é  $g = e^2/mw_0^2$ . Havendo em cada porção da matéria um conjunto de elétrons com cargas  $e_{j}$ , massas  $m_j$  e freqüências de oscilação  $w_j$ , a polarizabilidade média g é dada por

$$\boldsymbol{g} = \sum_{j} \frac{e_{j}^{2}}{m_{j} \boldsymbol{w}_{j}^{2}}$$
(2.33)

Este resultado é dominante em substâncias (materiais) não-polares. Para moléculas polares como o HCL e H<sub>2</sub>O, que são polarizadas pela orientação parcial de dipolos permanentes (polarização dipolar ou de orientação), a possibilidade de que a agitação térmica das moléculas possa modificar a polarizabilidade destes dipolos exige uma análise mais detalhada.

Considere um conjunto de momentos de dipolo permanente  $\mathbf{p}_0$ , que podem estar orientados em qualquer direção do espaço. Na ausência de um campo externo, a agitação térmica faz com que a orientação espacial das moléculas seja aleatória, resultando num momento de dipolo resultante nulo. Sob aplicação de um campo **E**, a tendência é de que haja um alinhamento dos dipolos ao longo do campo, na configuração de menor energia, resultando em um momento de dipolo induzido médio. Para calculá-lo, a hamiltoniana da molécula é dada por[16]

$$H = H_0 - \mathbf{p}_0 \cdot \mathbf{E} \tag{2.34}$$

na qual H<sub>0</sub> é uma função das coordenadas "internas" da molécula. Utilizando o fator de Boltzman  $f(H) = e^{-H/kT}$  e o valor médio do momento de dipolo na direção *z*, dado por

$$\left\langle p \right\rangle = \frac{\int d^3 p \int d^3 x(ez) f(H)}{\int d^3 p \int d^3 x f(H)}$$
(2.35)

podemos escrever

$$\langle p_{mol} \rangle = \frac{\int p_0 \cos q \exp\left(\frac{p_0 E \cos q}{kT}\right) d\Omega}{\int \exp\left(\frac{p_0 E \cos q}{kT}\right) d\Omega}$$
 (2.36)

na qual escolhemos **E** ao longo do eixo z. Resolvendo as integrais sobre todas as variáveis, verificamos que somente a componente de  $\mathbf{p}_0$  paralela ao campo é diferente de zero. Em geral, como o termo  $(\mathbf{p}_0 \mathbf{E}/kT) \ll 1$  (exceto para baixas temperaturas), podemos expandir as exponenciais obtendo[16]

$$\langle p_{mol} \rangle \approx \frac{1}{3} \frac{p_0^2}{kT} E$$
 (2.37)

Este resultado nos mostra que a polarização dipolar (ou de orientação) varia inversamente com a temperatura, o que era de se esperar de um efeito em que o campo aplicado deve superar a oposição da agitação térmica.

Em geral, as polarizações induzidas (eletrônica, atômica) e a de orientação estão presentes e a forma geral da polarização media é

$$\boldsymbol{g} \simeq \sum_{j} \frac{e_{j}^{2}}{m_{j} \boldsymbol{w}_{j}^{2}} + \frac{1}{3} \frac{p_{0}^{2}}{kT}$$
(2.38)

A equação (2.38) exibe uma dependência da polarizabilidade em relação à temperatura, da forma (a + b/T), de modo que os dois tipos de polarização podem ser separados experimentalmente. Embora este modelo não apresente uma dependência explicita do índice de refração com a temperatura para moléculas não-polares, é importante lembrar que a polarizabilidade também é função da densidade do meio material, a qual é dependente da temperatura.

Ao invés da polarizabilidade total *g*, uma outra quantidade chamada de refratividade molar (A) é freqüentemente usada. Tal quantidade é essencialmente a polarizabilidade total de um mol de uma determinada substância, sendo definida como

$$A = \frac{4\boldsymbol{p}}{3} N_m \boldsymbol{g} \,. \tag{2.39}$$

na qual  $N_m$  = 6,02x10<sup>23</sup> é o número de Avogadro, ou seja, o número de moléculas em um mol. Se *W* é o peso molecular, *r* a densidade, *p* a pressão e *T* a temperatura absoluta, o volume molar é definido como

$$\frac{Nm}{N} = \frac{W}{r} = \frac{RT}{p}$$
(2.40)

Usando as equações (2.39) e (2.40) podemos escrever a refratividade molar como

$$A = \frac{W}{r} \left( \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right) = \frac{RT}{p} \left( \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)$$
(2.41)

a qual mostra a dependência explícita da refratividade A com o índice de refração e com a densidade *r*.

Até o momento, verificamos as relações entre o índice de refração, a polarizabilidade, a densidade e a temperatura. Neste ponto, é importante entendermos como o índice de refração depende da freqüência do campo **E** aplicado. A variação do índice de refração com a freqüência constitui o fenômeno conhecido como *dispersão*.

Para um tratamento adequado da dispersão seria necessário estudar profundamente a teoria atômica da matéria. Entretanto, é possível estudar a dispersão em um meio de maneira simplificada, utilizando o eletromagnetismo clássico.

Se uma molécula não-polar é sujeita a um campo elétrico, os elétrons e núcleos podem sofrer um deslocamento de suas posições de equilíbrio, gerando um momento de dipolo. A soma de todos os momentos de dipolo é essencialmente o vetor polarização **P**, discutido anteriormente.

Para determinarmos a dependência da polarização e do índice de refração sobre a freqüência do campo **E** devemos primeiro encontrar o deslocamento **r** de cada partícula carregada de sua posição de equilíbrio. Devemos assumir que cada elétron está submetido a força de Lorentz, dada por

$$\mathbf{F} = e\left(\mathbf{E}' + \frac{\mathbf{v}}{c} \times \mathbf{B}'\right) \tag{2.42}$$

na qual e é a carga do elétron e **v** é sua velocidade. Como a velocidade aqui é assumida pequena se comparada a velocidade c da luz, a contribuição do campo magnético pode ser desprezada na expressão da força de Lorentz. Com uma boa aproximação, podemos assumir que o elétron tem uma força restauradora quase-elástica dada por

$$\mathbf{Q} = -q\mathbf{r} \tag{2.43}$$

Assim, se *m* for a massa do elétron, sua equação de movimento é dada por

$$m\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} + q\mathbf{r} = e\mathbf{E'}$$
(2.44)

Assumindo que  $w \neq a$  freqüência angular do campo aplicado

$$\boldsymbol{E}' = \boldsymbol{E}_0' \exp(i\boldsymbol{w}t) \tag{2.45}$$

e tomando como solução tentativa da equação (2.44) a expressão

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_0 \mathbf{e}^{-iwt} \tag{2.46}$$

temos que

$$\mathbf{r} = \frac{e\mathbf{E'}}{m(w_0^2 - w^2)} \tag{2.47}$$

na qual  $w_0 = (q/m)^{\frac{1}{2}}$  é chamada de ressonância ou freqüência de absorção. De acordo com a equação (2.47), o elétron oscila com a freqüência do campo incidente. Cada elétron contribui para a polarização com um momento **p**=e**r**. Existem também as contribuições do núcleo, mas desde que sua massa seja muito grande em comparação com a massa do elétron, esta contribuição pode ser desprezada na primeira aproximação. Assim, a polarização total **P** é dada por

$$\mathbf{P} = N\mathbf{p} = N\mathbf{e}\mathbf{r} = N\frac{\mathbf{e}^2}{m}\frac{\mathbf{E'}}{\left(\mathbf{w}_0^2 - \mathbf{w}^2\right)}$$
(2.48)

Das equações (2.25) e (2.48) temos que

$$Ng = N \frac{e^2}{m(w_0^2 - w^2)}$$
(2.49)

que expressa a "densidade de polarizabilidade" em termos de parâmetros atômicos. Para demonstrarmos que a quantidade  $\gamma$  não é uma constante, é conveniente introduzir uma constante dielétrica dependente da freqüência e(w) definida pela relação de Maxwell  $e = n^2$ , na qual *n* é o índice de refração, uma função n(w) de *w*. A constante dielétrica tem então o valor  $e(0) = n^2(0)$ , o qual corresponde, de acordo com a equação (2.28), ao valor limite Ng(0) que é encontrado a partir da equação (2.49),

$$N\boldsymbol{g}(0) = N \frac{e^2}{m\boldsymbol{w}_0^2}$$
(2.50)

Para  $w \neq 0$ , a função Ng(w) está, de acordo com a equação (2.49), crescendo monotonamente com w, mas apresenta um valor infinito (ponto de ressonância) onde  $w = w_0$ . Substituindo a equação (2.49) na fórmula de Lorent-Lorenz (equação (2.29)) nós encontramos a dependência explícita do índice de refração com a freqüência, dada por

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4p}{3} \frac{Ne^2}{m(\mathbf{w}_0^2 - \mathbf{w}^2)}$$
(2.51)

Até este ponto, apresentamos as dependências entre o índice de refração, a polarizabilidade, a densidade e a freqüência. A partir deste ponto, apresentamos a variação do índice de refração com a temperatura e o coeficiente dn/dT.

#### 2.4 - O coeficiente térmico do índice de refração dn/dT

O conceito de invariância do índice de refração, introduzido por Gladstone[17] para gases e líquidos e estendido para sólidos isotrópicos por Lorentz e Lorenz (1880) postula a existência de uma relação linear entre o volume V do meio e o índice de refração, que pode ser escrita como

$$A = V \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}$$
(2.52)

que é a refratividade A da substância, ou seja, uma medida da polarizabilidade do meio[17].

Nesta primeira aproximação a polarizabilidade é assumida como sendo independente da temperatura. Assim, sob variação de temperatura, qualquer mudança no índice de refração seria devido a uma mudança na densidade do meio. Como a densidade do meio usualmente decresce com o aumento da temperatura, seria esperado que o índice de refração também sofresse um decréscimo[17].

Este comportamento é geralmente observado em líquidos e em cristais cúbicos. No entanto alguns cristais, como o diamante, exibem comportamento

diferente, devido a baixa expansividade, quando examinados próximo as bandas de absorção (onde a polarizabilidade é máxima). Alguns tipos de vidros, cuja polarizabilidade tem valores muito próximos do coeficiente de expansão térmica, como o borato e fosfato, também podem exibir um decréscimo no índice de refração com o aumento da temperatura. Entretanto, a maioria dos vidros silicatos apresentam um aumento no índice de refração em função da temperatura[24].

Ao analisarmos a mudança no índice de refração com a temperatura, podemos verificar que ela é controlada por dois fatores que normalmente competem entre si. Primeiro, o volume do meio muda com a temperatura, normalmente aumentando com o aumento da temperatura, o que causa uma diminuição no número de espécies polarizáveis por unidade de volume e portanto um decréscimo no índice de refração. Segundo, a polarizabilidade individual também muda com a temperatura, normalmente aumentando em função desta, resultando num aumento do índice de refração[20].

Podemos verificar tais argumentos quantitativamente derivando o índice de refração da equação de Lorentz-Lorenz, conforme Prod'Homme[17]

$$n^2 = \frac{V + 2A}{V - A} \tag{2.53}$$

Diferenciando temos,

$$2n \, dn = \frac{3V \, dA - 3A \, dV}{\left(V - A\right)^2} = \frac{3AV}{\left(V - A\right)^2} \left(\frac{dA}{A} - \frac{dV}{V}\right)$$
(2.54)

Expressando o fator  $3AV/(V-A)^2$  da equação (2.54) em termos de n temos que

$$\frac{3AV}{(V-A)^2} = \frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{3}$$
(2.55)

Substituindo (2.55) na equação (2.54) temos

$$2n \, dn = \frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{3} \left[ \frac{dA}{A} - \frac{dV}{V} \right] \tag{2.56}$$

Derivando a equação (2.56) em relação a temperatura T temos

$$\frac{dn}{dT} = \left[\frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{6n}\right] \left[\frac{1}{A}\frac{dA}{dT} - \frac{1}{V}\frac{dV}{dT}\right]$$
(2.57)

Da equação (2.57) podemos introduzir o coeficiente de expansão volumétrica  $\boldsymbol{b} = \frac{1}{V} \frac{dV}{dT}$  e um coeficiente similar  $\boldsymbol{j} = \frac{1}{A} \frac{dA}{dT}$  para polarizabilidade, lembrando que a refratividade A é proporcional a polarizabilidade. Assim, podemos reescrever a equação (2.57) como

$$\frac{dn}{dT} = \frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{6n} (\mathbf{j} - \mathbf{b})$$
(2.58)

na qual podemos verificar que o coeficiente térmico do índice de refração é dominado pelo coeficiente térmico da polarizabilidade e pelo coeficiente de expansão térmica.

#### Capitulo 3 – Interferometria Óptica

Até meados do século XVII acreditava-se que a luz consistia na emissão de corpúsculos, por fontes luminosas, tais como o sol ou a chama de uma vela. Estes corpúsculos seriam emitidos em trajetórias retilíneas, podendo atravessar corpos transparentes e serem refletidos pela superfície de corpos opacos[18].

Embora a maioria dos estudiosos de Óptica deste período aceitassem como verdadeira a teoria corpuscular, fortemente defendida por Isaak Newton (1642-1727), começou-se a desenvolver a idéia de que a luz devia consistir em um movimento ondulatório de qualquer natureza. O primeiro fenômeno de interferência, as cores exibidas por um filme fino conhecidas como "Newton's Ring" (Anéis de Newton), foi descoberto independentemente por Robert Boyle e Robert Hooke [5]. Robert Hooke foi o primeiro a defender a idéia de que a luz consistia de rápidas vibrações se propagando instantaneamente, ou com uma velocidade muito grande. Hooke foi um dos principais opositores às teorias corpusculares apresentadas por Newton.

Em 1670, Christian Huygens mostrou que as leis de reflexão e refração podiam ser explicadas por uma teoria ondulatória, e que a explicação dos recém descobertos fenômenos de dupla refração, pela mesma teoria, era simples. Entretanto, a teoria ondulatória de Huygens não explicava a origem das cores, e sua teoria foi duramente criticada por Newton.

Somente no início do século XIX, as descobertas de Thomas Young (1773-1829) e Augustin Jean Fresnel (1774-1862) levaram a aceitação da teoria ondulatória da luz. Em 1801, Young enunciou o principio de interferência e a explicação para as cores nos filmes finos. Entretanto, apenas em 1827 as experiências de Young e Fresnel demonstraram a existência de fenômenos ópticos aos quais a teoria corpuscular não se adequava, estabelecendo definitivamente a natureza ondulatória da luz.

Historicamente, a interferência de ondas foi o meio de estabelecer a natureza ondulatória da luz. A partir das descobertas de Young e Fresnel a interferometria óptica tem se mostrado uma ferramenta altamente sensível em diversos campos da pesquisa científica, desde a astronomia à óptica. Atualmente a

interferometria tem importantes usos práticos, como a espectroscopia e a metrologia. Interferômetros também têm sido intensamente utilizados na determinação de propriedades físicas de materiais transparentes, como o coeficiente de expansão  $\alpha$ , o índice de refração n, o coeficiente térmico do índice de refração (dn/dT), ou ainda o dn/d $\lambda$  (coeficiente do comprimento de onda do índice de refração)[18], o que justifica o estudo e aplicação desta técnica.

#### 3.1 - Principio da superposição

O princípio da superposição estabelece que o deslocamento de um ponto qualquer do meio em que se propagam os trens de onda, num instante qualquer, é igual à soma geométrica dos deslocamentos instantâneos, que a esse ponto imprimiriam os trens de ondas se cada um agisse isoladamente. O termo deslocamento aqui tem um sentido geral. Quando as ondas que se consideram são ondas em um líquido, o deslocamento de um ponto da superfície é o deslocamento vertical desse ponto, acima e abaixo do nível a que o mesmo se encontrava. Tratando-se de ondas sonoras, o deslocamento se refere ao excesso ou à deficiência de pressão no ponto considerado. Se a ondas são eletromagnéticas, como a luz, o deslocamento se refere à intensidade de campo elétrico ou magnético[18].

#### 3.2 - Interferência de duas ondas monocromáticas

Ondas eletromagnéticas monocromáticas podem ser descritas como ondas caracterizadas por uma única freqüência. A intensidade *I* da luz tem sido definida como uma quantidade de energia a qual cruza, numa unidade de tempo, uma unidade de área perpendicular à direção do fluxo de energia. Para uma onda plana, temos

$$I = \frac{c}{4p} \sqrt{\frac{m}{e}} \left\langle \mathbf{E}^2 \right\rangle \tag{3.1}$$

Desde que nós comparemos intensidades no mesmo meio, podemos tomar a quantidade  $\langle E^2 \rangle$  como medida de intensidade. Como estamos preocupados

principalmente com campos monocromáticos, podemos representar o vetor campo elétrico E na forma

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \Re\{A(\mathbf{r})e^{-iwt}\} = \frac{1}{2}[A(\mathbf{r})e^{-iwt} + A^*(\mathbf{r})e^{iwt}], \qquad (3.2)$$

na qual A é um vetor complexo com coordenadas cartesianas

$$A_{x} = a_{1}(\mathbf{r})e^{-ig_{1}(\mathbf{r})}, \qquad A_{y} = a_{2}(\mathbf{r})e^{-ig_{2}(\mathbf{r})}, \qquad A_{z} = a_{3}(\mathbf{r})e^{-ig_{3}(\mathbf{r})}$$
(3.3)

na qual a<sub>j</sub> e g<sub>j</sub> (j = 1, 2, 3) são funções reais. Para uma onda plana homogênea as amplitudes a<sub>j</sub> são constantes; a função de fase g<sub>j</sub> é da forma  $g_j(\mathbf{r} \ \mathbf{r} \$ 

De (3.2) temos

$$\mathbf{E}^{2} = \frac{1}{4} (\mathbf{A}^{2} \mathbf{e}^{-2iwt} + \mathbf{A}^{*2} \mathbf{e}^{2iwt} + 2\mathbf{A} \cdot \mathbf{A}^{*})$$
(3.4)

da qual, tomando uma média temporal sobre um intervalo grande comparado com o período T =  $2 \pi/\omega$ , temos

$$\langle \mathbf{E}^2 \rangle = \frac{1}{2} \mathbf{A} \cdot \mathbf{A}^* = \frac{1}{2} \left( \left| A_x \right|^2 + \left| A_y \right|^2 + \left| A_z \right|^2 \right) = \frac{1}{2} \left( a_1^2 + a_2^2 + a_3^2 \right)$$
 (3.5)

Vamos supor agora que duas ondas monocromáticas  $E_1$  e  $E_2$  são superpostas no mesmo ponto P. O campo elétrico total em P é

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2, \qquad (3.6)$$

tal que

$$\mathbf{E}^{2} = \mathbf{E}_{1}^{2} + \mathbf{E}_{2}^{2} + 2\mathbf{E}_{1} \cdot \mathbf{E}_{2}$$
(3.7)

Assim, a intensidade total no ponto P é

$$I = I_1 + I_2 + J_{12} \tag{3.8}$$

na qual

$$I_1 = \left\langle \mathbf{E}_1^2 \right\rangle, \qquad I_2 = \left\langle \mathbf{E}_2^2 \right\rangle \tag{3.9}$$

são as intensidades das duas ondas, e
$$J_{12} = 2 \left\langle \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \right\rangle \tag{3.10}$$

é o termo de interferência. Vamos assumir que **A** e **B** sejam as amplitudes complexas das duas ondas, onde temos que

$$A_x = a_1 e^{ig_1}, \dots \qquad B_x = b_1 e^{ih_1}, \dots,$$
 (3.11)

As fases (reais)  $g_j e h_j$ , das duas ondas são em geral, diferentes, desde que as duas ondas tenham chegado até o ponto P por caminhos diferentes. Se as condições experimentais são tais que a diferença de fase  $\delta$  seja a mesma para as componentes, nós temos

$$g_1 - h_1 = g_2 - h_2 = g_3 - h_3 = \delta = \frac{2\pi}{\lambda_0} \Delta s$$
, (3.12)

na qual  $\Delta$ s é a diferença entre o caminho óptico para as duas ondas de suas fontes até o ponto P, e  $\lambda_0$  é o comprimento de onda no vácuo. Escrevendo **E**<sub>1</sub>.**E**<sub>2</sub> da equação (3.10) em termos da amplitudes **A** e **B** temos que,

$$\mathbf{E}_{1} \cdot \mathbf{E}_{2} = \frac{1}{4} (\mathbf{A}e^{-iwt} + \mathbf{A}^{*}e^{iwt}) \cdot (\mathbf{B}e^{-iwt} + \mathbf{A}^{*}e^{iwt})$$
  
$$= \frac{1}{4} (\mathbf{A} \cdot \mathbf{B}e^{-2iwt} + \mathbf{A}^{*} \cdot \mathbf{B}^{*}e^{iwt} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{B}^{*} + \mathbf{A}^{*} \cdot \mathbf{B})$$
(3.13)

tal que

$$J_{12} = 2\langle \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \rangle = 1/2 (\mathbf{A} \cdot \mathbf{B}^* + \mathbf{A}^* \cdot \mathbf{B})$$
  
=  $a_1 b_1 \cos(g_1 - h_1) + a_2 b_2 \cos(g_2 - h_2) + a_3 b_3 \cos(g_3 - h_3)$  (3.14)  
=  $(a_1 b_1 + a_2 b_2 + a_3 b_3) \cos d$ 

Esta expressão mostra que o termo de interferência ( $J_{12}$ ) depende das componentes da amplitude e da diferença de fase ( $\delta$ ) das duas ondas.

Considerando agora a distribuição da intensidade I resultante da superposição de duas ondas que se propagam na direção z, linearmente polarizadas com seus vetores E na direção x, temos que

$$a_2 = a_3 = b_2 = b_3 = 0$$
 (3.15)

Usando as equações (3.5), (3.9), (3.10) e (3.14),

$$I_{1} = \frac{1}{2}a_{1}^{2}, \qquad I_{2} = \frac{1}{2}b_{1}^{2}, J_{12} = a_{1}b_{1}\cos d = 2\sqrt{I_{1}I_{2}}\cos d$$
(3.16)

A intensidade total é então dada por (3.8)

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \cos d$$
 (3.17)

Assim, a intensidade apresenta máximos quando

$$\begin{cases} I_{\max} = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \\ |\mathbf{d}| = 0, \, 2\mathbf{p}, \, 4\mathbf{p}, \dots \end{cases}$$
(3.18)

e mínimos

$$\begin{cases} I_{\min} = I_1 + I_2 - 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \\ |\mathbf{d}| = \mathbf{p}, 3\mathbf{p}, 5\mathbf{p}... \end{cases}$$
(3.19)

No caso particular, quando as intensidades  $I_1$  e  $I_2$  são iguais, temos que a equação (3.17) se reduz a

$$I = 2I_{1}(1 + \cos \delta) = 4I_{1} \cos^{2} \frac{\delta}{2}$$
 (3.20)

## 3.3 – Interferência de dois feixes em uma placa paralela

Para tratar da interferência de dois feixes, vamos considerar uma placa plana paralela, de material transparente, isotrópica, e com índice de refração uniforme, iluminada por um feixe de luz S monocromático, conforme figura (3):



Figura 3 – Placa plana paralela iluminada por um feixe de luz ilustrando a reflexão e formação de franjas de interferência em um ponto P.

A diferença de caminho óptico é dada por

$$\Delta s = n'(AB + BC) - nAN \tag{3.21}$$

na qual n' e n são os índices de refração da placa e da vizinhança (do meio). Sendo *h* a espessura da placa,  $\theta \in \theta$ ' são os ângulos de incidência e refração, temos

$$AB = BC = \frac{h}{\cos q}$$
 (3.22)

$$AN = AC \sin \theta = 2h \tan \theta' \sin \theta, \qquad (3.23)$$

Usando a lei de Snell

$$n' \sin \theta' = n \sin \theta$$
 (3.24)

Assim, a diferença de caminho óptico é dada por,

$$\Delta \mathbf{s} = 2n'h\cos q', \qquad (3.25)$$

e a correspondente diferença de fase é

$$\boldsymbol{d} = \frac{4\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{l}_0} n' h \cos \boldsymbol{q}$$
 (3.26)

A intensidade no padrão das franjas varia de acordo com a equação (3.17), ou seja, para o caso particular de máximos de intensidade temos:

$$2n h \cos q = m l_0, \qquad m = 0, 1, 2, \dots$$
 (3.27)

e para os mínimos de intensidade

$$2n h \cos q = m I_0, \qquad m = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \dots$$
 (3.28)

na qual m é o número de ordem da franja de interferência. É importante ressaltar que o número m é proporcional à diferença de caminho óptico, podendo assumir qualquer valor para intensidades intermediárias.

### 3.4 - Interferência de múltiplos feixes

Para discutirmos a interferência entre múltiplos feixes, vamos considerar uma placa transparente, de índice de refração uniforme n', e supor que um feixe de luz monocromática incide sobre a superfície da placa com um ângulo  $\theta$ . Na figura 4 podemos visualizar que este feixe sofre múltiplas reflexões nas superfícies da placa, resultando numa série de feixes com amplitudes diminuindo. Se estes feixes que emergem de cada superfície da placa apresentarem diferença de fase num ponto P, teremos interferência.



Figura 4 – Placa plana paralela iluminada por um feixe de luz ilustrando a reflexão de múltiplos feixes: As franjas de interferência são formadas em P

Para um feixe de luz que se propaga do ar para a placa, vamos assumir que r seja o coeficiente de reflexão (razão da amplitude refletida e incidente), e t o coeficiente de transmissão (razão da amplitude transmitida e amplitude incidente); e r' e t' os coeficientes correspondentes à onda se propagando da placa para o ar. As amplitudes complexas das ondas refletidas da placa são então

$$rA^{(i)}, tt'r'A^{(i)}e^{id}, tt'r'^{3}A^{(i)}e^{2id}, \dots tt'r'^{(2p-3)}A^{(i)}e^{i(p-1)d}, \dots$$
 (3.29)

na qual p é o numero de reflexões.

Similarmente, a amplitudes complexas das ondas transmitidas através da placa são

$$tt'A^{(i)}, tt'r'^2A^{(i)}e^{id}, tt'r'^4A^{(i)}e^{2id}, \dots tt'r'^{2(p-1)}A^{(i)}e^{i(p-1)d},\dots$$
(3.30)

Assim, para cada componente polarizada, temos que

$$tt' = T,$$
  $r^2 = r^2 = R,$  (3.31)

na qual *R* e *T* são, respectivamente a refletividade e transmissividade das superfícies da placa, relacionadas por

$$R + T = 1.$$
 (3.32)

Se as *p* ondas refletidas são superpostas, a amplitude A<sup>(r)</sup>(p) do vetor campo elétrico da luz refletida é dado pela expressão

$$A^{(r)}(p) = \{r + tt' r' A^{(i)} e^{i\delta} (1 + r'^{2} e^{i\delta} + ... + r'^{2(p-2)} e^{i(p-2)\delta})\}A^{(i)}$$

$$= \left\{r + \left(\frac{1 - r'^{2(p-1)} e^{i(p-1)\delta}}{1 - r'^{2} e^{i\delta}}\right)t' r' \frac{e^{i\delta}}{-1}\right\}A^{(i)}$$
(3.33)

Se a placa for suficientemente longa, o número de ondas refletidas p é grande. Tomando o limite p  $\to \infty$  , temos que

$$A^{(r)} \equiv A^{(r)}(\infty) = -\frac{r\{1 - (r'^2 + tt')e^{i\delta}\}}{1 - r'^2 e^{i\delta}} A^{(i)}, \qquad (3.34)$$

De (3.31) e (3.32) nos obtemos que

$$A^{(r)} = \frac{(1 - e^{i\delta})\sqrt{R}}{1 - Re^{i\delta}} A^{(i)}, \qquad (3.35)$$

Como a intensidade de luz refletida é dada por  $I^{(r)} = A^{(r)} \cdot A^{(r)^*}$ , temos que

$$I^{(r)} = \frac{(2 - 2\cos\delta)R}{1 + R^2 - 2R\cos\delta}I^{(i)} = \frac{4R\,\text{sen}^2\frac{\delta}{2}}{(1 - R)^2 + 4R\,\text{sen}^2\frac{\delta}{2}}I^{(i)}$$
(3.36)

na qual  $I^{(i)} = A^{(i)} \cdot A^{(i)*}$ . A equação (3.36), conhecida como formula de Airy, ainda pode ser escrita como

$$I^{(r)} = \frac{F \operatorname{sen}^{2} \frac{\delta}{2}}{1 + F \operatorname{sen}^{2} \frac{\delta}{2}} I^{(i)}, \qquad (3.37)$$

na qual o parâmetro F é dado por

$$F = \frac{4R}{(1+R)^2}.$$
 (3.38)

e R, para uma incidência perpendicular, pode ser escrito em termos de n e n' como

$$R = \left(\frac{n'-n}{n'+n}\right)^2 \tag{3.39}$$

Na figura 5 podemos verificar que, embora as intensidades se apresentem de maneira diferente para as equações (3.17) (feixes com intensidades diferentes), equação (3.20) (feixes com intensidades iguais) e (3.36) (intensidade para múltiplos feixes), a posição dos máximos e mínimos, com relação a fase, é constante.



Figura 5 - Variação da intensidade com a diferença de fase – Interferência de dois feixes de intensidades diferentes, feixes de intensidades iguais e para múltiplos feixes.

Este fato é importante pois, como veremos, as medidas de dS/dT dependem da posição dos máximos e mínimos em relação a temperatura.

### 3.5 - Interferência óptica em cristais

Os cristais transparentes são classificados em três grupos distintos, de acordo com suas propriedades ópticas:[5]

Grupo I – São os cristais que possuem os três eixos ópticos iguais, ortogonais. Tais cristais são chamados de cúbicos, pois suas direções equivalentes coincidem com o eixo dielétrico principal, ou seja, são opticamente isotrópicos e equivalem a um sólido amorfo.

Grupo II – Cristais os quais duas ou mais direções equivalentes (eixos) podem ser escolhidos em um plano. Estes são cristais de sistemas trigonais,

tetragonais ou hexagonais, ou seja, possuem três, quatro ou seis eixos simétricos no plano, e um eixo perpendicular distinto. Se o eixo perpendicular distinto é tomado como sendo o eixo z, temos que  $e_x = e_y \neq e_z$ . Tais cristais são chamados de opticamente uniaxiais.

Grupo III – Cristais nos quais duas direções equivalentes não podem ser escolhidas. Estes cristais são sistemas ortorrômbicos, monoclínicos ou tetraclínicos. Aqui  $e_x \neq e_y \neq e_z$  e as direções dos eixos dielétricos podem ou não ser determinadas por simetria (Tabela 1) e podem ser dependentes do comprimento de onda. Cristais deste grupo são chamados de opticamente biaxiais.

Tipo de Cristal	Eixos Di	elétricos	Classificação Óptica
Triclínico	CCC		Biaxial
Monoclínico	CCF	$\overline{\prec}$	Biaxial
Ortorrômbico	FFF	$\rightarrow$	Biaxial
Trigonal Tetragonal Hexagonal	FRR	֯	Uniaxial
Cúbico	RRR	$(\cdot)$	Isotrópico

Tabela 1 – Classificação óptica dos cristais

C = Eixo dependente de  $\lambda$ , F = Eixo Fixo na direção, R = Eixo de rotação livre ou indeterminado

Neste trabalho realizamos medidas em cristais uniaxiais, para os quais a anisotropia nos parâmetros térmo-ópticos tem grande importância e devem ser consideradas.

Quando um feixe de luz de polarização arbitrária incide em um cristal anisotrópico, este feixe é decomposto em dois feixes que se propagam no cristal com velocidades e polarização diferentes, definidos pelas propriedades de cada eixo do cristal. Isto leva a comprimentos de caminho óptico diferentes para cada um dos feixes. Na figura 6 temos a representação de uma placa de cristal uniaxial, de espessura h, na qual incide um feixe de luz não polarizada. Na figura podemos ver que o feixe  $E_1$ , que incide na primeira superfície da placa, é decomposto em dois feixes de luz,  $E_2$  e  $E_3$  os quais se propagam dentro da placa.



Figura 6 – Placa de cristal uniaxial ilustrando a decomposição de feixes: a interferência deve ocorrer no ponto P

Os feixes são refletidos pela segunda superfície do cristal e interferem em um ponto P com o feixe E<sub>1</sub>, refletido na primeira superfície. Considerando que os índices de refração dos eixos do cristal são n' e n" e o índice de refração do meio externo à placa é n, temos que a diferença de fase entre os feixes E<sub>1</sub> e E<sub>2</sub> é dada por

$$\boldsymbol{d}_{12} = \frac{2\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{l}} n' 2h \tag{3.40}$$

e a diferença de fase entre  $E_1$  e  $E_3$  é dada por

$$\boldsymbol{d}_{13} = \frac{2\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{l}} n'' 2h \tag{3.41}$$

De acordo com a equação (3.17), a intensidade obtida da interferência de duas ondas monocromáticas é dada por

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \cos d$$

No entanto, devido ao princípio de superposição, a intensidade que teremos no ponto P será dada pela soma das intensidades de E<sub>1</sub> e E<sub>2</sub>, e E<sub>1</sub> e E<sub>3</sub>, ou seja

$$I = I_{12} + I_{13} \tag{3.42}$$

na qual I12 é dada por

$$I_{12} = I_1' + I_2 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \cos d_{12}$$
(3.43)

e I13 é dada por

$$I_{13} = I_1^{"} + I_3 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_3} \cos d_{13}$$
(3.44)

e  $I_1'$  e  $I_1''$  são as componentes de E<sub>1</sub> na direção de n' e n", respectivamente. Assim, a equação (3.42) pode ser escrita como

$$I = I_1 + I_2 + I_3 + 2\sqrt{I_1 \cdot I_2} \cos d_{12} + 2\sqrt{I_1 \cdot I_3} \cos d_{13}, \qquad (3.45)$$

na qual  $I_1 = I_1 + I_1^{"}$ .

É importante ressaltar que neste modelo não consideramos as interferências entre os feixes  $E_2$  e  $E_3$ , que devem ser de menor intensidade que as interferências consideradas.

Para uma simulação computacional da intensidade em cristais uniaxiais, vamos assumir que a equação (3.45) pode ser escrita como

$$l = \cos d_{12} + \cos d_{13} + cte \tag{3.46}$$

Lembrando que  $\cos a + \cos b = 2\left[\cos\frac{(a-b)}{2}\right]\left[\cos\frac{(a+b)}{2}\right]$  podemos escrever que

$$I = 2 \left[ \cos \frac{(d_{12} - d_{13})}{2} \right] \left[ \cos \frac{(d_{12} + d_{13})}{2} \right] + cte$$
(3.47)

Para a simulação, vamos supor que n' e n" são funções de uma variável termodinâmica X, que pode, por exemplo, ser a temperatura. Então,

$$n' = n'_0 + \frac{dn'}{dX} \cdot \Delta X \tag{3.48}$$

е

$$n'' = n_0'' + \frac{dn''}{dX} \cdot \Delta X \tag{3.49}$$

Assim,

$$\boldsymbol{d}_{12} = \frac{2\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{l}} \left( n_0 + \frac{dn}{dX} \cdot \Delta X \right) 2h$$
(3.50)

е

$$\boldsymbol{d}_{13} = \frac{2\boldsymbol{p}}{\boldsymbol{l}} \left( n_0^{"} + \frac{dn^{"}}{dX} \cdot \Delta X \right) 2h$$
(3.51)

De acordo com a equação (3.47), podemos escrever a intensidade como

$$I = 2\cos\left[\frac{4ph}{l}\left(\frac{n_0' - n_0'}{2} + \frac{\left(\frac{dn'}{dX} - \frac{dn''}{dX}\right)}{2} \cdot \Delta X\right)\right]\cos\left[\frac{4ph}{l}\left(\frac{n_0' - n_0'}{2} + \frac{\left(\frac{dn'}{dX} + \frac{dn''}{dX}\right)}{2} \cdot \Delta X\right)\right]$$
(3.52)

Na figura 7 apresentamos um gráfico para a equação (3.52), na qual podemos verificar uma modulação nas intensidade causada pela superposição das interferências.



Figura 7 – Simulação da Intensidade / em um cristal uniaxial

Através do gráfico da figura 7, podemos verificar, de imediato, informações muito importantes sobre a amostra. O padrão das franjas de interferência indica que a amostra apresenta diferentes dn/dX, sendo portanto, anisotrópica. Também

podemos verificar, conforme equação (3.52), que o intervalo entre os máximos (ou mínimos) de interferência é proporcional à  $\left(\frac{dn}{dX} + \frac{dn}{dX}\right)/2$ , enquanto o intervalo entre a modulação (curva em vermelho) é proporcional à  $\left(\frac{dn}{dX} - \frac{dn}{dX}\right)/2$ .

Para esta simulação, não consideramos a variação da espessura da amostra com o parâmetro X. No caso de X ser a temperatura, além da variação do índice de refração, devemos também considerar a variação da espessura da amostra com a temperatura, ou seja

$$h = h_0 + \frac{dh}{dT} \cdot \Delta T = h_0 + \mathbf{a} \cdot \Delta T$$
(3.53)

na qual  $\alpha$  é o coeficiente de expansão térmica na direção de propagação do laser.

Devemos agora lembrar que a intensidade *I* das franjas de interferência é proporcional ao quadrado da amplitude do campo elétrico **E**, conforme equação (3.1) e que os feixes de luz que se propagam no cristal terão seu campo elétrico polarizados em sentidos diferentes, conforme a simetria dos eixos deste.

Desta forma, se polarizarmos a luz incidente na direção de um dos eixos do cristal, podemos anular um dos pares de feixes, destruindo o fenômeno de batimento. Neste caso, a intensidade *I* será dada somente pela equação (3.17) e o gráfico da intensidade será como na figura 5, não apresentando modulação. No capítulo 6.4 veremos que tal fato pode ser utilizado para determinar o dS/dT dos diferentes eixos do cristal.

# Capítulo 4 – Montagem e Princípios de Medida do dS/dT

Neste capítulo apresentamos uma descrição das montagens experimentais utilizadas neste trabalho e descrevemos o princípio de medida do dS/dT em função da temperatura para as diferentes montagens, considerando suas diferentes características.

# 4.1 - Montagem experimental

Neste trabalho realizamos duas montagens experimentais de interferômetro que nos fornecem valores diferentes de dS/dT, de acordo com o caminho óptico de cada uma.

As duas montagens estão representadas nas figuras 8 e 9 e possuem algumas características comuns. A primeira montagem, representada na figura 8, utiliza o principio de reflexão em uma placa paralela discutido no capitulo 3.3.



Figura 8 – Diagrama esquemático da montagem 1 – No detalhe: Padrão das franjas de interferência no fotodiodo.

Nesta montagem, utilizamos um laser de He-Ne ( $\lambda$ =632,8 nm) nãopolarizado como fonte de luz. O feixe do laser é expandido por uma lente convergente, de foco de 10cm, colocada a 15 cm do laser, incidindo na amostra que está posicionada dentre de um forno resistivo, a uma distância de aproximadamente 30cm da lente. O feixe incide quase que perpendicular à amostra ( $\theta \approx 0.8^{\circ}$  em relação ao ângulo normal à superfície da amostra), de modo que a reflexão da primeira superfície da amostra venha interferir com a reflexão da segunda superfície. As duas reflexões ainda são expandidas em uma lente convergente, de foco de 3cm, até atingirem o fotodiodo, que tem um diâmetro de 3mm e está a uma distância de 20 cm da lente. Desta forma, o espaçamento entre as franjas no fotodiodo é de aproximadamente 5 mm, de modo que a intensidade entre máximos e mínimos seja bem definida. Nas medidas realizadas em cristais, um polarizador é adicionado entre o laser e a primeira lente. É importante ressaltar que nesta montagem o papel de interferômetro cabe à amostra, a qual deve estar polida e com as faces paralelas.



Figura 9 – Diagrama esquemático da montagem 2. No detalhe: Padrão das franjas de interferência no fotodiodo.

Na segunda montagem, o feixe do laser é dividido em um "*beam-splitter*" que reflete parcialmente o feixe para um espelho, conforme figura 9. O espelho está posicionado de forma que o feixe do laser siga paralelo ao feixe que atravessa o "*beam-splitter*". Ambos feixes passam por dentro do forno, porém um passa pela amostra e o outro passa ao lado, no ar. Os feixes são unidos novamente utilizando outro espelho e um "*beam-splitter*". O feixe é refletido por um espelho até atingir uma

lente convergente de foco 3cm, que irá expandir o feixe até atingir o fotodiodo, que se encontra a 20 cm da lente. Nesta configuração, as franjas apresentam um espaçamento de 5mm ao atingirem o fotodiodo, que tem um diâmetro de 3mm.

A partir do fotodiodo, a montagem é igual para os dois sistemas. A variação de temperatura do forno é controlada por um controlador de temperatura (Lakeshore Cryonics Inc. - mod. 340), utilizando um sensor PT-100. Os experimentos foram realizados com a temperatura variando desde temperatura ambiente (em torno de 27°C) até 180°C, numa taxa de 1°C/min. A variação da temperatura na amostra provoca o deslocamento dos máximos e mínimos de intensidade das franjas de interferência, que é detectado pelo fotodiodo. A aquisição do sinal do fotodiodo é feita por um nanovoltímetro (Keithley- mod. 2182), e enviado ao microcomputador para análise.

As duas montagens interferométricas apresentaram muita sensibilidade a vibrações, motivo pelo qual a maioria das medidas foi realizada durante a noite, ou em períodos em que houvesse pouca atividade nos laboratórios. Pequenas vibrações, como pessoas andando ou um ar-condicionado ligado na sala, causavam um deslocamento das franjas de interferência, o que gerava ruído nas medidas. Um outro problema apresentado durante as medidas foi o deslocamento de ar próximo ao forno, enquanto este era aquecido. Este problema foi minimizado utilizando um *shield* no forno. Na montagem 2, que ainda está em fase de testes, todos estes problemas se apresentaram de forma mais acentuada.

#### 4.2 - Princípios de medidas de dS/dT

Para a primeira montagem, que utiliza o principio de reflexão em uma placa paralela, podemos escrever a diferença de caminho óptico como

$$\Delta \mathbf{s} = 2nL\cos \mathbf{q}' = m\mathbf{I} \tag{4.1}$$

Para um ângulo de incidência pequeno, podemos escrever

$$s = nL = \frac{l}{2}m \tag{4.2}$$

na qual  $s = \Delta s / 2$ . Derivando em relação à temperatura T e dividindo por L, temos

$$\frac{1}{L}\left(\frac{ds}{dT}\right) = \left(\frac{dn}{dT}\right) + n\mathbf{a} = \frac{1}{2L}\left(\frac{dm}{dT}\right)$$
(4.3)

na qual  $a = \frac{1}{L} \left( \frac{dL}{dT} \right)$  é o coeficiente linear de expansão térmica, na direção do feixe

de laser incidente.

Definindo 
$$\frac{1}{L} \left( \frac{ds}{dT} \right) = \left( \frac{dS}{dT} \right)$$
, podemos escrever (4.3) como  
 $\left( \frac{dS}{dT} \right) = na + \left( \frac{dn}{dT} \right) = \frac{1}{2L} \left( \frac{dm}{dT} \right)$  (4.4)

Na segunda montagem, a diferença de caminho óptico  $\Delta s$  é dada por

$$\Delta \mathbf{s} = nL - n_{ar}L = m\mathbf{I} \tag{4.5}$$

pois devemos considerar que um dos feixes passa pelo ar. Assim, derivando a equação (4.5) em relação a T e dividindo por L, temos que o dS/dT para a segunda montagem é

$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{2} = (n - n_{ar})\mathbf{a} + \left(\frac{dn}{dT} - \frac{dn_{ar}}{dT}\right) = \frac{1}{L} \left(\frac{dm}{dT}\right)_{2}$$
(4.6)

### 4.3 - O dS/dT em Cristais anisotrópicos.

Quando tratamos do dS/dT de cristais anisotrópicos, é necessário considerar que estes possuem diferentes valores de dS/dT para os diferentes eixos ópticos do cristal, que dependem do índice de refração e do coeficiente de expansão térmica.

Na figura 10 temos o desenho de duas amostras de um mesmo tipo de cristal uniaxial, ou seja, que possui um eixo óptico diferente, onde  $a=b\neq c$ .



Figura 10 - Desenho de amostras de cristal cortadas em diferentes eixos

Na figura 10 a amostra A tem o eixo c perpendicular ao plano de incidência do laser, formado pelos eixos a e b, enquanto na amostra B o eixo b é perpendicular ao plano de incidência do laser, formado pelos eixos a e c. Considerando que o vetor campo elétrico **E** é perpendicular ao vetor de propagação do laser, o vetor de Pointing **S**, podemos definir o dS/dT (montagem 1) para as amostras da seguinte forma:

Amostra A:

$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{(S\parallel c)} = n_a \mathbf{a}_c + \left(\frac{dn}{dT}\right)_a$$

Amostra B:

$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{(E||a)} = n_a \boldsymbol{a}_a + \left(\frac{dn}{dT}\right)_a \qquad \mathbf{e}$$
$$\left(\frac{dS}{dT}\right)_{(E||c)} = n_c \boldsymbol{a}_a + \left(\frac{dn}{dT}\right)_c$$

nas quais  $\alpha_c \in \alpha_a$  são os coeficientes de expansão térmica na direção dos eixos c e a, respectivamente; n<sub>c</sub> e n<sub>a</sub> são os índices de refração na direção dos eixos c e a, respectivamente, e  $(dn/dT)_a$  e  $(dn/dT)_c$  são os coeficientes térmicos do índice de refração dos eixos a e c, respectivamente. Na amostra A, como os eixos a e b são iguais, temos apenas um dS/dT cujo sub-índice (S||c) significa que o eixo c é paralelo ao vetor de Pointing **S**. A amostra B, no entanto, possui dois dS/dT

diferentes devido aos diferentes eixos ópticos, onde os sub-índices (E||a) e (E||c) significam que o campo elétrico **E** está paralelo ao eixo a e c, respectivamente. Este sistema de nomenclatura do dS/dT para os cristais será utilizado durante todo este trabalho.

### 4.3 – Caracterização do sistema

Para caracterização do sistema nós utilizamos uma amostra de quartzo QS (sílica fundida), fabricada pela empresa Hellma, com as seguintes características:

Tabela 2 – Características da amostra de Quartzo QS usada como padrão.

Amostra	Espessura	α (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	n	dn/dT (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )
Quartzo QS	1mm	0.6[22]	1.458[22]	11 [40]

Na figura 11 apresentamos o interferograma para a amostra de quartzo QS, obtido através da montagem 1, de temperatura ambiente até 180°C.



Figura 11 – Interferograma para amostra de Quartzo QS

Através do gráfico da figura 11 nós determinamos a posição dos máximos e mínimos de intensidade em função da temperatura, os quais são apresentados no gráfico da figura 12.



Figura 12 – Pontos de máximos e mínimos de interferência (m) em função da temperatura para amostra de Quartzo QS

Conhecendo a posição dos máximos e mínimos *m* em função da temperatura podemos obter dm/dT para a amostra. Conforme discutido anteriormente, o dm/dT é proporcional ao dS/dT, o qual é calculado através da equação (4.4). Na figura 13 exibimos um gráfico de dS/dT em função da temperatura para a amostra de quartzo QS.



Figura 13 – Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostra de quartzo QS comercial

A partir do ajuste linear de dS/dT vs T obtivemos para temperatura ambiente o valor de 12,1(±0,6)(.10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>). Utilizando os valores de  $\alpha$ , n e dn/dT da tabela 2 e a equação (4.4) encontramos dS/dT= 11,9(.10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>), o que mostra um excelente acordo de nosso resultado com os dados da literatura.

Ainda com o objetivo de caracterizar o sistema, medimos uma amostra de água destilada e deionizada. Utilizando uma cubeta de quartzo podemos medir diretamente o coeficiente térmico do índice de refração dn/dt de líquidos transparentes, com boa aproximação, pois o coeficiente de expansão térmica do quartzo é muito baixo ( $\alpha = 6.10^{-7} \text{ K}^{-1}$ ) se comparado ao dn/dT dos líquidos, que é da ordem de  $10^{-4} \text{ K}^{-1}$ .

Na figura 14 apresentamos o interferograma de uma amostra de água destilada e deionizada.



Figura 14 – Interferograma para amostra de água destilada e deionizada

No interferograma podemos verificar que entre as temperaturas de 30°C e 35°C temos uma franja a cada 0.5 °C, enquanto para o intervalo entre 65°C e 70°C temos uma franja a cada 0.3°C. A precisão na determinação do dS/dT depende diretamente da precisão na determinação da posição dos máximos e mínimos em função da temperatura. Assim, para se ter um erro de 1% é necessário ter uma precisão no controle da temperatura da ordem de milésimos de grau, o que é obtido utilizando o controlador de temperatura Lakeshore Cryonics Inc. - mod. 340.

Através do interferograma é possível determinar a posição dos máximos e mínimos de interferência em função da temperatura, as quais são apresentadas na figura 15.



Figura 15 - Gráfico do número de máximos m em função da temperatura T para a amostra de água destilada e deionizada

Na figura 16 apresentamos os valores de dn/dT em função da temperatura.



Figura 16 – Gráfico de dn/dT em função da temperatura para amostra de água destilada e deionizada. • Dados experimentais. <sup>3</sup>/<sub>4</sub> Dados obtidos Ref. [23]

Através do gráfico, podemos verificar uma boa concordância entre o valor medido e o valor encontrado na literatura [23], no intervalo de temperatura medido.

# Capitulo 5 - Amostras medidas

Neste capítulo apresentamos as amostras medidas, suas composições e concentrações de dopante, e descrevemos o processo de polimento dos vidros e cristais, o qual se mostrou fundamental neste trabalho.

#### 5.1 - Vidros alumino-silicato de cálcio

Os vidros alumino-silicato de cálcio, ou simplesmente aluminato de cálcio, têm sido largamente estudados como candidatos a meio ativo de lasers. O vidro aluminato de cálcio, quando preparado em vácuo, apresenta transmissão na região do infra-vermelho tão alta quanto a safira[3], o que o torna atrativo para diversas aplicações. Lasers que emitem no infravermelho têm grandes aplicações na área médica, pois a água, que representa 80% do peso do corpo humano, tem grande absorção nesta região do espectro. Desta forma um laser que venha emitir no infravermelho pode ser utilizado no corte e remoção de tecidos com grande precisão. Tais lasers também têm grande aplicação na área de telecomunicação, como geradores de pulsos para fibras ópticas. O Grupo de Estudo dos Fenômenos Fototérmicos (GEFF), em conjunto com o Laboratório de Lasers e Aplicações (LLA), IFSC-USP tem trabalhado no sentido de desenvolver lasers utilizando o vidro aluminato de cálcio dopado com terras-raras como meio ativo.

Um protótipo de laser, utilizando o vidro aluminato de cálcio dopado com  $Nd_2O_3$  como meio ativo, já está sendo testado no LLA-IFSC-USP e apresentou emissão em  $\lambda$ =1077nm e uma eficiência de 34%, comparável ao vidro comercial LHG-5. Em comparação com outros sistemas vítreos, o aluminato de cálcio tem apresentado propriedades mecânicas bem superiores aos materiais disponíveis comercialmente, sendo 5,7 vezes mais resistente a choques térmicos que o vidro LHG-8 e 1,7 vezes que o vidro ED-2. Por outro lado, o vidro aluminato de cálcio ainda apresenta grande espalhamento de luz e altos valores de dS/dT, comparados com outros vidros disponíveis comercialmente, indicando que ainda são necessárias alterações na composição do vidro base e nas condições de preparo[30].

### 5.1.1 - Amostras de Vidro aluminato de cálcio, preparadas em vácuo

As amostras de vidro aluminato de cálcio preparadas em vácuo medidas neste trabalho foram preparadas nos laboratórios do GEFF e apresentam as seguintes composições, concentrações e espessura:

Tabela 3 – Composição, concentração e espessura da amostras de vidro aluminato de cálcio preparadas em vácuo

Vidro aluminato de cálcio (wt. %)	Concentração	Espessura (mm) (± 0,01)
47.4 CaO + (41.5-X)Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + 7.0 SiO <sub>2</sub> + 4.1 MgO +X Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	X = 0	3,72
	X = 0.5	4,84
	X = 1.0	5,03
	X = 2.0	4,97
	X = 4.0	5,42
Preparação: Ref. [25][26][27]	X = 5.0	4,46

#### 5.1.2 - Amostras de Vidro aluminato de cálcio, preparadas em ar

As amostras de vidro aluminato de cálcio preparadas em ar foram feitas no IFGW - UNICAMP, pelo Dr. Juraci A. Sampaio e apresentam as seguintes composições, concentração de dopante e espessura:

Tabela 4 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro aluminato de cálcio preparadas em ar

Vidro aluminata da cálcia (ut0()	Concentração	Espessura	
vidro aluminato de calcio (wt%)	Concentração	(mm) (± 0,01)	
$47.4 \text{ CaO} + (41.5 \text{-} \text{X})\text{Al}_2\text{O}_3 + 7.0 \text{ SiO}_2 + 4.1 \text{ MgO} + \text{X} \text{ Nd}_2\text{O}_3$	X= 0	2,58	
Preparação: Ref. [25]	X = 2.0	2,30	

# 5.2 - Vidros fosfato

Os vidros fosfatos apresentam ótimas propriedades termo-ópticas, já existindo lasers comerciais utilizando tais vidros como meio ativo[39]. Além desta aplicação, existem pesquisas em que o vidro fosfato, com algumas modificações, tem se mostrado bioativo, induzindo a formação e regeneração de ossos[32]. O vidro

fosfato, dopado com ferro, também tem sido utilizado na imobilização de rejeitos radioativos[33].

As amostras de vidro fosfato medidas neste trabalho foram cedidas pelo Prof. Dr. Victor C. S. Reynoso, do grupo de vidros (UNESP - Ilha Solteira), e apresentam as seguintes composições, concentração de dopante e espessuras:

Tabela 5 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro fosfato preparadas em ar

/idro fosfato (wt%)		Espessura
Preparação: Ref. [28]	Concentração	(mm) (± 0,01)
(61.03 – X) P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + 11.04CdO+ 15.99 Na <sub>2</sub> O + 11.94 A <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + X Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	X = 1.0	1,63
(61.03 –Z) P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + 11.04CdO+ 15.99 Na <sub>2</sub> O + 11.94 A <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + Z Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Z= 0.05	1,02

### 5.3 - Vidros borato

Os vidros borato caracterizam-se por possuírem alta resistência a mudanças de temperatura e à corrosão química. Devido a tais propriedades, os vidros borato são largamente utilizados na fabricação de bulbos de lâmpadas, espelhos de telescópios, utensílios de laboratório[29]. Por suas excelentes propriedades ópticas e térmicas, também tem sido muito estudados para a produção de meio ativo para laser[39].

As amostras de vidro borato preparadas em ar foram feitas na IFGW-UNICAMP pelo Dr. Juraci A. Sampaio e apresentam as seguintes composições, concentração de dopante e espessuras:

Tabela 6 - Composição, concentração e espessura da amostras de vidro borato preparadas em ar

Vidro borato (wt%)	Concentração	Espessura	
Preparação: Ref. [26]	Concentração	(mm) (± 0,01)	
(61– X)B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + 39 SrO + X Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	X = 0	2,00	
	X = 2	2,03	

### 5.4 - Vidros Calcogenetos

Os vidros calcogenetos são vidros não-óxidos que apresentam alto índice de refração e grande expansão térmica. Os vidros calcogenetos têm sido estudados por

suas propriedades termo-ópticas, tais como baixa energia de fônons, alta solubilidade de terras-raras e alta não-linearidade, o que os torna atrativos para a fabricação de fibras-ópticas, guias de onda, amplificadores de sinais e chaves ópticas[34].

Os vidros calcogenetos medidos neste trabalho foram preparados no Centro de Pesquisas Optoeletrônicas da Universidade de Southampton, Southampton, UK, e suas composições e espessura encontram-se na tabela 7.

Tabela 7 – Composição, concentração e espessura da amostras de vidros Calcogenetos

Vidros Calcogenetos (wt%)	Espessura
Preparação: Ref. [11]	(mm) (± 0,01)
<b>GLS</b> : 51 Ga <sub>2</sub> S <sub>3</sub> + 43.5 La <sub>2</sub> S <sub>3</sub> + 5.5 La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,06
<b>GLSO</b> : 62.5 Ga <sub>2</sub> S <sub>3</sub> + 37.5 La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,07

### 5.5 - Cristais LISAF e LISGAF

O LISrAIF<sub>6</sub> (LISAF) e o LISIGaF<sub>6</sub> (LISGAF) são cristais uniaxiais, da família dos Colquerites, LiAMF<sub>6</sub> (A = Ca, Sr and M = AI, Ga) utilizados na fabricação de lasers de estado sólido. Estes cristais, quando dopados com Cr<sup>3+</sup>, têm sido considerados eficientes materiais para meio ativo de lasers sintonizáveis, por apresentarem alta seção de choque, grandes larguras de banda de emissão e tempos de fluorescência relativamente longos (~100µs). Isto os torna atrativos para a geração e amplificação de pulsos laser de alta intensidade e ultra-curtos, da ordem de femtosegundos, podendo servir de alternativa ao laser de Ti:Safira em algumas aplicações, com custo muito inferior[35][36]. Para esta aplicação, as propriedades termo-ópticas são de fundamental importância para a performance do laser.

As amostras de LISAF e LISGAF utilizadas neste trabalho foram fornecidas pelo Prof. Dr. Tomaz Catunda, do Instituto de Física de São Carlos (IFSC-USP) e têm sua composição, dopagem e espessura apresentadas na tabela 8. Os cristais foram crescidos utilizando o método Czochralski, conforme Ref. [31].

Amestras	Concentração	Espessura	
Amostras	(%)	(mm) (± 0,01)	
Cristal LISAF (LiSrAIF <sub>6</sub> ) – Amostra dopada com Cr	Cr = 1.5	0.91	
Amostra cortada com eixo óptico 'c' perpendicular à superfície	01 = 1.5	0,91	
Cristal LISAF (LiSrAIF <sub>6</sub> ) – Amostra dopada com Cr	Cr = 1.5	2.14	
Amostra cortada com eixo óptico 'c' paralelo à superfície	01 – 1.5	2,14	
Cristal LISGAF (LiSrGaF <sub>6</sub> ) – Amostra não-dopada		3.07	
Amostra cortada com eixo óptico 'c' paralelo à superfície		3,07	
Cristal LISGAF (LiSrGaF <sub>6</sub> ) – Amostra dopada com Cr	Cr = 2.5	1 52	
Amostra cortada com eixo óptico 'c' perpendicular à superfície	01 - 2.0	1,02	

Tabela 8 – Compos	sicão das amostras.	concentração de do	pante e espessura.

### 5.6 – Corte e Polimento das Amostras

Uma das etapas mais delicadas deste trabalho está no polimento das amostras, que devem ter suas faces polidas paralelamente. Tal condição é necessária para obter a interferência entre os feixes, visto que nossa montagem experimental utiliza o princípio descrito no capítulo 3, seção 3.

As amostras de aluminato de cálcio, preparadas no GEFF, foram cortadas utilizando uma serra de baixa rotação, modelo ISOMET, marca Buehler, cujo disco de corte adiamantado possui espessura de 0.5mm. As demais amostras foram fornecidas cortadas. O polimento das amostras foi realizado utilizando uma politriz (Panambra, DPU-10), com rotação em torno de 400 rpm. Para o polimento, foram utilizadas lixas de várias granulometrias. A seqüência das lixas utilizadas foi a seguinte: 500 mesh, 1000 mesh, 1200 mesh, 1500 mesh e 2000 mesh. Entre uma granulometria e outra a amostra foi girada em 90º a fim de eliminar os riscos da lixa precedente. O polimento final foi realizado utilizando um disco de pano com pasta de diamante, com grãos de 3µm e 1µm, respectivamente. O paralelismo das amostras foi controlado manualmente durante todo o processo de polimento, sendo a espessura da amostra medida em 5 pontos diferentes utilizando um micrômetro digital Mitutoyo. A condição final de paralelismo da amostra foi verificada utilizando um laser, onde franjas de interferência devem ser verificadas. Cada amostra levou em média 3 horas entre o corte e as várias etapas de polimento até estar pronta para o processo de medida.

### Capitulo 6 – Resultados e Discussão

Neste capítulo apresentamos e discutimos os resultados das medidas de dS/dT para amostras de vidros e cristais utilizados neste trabalho. Inicialmente apresentamos e discutimos alguns aspectos referentes as medidas de dS/dT e resultados em temperatura ambiente, comparando com valores calculados a partir de dados obtidos na literatura. Então apresentamos e discutimos resultados de dS/dT encontrados em função da temperatura.

Todas medidas apresentadas nesta seção foram realizadas utilizando a montagem experimental 1. Na figura 17 apresentamos dois interferogramas de amostras diferentes, aluminato de cálcio e borato, com espessuras semelhantes (~2mm).



Figura 17 – Interferograma para amostras de aluminato de cálcio e borato, de espessura semelhante

Na figura 17 podemos verificar que o interferograma para a amostra de vidro aluminato de cálcio apresenta ~2 vezes mais franjas (máximos e mínimos) que o interferograma para a amostra de vidro borato, de espessura semelhante (~2mm), no mesmo intervalo de temperatura. Na figura 18, apresentamos um gráfico do número de máximos *m* pela temperatura, para as diferentes amostras.



Figura 18 – Dependência térmica do número m para as amostras de vidro aluminato de cálcio e vidro borato.

Conhecendo a posição dos máximos *m* em função da temperatura, podemos obter o dm/dT para cada amostra. Conforme discutimos anteriormente, o dm/dT é proporcional ao dS/dT, conforme equação (4.4). Na figura 19 exibimos um gráfico com o dS/dT em função da temperatura para as amostras de vidro borato e aluminato de cálcio, no qual podemos verificar as diferenças nos valores de dS/dT para amostras de espessuras semelhantes.



Figura 19 – Valores de dS/dT em função da Temperatura para os vidros aluminato de cálcio e borato.

Na figura 19 podemos verificar que a resolução em temperatura depende do número de franjas (máximos e mínimos) obtidas no interferograma, sendo diferente para cada amostra, o que nos impede de medir valores próximos à temperatura ambiente (27°C) para algumas amostras, como o borato, mostrado na figura. Desta forma, como o comportamento do dS/dT nesta região apresenta um aumento linear com a temperatura, determinamos os valores de dS/dT em temperatura ambiente utilizando regressão linear. Este procedimento de medida foi utilizado em todas as amostras neste trabalho, sendo que a partir deste ponto apresentaremos somente os valores de dS/dT das amostras, onde discutiremos inicialmente os valores em temperatura ambiente.

### 6.1 – Valores de dS/dT em temperatura ambiente

Nesta seção apresentamos os valores de dS/dT em temperatura ambiente para os diferentes vidros e cristais medidos neste trabalho. Na tabela 09, os valores de dS/dT apresentados na coluna "Valor dS/dT Calculado" foram calculados utilizando a equação (4.4) e os valores de  $\alpha$ , n e dn/dt encontrados na literatura, são de vidros com composições semelhantes aos que medimos neste trabalho. O coeficiente térmico da polarizabilidade eletrônica foi calculado utilizando a equação (2.58).

Amostras	Dopante (%)	α (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	n	dn/dT (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	Valor dS/dT Calculado (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	Valor dS/dT Medido (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	$\boldsymbol{j} = \frac{1}{\boldsymbol{g}} \frac{d\boldsymbol{g}}{dT}$ $(.10^{-6} \text{ K}^{-1})$	
AISC* (vácuo)	X = 0					19.4 (±0.7)		
	X = 0.5					19.3 (±0.7)		
	X = 1.0	7,16	1,67	7,5	19.47	19.6 (±0.7)	30.2	
	X = 2.0	[24]	[24]	[24]	13,47	19.9 (±0.7)	50,2	
	X = 4.0					19.7 (±0.7)		
	X = 5.0					19.2 (±0.7)		
AISC* (ar)	X= 0	7,16	1,67	7 5[24]	19.47	19.7 (±0.7)	30.2	
	X = 2.0	[24]	[24]	7,0[21]	10,11	19.1 (±0.7)	00,2	
fosfato Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	X = 1.0	11,0	1,56	(-4,2)	12.96	12.2 (±0.6)	26.8	
fosfato Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Z= 0.05	[39]	[39]	[39]	12,00	12.2 (±0.6)	20,0	
borato Base	X=0	6,5	1,66	-0,8	9 99	10.0 (±0.5)	18.5	
borato Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	X=2	[39]	[39]	[39]	0,00	11,2 (±0.5)	10,0	
GLS		25	2,35	14		73 (±1)	80	
GLSO		[37]	[37]	6		65 (±1)		

Tabela 9 –	Amostras de vidro utilizadas,	dS/dT	calculado e	e dS/dT	medido.	Valores
	para temperatura ambiente.					

• AISC: Alumino-Silicato de Cálcio, ou simplesmente aluminato de cálcio

Valor calculado a partir do dS/dT medido.

Tabela 10 –	Amostras de cristais utilizadas, dS/dT calculado e	e dS/dT	medido.
	Valores para temperatura ambiente		

Amostras	Dopante (%)	α (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	n	dn/dT (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	Valor dS/dT Calculado (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	Valor dS/dT Medido (.10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )
Cr:LISAF (E  c)		Eixo a: de 18,8	Eixo c: 1,409[40]	Eixo c: -4,0[44]	26.58*	25,5 (±0,7)
Cr:LISAF (E  a)	X = 1.5	a 25 [44][45]	Eixo a: 1,407[40]	Eixo a: -2,5[44]	28,8*	27,8 (±0,7)
Cr:LISAF (S  c)	, -	Eixo c: -10 [44]	Eixo a: 1,407[40]	Eixo a: -2,5[44]	-16,57	-14,4 (± 0.6)
LISGAF (E  c)	não-	Eixo a: 13[40]	Eixo c: 1,409[40]	_	_	26,00 (±0,7)
LISGAF (E  a)	dopada		Eixo a: 1,407[40]	_	_	27,55 (±0,7)
Cr:LISGAF (S  c)	X= 2,5	Eixo c: De 0 a 6 [44][40]	Eixo a: 1,407[40]	-	-	-8,9 (±0.5)

\*dS/dT calculado utilizando valor médio de  $\alpha$ =22 (.10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>), obtido da ref. [46]

#### 6.1.1 - Valores de dS/dT para os vidros aluminato de cálcio

Realizamos medidas de dS/dT em vidros aluminato de cálcio preparados em ar e vácuo, e com diversas concentrações de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Analisando os valores de dS/dT da tabela 9 para os vidros aluminato de cálcio preparados em vácuo, em ar e em diferentes concentrações de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, podemos verificar que estes não apresentaram diferenças significativas, no comprimento de onda em que foram medidos ( $\lambda$ =632,8 nm).



Figura 20 – Valores de dS/dT em temperatura ambiente para amostras de vidro aluminato de cálcio, em função da concentração de dopante.

Este resultado é esperado para este comprimento de onda, pois o vidro aluminato de cálcio dopado com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> não apresenta picos de absorção nesta região do espectro[25]. As amostras preparadas em ar, que diferem das amostras preparadas em vácuo por apresentarem água (OH) em sua estrutura, também não apresentam diferença nos valores de dS/dT, já que água possui grande absorção óptica na região do infravermelho[41]. O alto valor de dS/dT obtido, se comparado com os vidros fosfato e borato, é devido ao fato dos vidros aluminato de cálcio apresentarem o dn/dT positivo, o que indica que coeficiente térmico da polarizabilidade  $\varphi$  é maior que o coeficiente de expansão térmica  $\beta$ , conforme calculado através da equação (2.58).

Embora os valores de  $\alpha$ , n e dn/dt da referência sejam para um vidro aluminato de cálcio com composição similar, o valor calculado está em ótima concordância com o valor medido.

#### 6.1.2 - Valores de dS/dT para os vidros fosfato

Foram realizadas medidas em duas amostras de vidro fosfato, preparadas em ar, com diferentes dopantes; o Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> e o Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Analisando os valores apresentados na tabela 9, podemos verificar que os valores do dS/dT medidos não apresentaram diferença entre si. Em comparação com os dados obtidos na literatura para uma amostra com composição similar, vemos que o dS/dT calculado está em ótima concordância com o valor medido.

Em comparação com o vidro aluminato de cálcio o valor do dS/dT para os vidros fosfato é baixo, embora o coeficiente de expansão térmica do vidro fosfato seja ~50 % maior que o do vidro aluminato de cálcio. A diferença nos valores de dS/dT entre os vidros é atribuída ao dn/dT negativo do vidro fosfato, que reduz o valor de dS/dT. Como discutido anteriormente, o dn/dT negativo indica que o coeficiente de expansão térmica  $\beta$  deste vidro é dominante sobre o coeficiente de polarizabilidade eletrônica  $\varphi$ .

#### 6.1.3 - Valores de dS/dT para os vidros borato

Realizamos medidas em duas amostras de vidro borato, uma não-dopada e uma dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Em ambas amostras, o vidro borato apresentou os menores valores de dS/dT medidos neste trabalho. O vidro borato é bem conhecido e utilizado por seu baixo coeficiente de expansão térmico, em torno de  $6x10^{-6}$  K<sup>-1</sup>. Além disso, o dn/dT do vidro borato é negativo e próximo de zero, fato que tende a diminuir ainda mais o valor do dS/dT. Este valor do dn/dT indica que o coeficiente de expansão térmica  $\alpha$  e o coeficiente térmico da polarizabilidade  $\varphi$ , em temperatura ambiente, apresentam valores muito próximos. Vidros que apresentam esta característica podem apresentar uma inversão no sinal do dn/dT, quando submetidos a variação da temperatura. Na figura 21 temos o exemplo de um vidro borosilicato em que podemos verificar a competição entre o coeficiente de expansão térmica e o coeficiente de polarizabilidade eletrônica. Nas temperaturas de  $-50^{\circ}$ C, 540°C e 800°C ocorre uma inversão no sinal do dn/dT.



Figura 21 – Dependência térmica do coeficiente de expansão volumétrico β e do coeficiente de polarizabilidade φ para um vidro borosilicato.[17]

Em temperatura ambiente, a amostra dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> apresentou um valor ~10% maior que a amostra não dopada. Entretanto esta diferença, de ~1x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup>, está no limite de resolução de nosso experimento (0,5 x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> para cada medida). Os valores de dS/dT calculados para uma amostra com composição semelhante também apresentaram ótima concordância com os valores medidos neste trabalho.

#### 6.1.4 - Valores de dS/dT para os vidros calcogenetos

Os vidros calcogenetos são vidros que pertencem a classe de vidros não óxidos, diferente dos vidros aluminato de cálcio, fosfato e borato. São conhecidos por apresentarem alto índice de refração, alto coeficiente de expansão térmica e altos valores de dn/dT. Em comparação com os vidros óxidos, que apresentaram valores entre 10x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> e 20x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, os vidros calcogenetos apresentaram valores de dS/dT ~5 vezes maiores. Entre os vidros calcogenetos estudados, o vidro GLS apresentou um valor no dS/dT 10 % maior que o vidro GLSO, que apresenta maior

quantidade de oxigênio em sua composição, por substituição do La<sub>2</sub>S<sub>3</sub> por La<sub>2</sub>O<sub>3.</sub> Vários trabalhos na literatura tem mostrado o efeito das pontes de oxigênio na composição dos vidros, sua influência na polarizabilidade eletrônica[42] e no coeficiente de expansão térmica[43], o que está de acordo com o resultado encontrado neste trabalho. Não foram encontrados na literatura valores de dn/dT para amostras semelhantes às amostras medidas de forma que não pudemos comparar os valores medido e calculado. Utilizando os valores de dS/dT medidos e os valores de n e  $\alpha$  encontrados na literatura, nós calculamos o valor do dn/dT utilizando a equação (4.4). Para o vidro GLS, o valor de dn/dT calculado foi de 14x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, enquanto para o vidro GLSO foi de 6x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, ou seja; um valor médio do dn/dT de 10x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para esta classe de vidros. Utilizando este valor médio de dn/dT e a equação (2.58), obtivemos o valor de 80x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para o coeficiente de polarizabilidade eletrônica  $\varphi$  dos vidros Calcogenetos, ou seja, um valor ~2,7 vezes maior que o calculado para os vidros aluminato de cálcio. Neste trabalho, somente os vidros aluminato de cálcio e os vidros Calcogenetos apresentaram valores de dn/dt positivos em temperatura ambiente, significando que para estes materiais a polarizabilidade eletrônica é o fator dominante nas propriedades termo-ópticas.

#### 6.1.5 - Valores de dS/dT para os cristais LISAF e LISGAF

O LISAF e o LISGAF são cristais uniaxiais utilizados comercialmente na produção de lasers de estado sólido. Na tabela 10 estão os valores de dS/dT para as amostras de LISAF e LISGAF medidas nos diferentes eixos cristalinos, em temperatura ambiente.

Embora estes cristais já sejam utilizados comercialmente na produção de lasers, os dados de  $\alpha$  para o eixo *a* do cristal LISAF encontrados na literatura variam significativamente, onde encontramos valores entre 18,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> [44] e 25x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>[45], sendo que para o cálculo do dS/dT utilizamos o valor de 22,2 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, obtido da referência [46], que é aproximadamente o valor médio dos dados encontrados na literatura. Os valores de dS/dT calculados para as amostras de LISAF apresentam boa concordância com os valores medidos.

Para a amostra de LISGAF, o valor de  $\alpha$  para o eixo *a* apresentado na literatura é de  $13x10^{-6}K^{-1}$ [40], enquanto para a amostra de LISAF o valor médio é de 22,2 x $10^{-6}K^{-1}$  para o mesmo eixo. Não encontramos na literatura valores de dn/dT

para a amostra de LISGAF, de modo que, se utilizarmos os valores de dn/dT da amostra de LISAF para o cálculo do "dS/dT calculado" temos que o  $(dS/dT)_{(E||c)}$  é 14,31x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> e para o  $(dS/dT)_{(E||a)}$  é 15,8 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, os quais não concordam com os valores de dS/dT medidos neste trabalho. Considerando que os valores de  $(dS/dT)_{(E||c)}$  e  $(dS/dT)_{(E||a)}$  medidos para as amostras de LISAF e LISGAF são muito similares (tabela 10) e que todos os resultados obtidos neste trabalho apresentaram ótima concordância com os dados encontrados na literatura, acreditamos que o valor de  $\alpha$  da referência [40] não seja correto, já que o dado apresentado por esta referência é considerado um resultado preliminar.

Os valores de  $\alpha$  para o eixo *c* para a amostra de LISGAF encontrados na literatura variam de zero até  $-6x10^{-6}$  K<sup>-1</sup>. Se usarmos o valor médio de  $\alpha_c$ =-3x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> e o valor do  $(dS/dT)_{(S||C)}$  medido, encontramos  $(dn/dT)_a \approx -4 \times 10^{-6} K^{-1}$ , que é comparável aos valores encontrados na literatura para os demais cristais desta família, o que indica que o valor de (dS/dT) (S||C) medido está de acordo com o esperado.

Por apresentar um valor de (dS/dT)<sub>(S||C)</sub> mais baixo e maior tempo de fluorescência que o cristal LISAF, o LISGAF tem se tornado atrativo em aplicações de laser de alta potência[45].

#### 6.2 - Medidas de dS/dT em função da temperatura em vidros

Nesta seção apresentamos os resultados das medidas de dS/dT em função da temperatura para os vidros aluminato de cálcio, fosfato, e Calcogenetos, em diversas concentrações e preparados sob diferentes condições

#### 6.2.1 – Vidros aluminato de cálcio preparados em vácuo

Na figura 22 apresentamos medidas de dS/dT em função da temperatura para vidros aluminato de cálcio com diversas concentrações de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Figura 22 – Gráfico de dS/dT em função da temperatura para vidros aluminato de cálcio em diferentes concentrações de Nd<sub>2</sub>O<sub>3.</sub>

Através da figura 22 podemos verificar que os valores de dS/dT para todas as amostras medidas aumentam com a temperatura, no intervalo de temperatura medido, variando de ~19,3x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> em temperatura ambiente para ~23,6x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> em 180°C, ou seja, um aumento em torno de 20%. No comprimento de onda medido ( $\lambda$  = 632,8nm) não verificamos diferença significativa entre os valores de dS/dT para a amostra de vidro base e as amostras dopadas com até 5% (em peso) de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> em todo o intervalo de temperatura.

### 6.2.2 – Vidros aluminato de cálcio preparados em ar

Na figura 23 apresentamos os resultados de dS/dT em função da temperatura para uma amostra de vidro aluminato de cálcio base (não-dopada) e uma amostra dopada com 2% (wt) de  $Nd_2O_3$ .


Figura 23 - Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro aluminato de cálcio base (não-dopada) e amostra dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (2 wt%)

Podemos verificar que os valores de dS/dT medidos para as amostras de vidro aluminato de cálcio, preparadas em ar, aumentam com a temperatura na mesma taxa que as amostras preparadas em vácuo, ou seja, em torno de 20%, desde a temperatura ambiente até 180°C. Também não verificamos diferença significativa entre os valores de dS/dT para a amostra de vidro base e a amostras dopadas com 2% (wt) de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, para o comprimento de onda de  $\lambda$  = 632.8nm em todo o intervalo de temperatura.

## 6.2.3 – Vidros fosfato

Na figura 24 apresentamos medidas de dS/dT em função da temperatura para uma amostra de vidro fosfato dopado com  $Cr_2O_3$  (0.05% wt) e outra dopada com  $Nd_2O_3$  (1 wt%).



Figura 24 - Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro fosfato dopado com  $Cr_2O_3$  (0.05% wt) e amostra dopada com  $Nd_2O_3$  (1% wt).

As amostras de vidro fosfato, dopadas com  $Nd_2O_3$  e com  $Cr_2O_3$  não apresentaram diferenças significativas em seus valores de dS/dT, em todo o intervalo de temperatura. Ambas as amostras sofreram um aumento em torno de 25%, variando de ~12,2x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup> para ~15,5x10<sup>-6</sup>K<sup>-1</sup>, desde a temperatura ambiente até 180°C.

### 6.2.4 – Vidros borato

Na figura 25 apresentamos medidas de dS/dT em função da temperatura para uma amostra de vidro borato base (não-dopada) e uma amostra dopada com  $Nd_2O_3$  (2% wt).



Figura 25 - Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostra de vidro borato base e amostra dopada com 2% (wt)

A amostra de vidro borato dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> apresentou em temperatura ambiente um valor no dS/dT ~10% maior que o valor para a amostra não-dopada. Entretanto, com o aumento da temperatura os valores de dS/dT das duas amostras apresentam tendência a se igualar em 180°C. A amostra não-dopada apresentou um aumento no valor do dS/dT de  $10x10^{-6}K^{-1}$  para  $12,5x10^{-6}K^{-1}$ , em torno de 25%, deste a temperatura ambiente até  $180^{\circ}$ C, enquanto a amostra dopada apresentou um aumento de  $11,2x10^{-6}K^{-1}$  para  $12,5x10^{-6}K^{-1}$ , em torno de 10%, no mesmo intervalo de temperatura.

### 6.2.5 – Vidros Calcogenetos

Na figura 26 apresentamos medidas de dS/dT em função da temperatura para duas amostras de vidro Calcogeneto com diferentes composições, exibindo a diferença entre os valores de dS/dT encontrados.



Figura 26 - Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostras de vidro Calcogenetos, com diferentes composições.

A amostra de vidro GLS apresentou em todo o intervalo de temperatura um valor no dS/dT ~10% maior que o vidro GLSO. Como discutimos anteriormente, a presença de oxigênio na amostra de GLSO é responsável pela diferença no valor do dS/dT entre as amostras. A amostra de vidro GLS apresentou um aumento no valor do dS/dT de  $73x10^{-6}$  K<sup>-1</sup> para  $86x10^{-6}$  K<sup>-1</sup>, desde temperatura ambiente até  $180^{\circ}$ C, enquanto o valor do dS/dT para a amostra de GLSO aumentou de  $65 \times 10^{-6}$  K<sup>-1</sup> para  $76 \times 10^{-6}$  K<sup>-1</sup>, no mesmo intervalo de temperatura.

Embora as amostras de vidro calcogenetos tenham apresentado os maiores valores de dS/dT medidos neste trabalho, a variação no dS/dT em função da temperatura foi similar a dos vidros óxidos, em torno de 20%, de temperatura ambiente até 180°C.

## 6.2.6 – Comparação dos valores de dS/dT para os diferentes tipos de vidros

Na figura 27 apresentamos os valores de dS/dT em função da temperatura para os diversos tipos de vidros medidos.



Figura 27 - Gráfico de dS/dT em função da temperatura para amostras de diferentes tipos de vidro

Podemos verificar que todos os tipos de vidros utilizados neste trabalho apresentaram um comportamento semelhante para os valores de dS/dT em função da temperatura, apresentando um aumento praticamente linear, em torno de 20%, no intervalo de temperatura medido. Como vimos anteriormente, o dS/dT é função do coeficiente de expansão térmica e do coeficiente térmico do índice de refração, dn/dT. Vimos também que o coeficiente de expansão térmica  $\alpha$  e o coeficiente térmico do índice de refração dn/dT variam com a temperatura, o que justifica o aumento do dS/dT verificado nestas amostras. No entanto, para entender como e quanto estas grandezas variam em função da temperatura, realizamos uma medida de dS/dT utilizando a montagem experimental 2, de forma a separar o coeficiente de expansão térmica  $\alpha$  e o coeficiente térmico do índice de refração dn/dt, e que será explicado a partir deste ponto.

# 6.3 - Medida indireta do coeficiente de expansão térmica e polarizabilidade

No capitulo 4 apresentamos duas montagens de interferômetro, das quais obtemos dois valores de dS/dT diferentes. Até este momento, todas as medidas apresentadas neste trabalho foram realizadas utilizando a montagem 1. Nesta seção descrevemos como separar o coeficiente de expansão térmica e o dn/dT de uma amostra utilizando os valores de dS/dT através das diferentes montagens.

Na figura 28 apresentamos os valores de dS/dT em função da temperatura para uma mesma amostra de vidro aluminato de cálcio, dopada com  $Nd_2O_3$  (1% wt), utilizando a montagem 1 e a montagem 2.



Figura 28 – Diferentes valores de dS/dT em função da temperatura para as montagens 1 e 2.

Conhecendo os dois valores de dS/dT é possível calcular o valor do coeficiente de expansão térmica para a amostra, através das equações (4.4) e (4.6). Subtraindo a equação (4.6) de (4.4) temos que

$$an_{ar} = \left(\frac{dS}{dT}\right)_{1} - \left(\frac{dS}{dT}\right)_{2} - \frac{dn_{ar}}{dT}$$
(6.1)

Considerando que o índice de refração do ar é  $\approx 1$  e que o  $dn_{ar}/dT$  é pequeno ( $\approx -0.5.10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [47]) podemos escrever a equação (6.1) como

$$\mathbf{a} = \left(\frac{dS}{dT}\right)_1 - \left(\frac{dS}{dT}\right)_2 \tag{6.2}$$

com uma boa aproximação.

Na figura 29 apresentamos um gráfico do coeficiente de expansão térmica  $\alpha$  em função da temperatura para a amostra de vidro aluminato de cálcio, obtido da subtração das curvas de dS/dT do gráfico da figura 28.



Figura 29 – Coeficiente de expansão térmica em função da temperatura para amostra de vidro aluminato de cálcio dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1 %wt)

O valor encontrado em temperatura ambiente para o coeficiente de expansão térmica desta amostra é de  $\alpha$ =6,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, enquanto o valor encontrado na literatura, para uma amostra com composição muito semelhante, é  $\alpha$ =7,1x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>[24]. Em função da temperatura, o coeficiente de expansão térmica apresentou-se praticamente constante, variando de 6,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 7,2 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>,

em todo o intervalo de temperatura. Tendo o valor do coeficiente de expansão térmica em função da temperatura, podemos calcular o valor do coeficiente térmico do índice de refração, o dn/dt, através da equação (4.4). Na figura 30 apresentamos os valores de dn/dt em função da temperatura.



Figura 30 – Coeficiente térmico do índice de refração dn/dT em função da temperatura: comparação entre o valor calculado e valor obtido na literatura[24]

O valor do dn/dt encontrado em temperatura ambiente para a amostra é de 7,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, enquanto na literatura encontramos valores que variam de 7.5 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> a 8 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>[24][30]. Em função da temperatura, podemos verificar que o valor do dn/dT sofreu um aumento em torno de 30%, variando de 7,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 10,5 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>.

Comparando o comportamento do dn/dt e do coeficiente de expansão térmica em função da temperatura, podemos verificar que o dn/dT sofreu uma variação maior com a temperatura. Considerando que o dn/dT aumenta com a temperatura e que este é proporcional à ( $\varphi$  - 3 $\alpha$ ), conforme equação (2.58), podemos concluir que o coeficiente térmico da polarizabilidade eletrônica  $\varphi$  também aumenta com a temperatura e é dominante em todo intervalo medido, conforme apresentado na figura 31.



Figura 31 – Coeficiente térmico da polarizabilidade eletrônica e coeficiente de expansão térmica  $\beta$  em função da temperatura. Amostra de Vidro aluminato de cálcio

Embora a montagem 2 ainda esteja em sua fase de testes, com vários problemas a serem resolvidos, os dados obtidos para o coeficiente de expansão térmica  $\alpha$  e o coeficiente térmico do índice de refração dn/dT apresentaram boa concordância com os valores encontrados na literatura.

## 6.4 - Medidas de dS/dT em função da temperatura em cristais

Nesta seção descrevemos a técnica de medida de dS/dT em cristais uniaxiais e apresentamos os resultados em função da temperatura para os diferentes eixos ópticos. Para as medidas de dS/dT em função da temperatura em cristais utilizamos a montagem 1, adicionando um polarizador entre o laser e a primeira lente, conforme figura 08.

#### 6.4.1 - Amostra de LISAF dopada com Cr (1,5 %wt) – eixo c paralela ao plano

Na figura 32 apresentamos o interferograma de uma amostra de LISAF, dopada com Cr, cuja medida foi realizada sem o polarizador. O LISAF é um cristal uniaxial e o interferograma apresentado é de uma amostra cortada com o eixo c paralelo à superfície do cristal. A medida foi realizada com o laser incidindo perpendicular ao plano formado pelos eixos ópticos a e c.



Figura 32 – Interferograma de uma amostra de cristal LISAF obtido utilizando luz não-polarizada.

Na figura 32 podemos verificar que a medida realizada sem o polarizador apresenta uma modulação nas franjas de interferência. Como discutido no capitulo 3, seção 5, podemos estimar o dS/dT dos diferentes eixos ópticos conhecendo o intervalo de temperatura entre o período de um franja de interferência e entre a modulação das franjas. Assim, temos que

$$\frac{\left(\frac{dS}{dT}\right)_{eixo1} - \left(\frac{dS}{dT}\right)_{eixo2}}{2} = \frac{l}{2L}\frac{1}{\Delta T_m}$$
(6.3)

e que

$$\frac{\left(\frac{dS}{dT}\right)_{eixo1} + \left(\frac{dS}{dT}\right)_{eixo2}}{2} = \frac{1}{2L}\frac{1}{\Delta T_f}$$
(6.4)

onde os valores de  $\Delta T_m \approx 114^{\circ}C$  e  $\Delta T_f \approx 5,2^{\circ}C$  são os intervalos de temperatura entre uma modulação e uma franja, respectivamente, obtidos diretamente do interferograma da figura 32; L= 2,14mm é a espessura da amostra e  $\lambda$  = 632,8 nm é o comprimento de onda do laser. Resolvendo as equações, temos que o valor médio do dS/dT para o eixo<sub>1</sub> é 29,7x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> e para o eixo<sub>2</sub> é 27,1 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>. Considerando que o coeficiente de expansão térmica é o mesmo ( $\alpha_a$ ) e que os valores do índice de refração são praticamente iguais para os dois eixos, conforme tabela 9, a diferença entre os valores de dS/dT, de 2,6x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, é praticamente a diferença entre o dn/dT dos dois eixos. É importante ressaltar que os valores de dS/dT obtidos diretamente do interferograma para os diferentes eixos são os valores médios do dS/dT em todo o intervalo de temperatura medido. Embora este método não permita identificar a posição dos eixos na amostra, podemos estimar diretamente o dS/dT destes à partir de um único interferograma. Para verificar a precisão destes resultados e determinar a posição dos eixos ópticos na amostra, realizamos medidas utilizando a montagem 1 com polarizador.

Na figura 33 apresentamos uma medida realizada na mesma amostra, utilizando a montagem 1 com o polarizador.



Figura 33 – Interferograma de uma amostra de cristal LISAF, utilizando luz polarizada.

Podemos verificar que a incidência de luz devidamente polarizada sobre o cristal pode anular o efeito da modulação nas franjas de interferência, por eliminação de um dos pares de feixes, conforme discutido no capítulo 3.5.

Assim, realizamos medidas de dS/dT em função da temperatura variando o angulo de polarização do Laser, no intuito de determinar o dS/dT nos diferentes eixos ópticos do cristal. Durante todas as medidas a amostra foi mantida fixa numa determinada posição. Os dados para esta amostra são apresentados na figura 34.



Figura 34 – Interferograma para o cristal LISAF com laser polarizado em diferentes ângulos. a) Sem polarizador, b) Polarizador  $\theta$ = 20°, c) Polarizador  $\theta$ = 60°, d) Polarizador  $\theta$ = 105°

No gráfico da figura 34 o interferograma obtido sem polarização e o interferograma obtido com angulo de polarização 60º apresentam comportamento semelhante, apresentado uma modulação em suas franjas, enquanto os interferogramas obtidos como polarização em 20º e em 105º não apresentaram tal efeito. Na figura 35 apresentamos valores de dS/dT médios, obtido entre 45ºC e 100°C, para os diferentes ângulos de polarização em que realizamos as medidas.



Figura 35 – Valor médio do dS/dT para o cristal LISAF em função da polarização do laser.

Na figura 35 podemos distinguir os valores máximos e mínimos de dS/dT encontrados variando a polarização do laser, que correspondem aos diferentes eixos ópticos do cristal. O dS/dT em função da temperatura para os diferentes eixos do cristal é apresentado na figura 36.



Figura 36 – Valores de dS/dT em função da temperatura para os diferentes eixos do cristal LISAF

Nos dois eixos podemos verificar que os valores de dS/dT aumentam com a temperatura, de 25,5x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 27,7x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> no  $(dS/dT)_{(E||c)}$ , e de 27,8 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 30,6x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> no  $(dS/dT)_{(E||a)}$ , ou seja, um aumento de ~10% no intervalo de temperatura ambiente até 180°C. Comparando estes valores de dS/dT com os valores médios calculados a partir do interferograma da figura 32 (27,1 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para o eixo<sub>2</sub> e 29,7x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para o eixo<sub>1</sub>), podemos verificar que os valores médios encontram-se em excelente concordância com os valores medidos utilizando a montagem com laser polarizado.

# 6.4.2 - Amostra de LISAF dopada com Cr (1,5 %wt) – eixo c perpendicular ao plano

Na figura 37 apresentamos o interferograma de uma amostra de LISAF, cortada com o eixo óptico c perpendicular à superfície formada pelos eixos a e b do cristal, e que foi medida com o laser incidindo perpendicularmente a tal superfície. Lembrando que os índices de refração e o coeficiente de expansão dos eixos a e b são iguais, o cristal medido nesta configuração se comporta como um sólido isotrópico. Desta forma, o interferograma desta amostra não apresenta modulação em suas franjas de interferência.



Figura 37 – Interferograma para amostra de cristal LISAF. Amostra dopada com Cr, eixo c perpendicular à superfície

Através do interferograma obtido para esta amostra nós calculamos o dS/dT em função da temperatura, o qual é apresentado na figura 38.



Figura 38 –Valor de dS/dT em função da temperatura para o cristal LISAF – Amostra dopada com Cr, eixo c perpendicular à superfície

Como podemos verificar o dS/dT para cristal LISAF, cortado com o eixo c perpendicular ao plano, apresenta valores negativos. Isto ocorre devido ao fato deste cristal possuir o coeficiente de expansão térmica do eixo c e o dn/dt dos eixos a e b negativos. O sinal negativo do valor do dS/dT foi confirmado através da técnica de Lente Térmica[48]. O valor do dS/dT para esta amostra não apresentou variação

significativa no valor do dS/dT em função da temperatura, permanecendo dentro do valor médio de -14,0 ( $\pm$  0,5)x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, em todo o intervalo medido.

#### 6.4.3 - Amostra de LISGAF não dopada – eixo c paralelo ao plano

Na figura 39 apresentamos o interferograma de uma amostra de LISGAF, não dopada, cuja medida foi realizada sem o polarizador. O LISGAF é um cristal uniaxial e o interferograma apresentado é de uma amostra cortada com o eixo c paralelo a superfície do cristal. A medida foi realizada com o laser incidindo perpendicular ao plano formado pelos eixos ópticos a e c.





Na figura 39 podemos verificar que a medida realizada sem o polarizador apresenta uma modulação nas franjas de interferência, como na amostra de LISAF cortada no mesmo eixo. Conhecendo os valores de  $\Delta T_m \approx 161^{\circ}C$  e  $\Delta T_f \approx 3,6^{\circ}C$ , obtidos diretamente do interferograma da figura 39; a espessura da amostra (L= 3,07mm) e o comprimento de onda do laser ( $\lambda = 632,8$  nm) podemos estimar o valor do dS/dT, através das equações (6.3) e (6.4). Assim, o valor médio do dS/dT encontrado para o eixo<sub>1</sub> é de 29,3x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> e para o eixo<sub>2</sub> é 28,1 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, para o intervalo de temperatura medido. Considerando que o coeficiente de expansão térmica é o mesmo ( $\alpha_a$ ) e que os valores do índice de refração são praticamente iguais para os dois eixos, conforme tabela 9, a diferença entre os valores de dS/dT, de 1,2x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>, é praticamente a diferença entre o dn/dT dos dois eixos. Para verificar a precisão destes resultados e determinar a posição dos eixos ópticos na amostra, realizamos medidas utilizamos a montagem 1 com laser polarizado.

Seguindo o mesmo procedimento realizado na medida de dS/dT da amostra de LISAF dopada com Cr, apresentamos nas figuras 40 e 41 os valores de dS/dT para os eixos a e c da amostra de LISGAF não-dopada.



Figura 40 – Valor médio do dS/dT para o cristal LISGAF não-dopado em função da polarização do laser

Cada ponto no gráfico da figura 40 é o valor médio do dS/dT entre as temperaturas de 45 e 100°C, medido no correspondente angulo de polarização do laser. Durante todas as medidas a amostra foi mantida fixa numa determinada posição.



Figura 41 – Valores de dS/dT em função da temperatura para os diferentes eixos do cristal LISGAF não-dopado

Nos dois eixos podemos verificar que os valores de dS/dT aumentam com a temperatura, de 25,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 29,5x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> no  $(dS/dT)_{(E||c)}$ , e de 27,4 x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para 30,8x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> no  $(dS/dT)_{(E||a)}$ , ou seja, um aumento de ~15% para o  $(dS/dT)_{(E||c)}$  e de ~10% para o  $(dS/dT)_{(E||c)}$ , no intervalo de temperatura ambiente até 180°C.

Conforme discutido na seção 6.1.6, estes resultados não concordam com o valor de  $\alpha$  obtido na literatura. Em comparação com os valores de médios de dS/dT obtidos diretamente do interferograma (29,3x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para o eixo<sub>1</sub> e 28,1x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup> para o eixo<sub>2</sub>), vemos que apresentam uma ótima concordância com os valores do dS/dT medidos em função da temperatura, utilizando a montagem com laser polarizado.

# 6.4.4 - Amostra de LISGAF dopada com Cr (2,5 %wt) – eixo c perpendicular à superfície

Similar a amostra de LISAF apresentada na seção 6.4.2, a amostra de LISGAF cortada com o eixo c perpendicular à superfície também não apresentou modulação em suas franjas de interferência, conforme figura 42.



Figura 42 – Interferograma para a amostra de cristal LISGAF. Amostra dopada com Cr, eixo c perpendicular à superfície

Este comportamento já era esperado, pois, como os índices de refração e o coeficiente de expansão dos eixos *a* e *b* são iguais, o cristal medido nesta configuração se comporta como um sólido isotrópico. Através do interferograma obtido para esta amostra nós calculamos o dS/dT em função da temperatura, o qual é apresentado na figura 43.



Figura 43 – Valor de dS/dT em função da temperatura para o cristal LISGAF. Amostra dopada com Cr, eixo c perpendicular à superfície.

Como podemos verificar o  $(dS/dT)_{(S||c)}$  para o cristal LISGAF, apresenta valores negativos, como a amostra de LISAF cortada no mesmo eixo. Isto ocorre devido ao fato deste cristal possuir o coeficiente de expansão térmica do eixo *c* e o dn/dt dos eixos *a* e *b* negativos. O sinal negativo do valor do dS/dT foi confirmado através da técnica de Lente Térmica[48]. Assim como a amostra de LISAF medida neste mesmo eixo, o valor do dS/dT para esta amostra também não apresentou variação significativa no valor do dS/dT em função da temperatura, permanecendo dentro do valor médio de -9,4(± 0,4)x10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup>em todo o intervalo medido. Este resultado está de acordo com o esperado para este eixo.

# Capitulo 7 - Conclusão

Neste trabalho realizamos a montagem de duas técnicas de interferometria óptica que nos permitiram determinar propriedades termo-ópticas de diferentes vidros e cristais em função da temperatura, com precisão de 5x10<sup>-7</sup> K<sup>-1</sup>.

 Determinamos o dS/dT em função da temperatura para os vidros aluminato de cálcio, em diferentes concentrações de dopante e condições de preparo. Os vidros aluminato de cálcio não apresentaram diferenças significativas entre o dS/dT das amostras preparadas em ar e em vácuo, e entre as amostras base e as dopadas com até 5% de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. O valor do dS/dT em função da temperatura, para todas amostras de aluminato de cálcio, apresentou uma aumento de 20% no intervalo de temperatura ambiente até 180°C.

• Nos vidros fosfato, determinamos o dS/dT em função da temperatura para a amostra dopada com  $Nd_2O_3$  e para a dopada com  $Cr_2O_3$ , os quais não apresentaram diferença significativa. Os valores de dS/dT para as duas amostras apresentaram um aumento com a temperatura em torno de 25%, desde a temperatura ambiente até 180°C.

 Nos vidros borato, verificamos uma diferença no valor do dS/dT entre a amostra base e a amostra dopada com Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, em temperatura ambiente. Entretanto, esta diferença está no limite de nossa precisão. Com o aumento da temperatura os valores de dS/dT das duas amostras apresentam tendência a se igualar em 180°C. A amostra não-dopada apresentou um aumento no valor do dS/dT em torno de 25% desde a temperatura ambiente até 180°C, enquanto a amostra dopada apresentou um aumento de 10%, no mesmo intervalo de temperatura.

 Verificamos a diferença entre os valores de dS/dT das amostras de vidro calcogenetos com diferentes composições. Tal diferença é atribuída à presença do oxigênio na amostra de GLSO. Ambas amostras apresentaram um aumento de ~20% no valor do dS/dT em função da temperatura, no intervalo medido. Os vidros calcogenetos apresentaram valores de dS/dT ~5 vezes maiores que os vidros óxidos medidos neste trabalho. • Entre os vidros óxidos, o aluminato de cálcio apresentou os maiores valores de dS/dT, em torno de  $20x10^{-6}$  K<sup>-1</sup>, enquanto as amostras de vidro fosfato e borato apresentaram valores de dS/dT entre  $10x10^{-6}$  K<sup>-1</sup> e 15  $x10^{-6}$  K<sup>-1</sup>. Esta diferença é atribuída ao dn/dT da amostra de aluminato de cálcio que, diferente das amostras de vidro fosfato e borato, apresenta valor positivo, devido a predominância do coeficiente de polarizabilidade eletrônica  $\phi$  sobre o coeficiente de expansão térmica.

• Em todos os vidros medidos, o valor do dS/dT apresentou um aumento praticamente linear com a temperatura, em torno de 20%, em todo o intervalo medido.

 Utilizando o valor do dS/dT das duas montagens de interferometria óptica, calculamos o valor do coeficiente de expansão térmica e o dn/dT em função da temperatura para uma amostra de vidro aluminato de cálcio, no intervalo de temperatura ambiente até 180°C. Verificamos que, neste intervalo de temperatura, o coeficiente de expansão térmica apresentou uma variação com a temperatura menor que o dn/dT, o que implica que o coeficiente de polarizabilidade eletrônica φ também aumenta com a temperatura e é dominante em todo intervalo medido.

• Medindo os cristais uniaxiais LISAF e LISGAF, verificamos que é possível caracterizar a anisotropia destes cristais a partir de uma única medida, realizada com luz não-polarizada. Através do interferograma destas amostras, calculamos o valor médio do dS/dT para os diferentes eixos ópticos, com ótima concordância com os valores calculados em função da temperatura, utilizando a montagem com luz polarizada. Como discutido, a diferença do dS/dT entre os eixos é praticamente a diferença entre o dn/dT dos eixos. Utilizando a montagem 1, acrescida de um polarizador, determinamos o valor do (dS/dT)<sub>(E||c)</sub> e (dS/dT)<sub>(E||a)</sub> em função da temperatura para os diferentes eixos ópticos das amostras de LISAF e LISGAF, os quais apresentaram um aumento de ~10% em todo o intervalo medido. Verificamos que este método permite determinar a direção dos diferentes eixos de cristais uniaxiais. As amostras de LISAF dopada com Cr e a amostra de LISGAF não-dopada, apresentaram valores de (dS/dT)<sub>(E||C)</sub> e (dS/dT)<sub>(E||a)</sub> muito próximos, em todo intervalo de temperatura. No (dS/dT)<sub>(S||c)</sub>, as amostras de LISAF e LISGAF apresentaram valores de dS/dT negativos, devido ao coeficiente de expansão

térmico do eixo c ser negativo para ambos cristais. As amostras de LISAF e LISGAF apresentaram grande diferença em seus valores de  $(dS/dT)_{(S||c)}$ , mas não apresentaram variação significativa no valor do dS/dT em função da temperatura, no intervalo medido.

Estes resultados indicam que este método, consideravelmente simples e de baixo custo, é uma poderosa ferramenta para medidas de dS/dT em função da temperatura, em vidros e cristais.

# **Referências Bibliográficas**

- [1] MAIMAN, T. H.. Physical Review Letters, 11. Vol. 04. (1960).
- [2] GORDON, J. P. ; LEITE, R. C. C. ; MORE, R. S. ; PORTO, S. P. S. ; WHINNERY, J. R. J. Appl. Phys., 36, pp. 3. (1965)
- [3] BAESSO, M. L., BENTO A.C., ANDRADE A.A., SAMPAIO, J. PECORARO E., NUNES, L. A. O., CATUNDA, T., GAMA, S. Physical Review B 57, pp. 10545. (1998)
- [4] ANDRADE, A. A.; LIMA, S. M.; PILLA, V.; SAMPAIO, J. A.; CATUNDA, T.; BAESSO, M. L., Review of Scientific Instruments, Vol. 74, I. pp. 857-859, (2003)
- [5] BORN, M.; WOLF, E. Principles of Optics. Pergamon Oxford, Cambridge. (1984)
- [6] MICHELSON, A.; MORLEY, E. W.. American Journal of Science, 203. Vol. XXXIV. (1887)
- [7] Catálogo da Zigo Corporation. Disponível em http://www.zigo.com (2004)
- [8] LEE, D. H.; KIM, B. Y. Review of Scientific Instruments, Vol 71 (5) pp. 1981-1986. (2000).
- [9] SPARKS, M. Jornal of Applied Physics, Vol. 42, pp. 12. (1971)
- [10] KLEIN, C. A. Optical Engeneering, Vol 29, 4. pp. 343-350, (1990)
- [11]PETROVICH, M.; MAIRAJ, A. K.; HEWAK, D. W. Proc. Int. Congr. Glass, Vol. 2. Extended Abstracts, pp. 951-952. (2001)
- [12]BAESSO, M. L.; SHEN, J.; SNOOK, R. D.. Journal. Appl. Phys. 75 (8). pp. 3732-3737 (1994)
- [13]CERQUEIRA LEITE, R. C. ; CASTRO, A. R. B. Física do Estado Sólido. Editora Edgard Blücher Ltda. (1978)
- [14]SAUNDERS, G.A.; BRENNAN, M. A.; CANKURTARAN, M.; SENIN, H.B.; SIDEK, H.A.A.; FEDERICO, M. Journal of Non-Crystalline Solids 282, pp. 291-305. (2001)
- [15]CONDON, E. U. ; ODISHAW, H. Handbook of Physics. Ed. Oxford Univ. Press. NY. (1958)
- [16] JACKSON, J. D. Eletrodinâmica Clássica. Ed. Guanabara Dois, Rio de Janeiro. (1983)

- [17]PROD'HOMME, L. Physics and Chemistry of Glasses, Vol. 1, 4. pp. 119-122 (1960)
- [18]TAN, C. Z.; ARNDT, J.. Journal of Physics and Chemistry of Solids, Vol 61, pp. 1315. (2000)
- [19] SEARS, F. W. Optica, Vol. III. Editora Livro Técnico, Rio de Janeiro. (1961)
- [20] JEWELL, J. M.; Journal of Non-Cryst. Solids 146, pp. 145. (1992)
- [21]TAN, C. Z.; ARNDT, J.. Physica B 229, pp. 217. (1997)
- [22]Catálogo Hellma Glasses Disponível em http://www.hellma.com.
- [23] ABBATE, G. ; ATTANASIO, A. ; BERNINI, U. ; RAGOZZINO, E. ; SOMMA, F. J.Phys. D: Appl. Phys., Vol. 9, 1945. (1976)
- [24]WAXLER, R. M, CLEEK, G. W. Journal of Reseach of the National Bureau of Standarts – A. Physics and Chemistry. Vol 77A, Nº 6, 755. (1973)
- [25] PECORARO, E.; SAMPAIO, J. A.; NUNES L. A. O.; GAMA, S.; BAESSO, M. L. Journal of Non-Cryst. Solids 277, 73. (2000)
- [26]SAMPAIO, J. A.. Tese de Doutorado, Universidade Estadual de São Paulo USP- SC -Brasil (2001)
- [27]SAMPAIO, J. A.; CATUNDA, T.; GANDRA, F. C. G.; GAMA, S.; BENTO, A. C.; MIRANDA, L. C. M.; BAESSO, M.L.. Journal of Non-Crystaline Solids , 196. (1999)
- [28]REYNOSO, V. C. S.; YUKIMITU, K.; NAGAMI, T. et al. Phys Chem Solids 64 (1): 27, (2003)
- [29]Corning Museum of Glass http://www.cmog.org/
- [30]SOUSA, D. F. de,; NUNES, L. A. O.; ROHLING, J.H.; BAESSO, M.L. Appl. Phys. B 77, 59 (2003)
- [31]SOROKININA, I, T.; SOROKIN, E.; WINTNER, E.; SZIPÖCS, R.; CASSANHO, A.; JENSEN, H. P.. Laser Physics, 7, pp. 187. (1997)
- [32] REYES, L.C.V. Dissertação de Mestrado Escola de Engenharia de São Carlos. Faculdade de Medicina de Ribeirão Preto. Instituto de Química de São Carlos. Universidade de São Paulo (2000).
- [33]Revista Órbita IPEN on-line.. Ano II. Número 10. Maio/Junho (2002). Disponível em http://www.ipen.br
- [34] PETROVICH, M.; MAIRAJ, A. K.; HEWAK D. W.. Proc. Int. Congr. Glass, Vol. 2. Extended Abstracts, pp. 951-952. (2001)

[35] PRASANKUMAR, R. P.; HIRAKAWA, Y. ; KOWALEVICZ Jr, A. M. ;. KAERTNER, F. X.; FUJIMOTO, J. G. OPTICS EXPRESS, 2. Vol. 11. pp. 1269 (2003)

[36] ISEMANN, A.; FALLNICH, C. Optics Express 259, Vol. 11. No. 3, (2003)

- [37] MARMOLEJO, E. M. ; GRANADO, E. ; ALVES, O. L. ; CESAR C. L. ; BARBOSA , L. C., J. of Non-Cryst. Solids 247, pp. 189-195. (1999)
- [38]LIMA, S. M.; SAMPAIO, J. A.; CATUNDA, T.; CAMARGO, A. S. S.; NUNES L.A.O.; BAESSO M. L.; HEWAK, D.W. Journal of Non-Crystalline Solids 284, pp. 274-281. (2001)
- [39] Catálogo da Shanghai Daheng Optics and Fine Mechanics Co., Ltd. http://www.shdh.net/
- [40]Catálogo da VLOC http://www.vloc.com/ncatalog/vloccat.pdf
- [41]FLORENCE, J. M.; GLAZE, F. W.; BLACK, M. H. Journal of Research of the National Bureau of Standarts. Vol. 55, pp, 4. (1955)
- [42] DUFFY, J.A. Journal of Non-Crystalline Solids 297, pp. 275-284. (2002)
- [43]GREENE, K.; POMEROY, M.J.; HAMPSHINE, S.; HILL, R. Journal of Non-Crystalline Solids 325, pp. 193-205. (2003)
- [44]PERRY, M. D.; PAYNE, S. A.; DITMIRE, T.; BEACH, R.; QUARLES, G.J.; IGNATUK, W.; OLSON, R.; WESTON, J. Laser Focus World, September, pp. 85-92. (1993)

[45]CASSANHO, A.; JENSSEN, H. . Laser Focus World, September, pp. 169-174. (1997)

- [46]RICHARDSON, M.; SOILEAU, M. J.; BEAUD, P.; SALVO, R. de; GARNOV, S.; HAGAN, D.J.; KLIMENTOV, S.; RICHARDSON, K.; SHEIK-BAHAE, M.; SAID, A.A.; VAN STRYLAND, E.; CHAI, B.H.T. SPIE Vol. 1848 Laser-Induced Damage in Optical Materials, pp. 392-402: (1992)
- [47]Catálogo Ohara Optical Glass Properties. Disponível em http://www.oharainc.co.jp
- [48] ANDRADE, A. A. Aplicações das técnicas de lente térmica e z-scan ao estudo de sólidos dopados. Tese de Doutorado, Universidade Estadual de São Paulo – USP- SC -Brasil (2002)

## Trabalhos apresentados e submetidos

#### ARTIGOS COMPLETOS SUBMETIDOS À PUBLICAÇÃO

1 - STEIMACHER, Alysson; MEDINA NETO, Antonio; BENTO, Antonio Carlos; ROHLING, Jurandir H; BAESSO, Mauro Luciano; REYNOSO, Victor C S; PETROVICH, M N; HEWAK, D. W. Interferometric measurement of the temperature coefficient of the optical path length as a function of the temperature in different optical glasses. (Submetido ao Journal of Non-Crystalline Solids, 2003).

Trabalho apresentado no II International Symposium on Non-Crystalline Solids, realizado entre 21 e 25/09/2003, em Campos do Jordão – SP. Submetido à publicação pelo comitê organizador do evento.

2 - LIMA, Sandro M; STEIMACHER, Alysson; MEDINA NETO, Antonio; BAESSO, Mauro Luciano; PETROVICH, M; RUTTC, H. N.; HEWAKC, D. W.; CATUNDA, Tomas. Thermo-optical properties measurements in chalcogenide glasses using thermal relaxation and thermal lens methods. (Submetido ao Journal of Non-Crystalline Solids, 2003.

Trabalho apresentado no II International Symposium on Non-Crystalline Solids, realizado entre 21 e 25/09/2003, em Campos do Jordão – SP. Submetido à publicação pelo comitê organizador do evento.

#### **RESUMOS ACEITOS EM EVENTOS**

 STEIMACHER, Alysson; SAKAI, OTAVIO AKIRA, BENTO, Antonio Carlos; BAESSO, Mauro Luciano MEDINA NETO, Antonio. Determinação do Coeficiente Térmico do Caminho Óptico para Diferentes Vidros Ópticos.

Trabalho aceito para o XXVII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, a ser realizado entre 04 a 08 de maio de 2004 - Poços de Caldas, MG.

2 - SAKAI, OTAVIO AKIRA, STEIMACHER, Alysson; BENTO, Antonio Carlos; BAESSO, Mauro Luciano MEDINA NETO, Antonio. Determinação do dS/dT de Monocristais Uniaxiais em Função Da Temperatura utilizando Interferometria Óptica.

Trabalho aceito para o XXVII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada, a ser realizado entre 04 a 08 de maio de 2004 - Poços de Caldas, MG.

3 - STEIMACHER, A.; MEDINA NETO, A. ; BENTO, A. C. ; BAESSO, M. L. ; LIMA, S. M. ; CATUNDA, T.. The angular dependence of thermal lens effect in LiSrAIF6 and LiSrGaF6 single crystal.

Trabalho aceito para o XIII ICPPP – International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, a ser realizado entre 05 e 08/07/2004, em Rio de Janeiro - RJ.

4 – MURA, J.; STEIMACHER, A.; MEDINA NETO, A.; PEREIRA, J. R. D.; BENTO, A. C.; BAESSO,
M. L.; Kanda, D. H. F.; Sakamoto, W. K.. Time resolved thermal lens and interferometric methods for thermo-optical properties measurements in castor oil as a function of temperature

Trabalho aceito para o XIII ICPPP – International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena, a ser realizado entre 05 e 08/07/2004, em Rio de Janeiro - RJ.