Medida do Índice de Refração Não-Linear do Cristal de $BaLiF_3{:}Ni$ em 1,064 μm por meio da Técnica de Z-Scan para Absorvedores Lentos

R. E. Samad*, N. D. Vieira Jr. e S. L. Baldochi
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - CNEN/SP
Caixa Postal 11049 - Pinheiros - 05422-970 - São Paulo - Brasil
S. C. Zilio
Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo
Caixa Postal 369, 13560-970 - São Carlos - Brasil

Introdução

Quando tratamos com materiais candidatos a meio laser, ou elementos intracavidade, não é suficiente o conhecimento de apenas seus parâmetros lineares[1] (índice de refração, absorção, etc) sendo necessário saber seus parâmetros não-lineares[2], pois o material em questão encontra-se sujeito a altas intensidades de campo eletromagnético quando em operação intracavidade[3].

Ao estudarmos a reação da matéria a altas intensidades de campos eletromagnéticos, podemos adotar um formalismo no qual a incidência do campo polariza o meio, e essa polarização determina a reação do meio. Neste formalismo, para materiais não magnéticos, a polarização é descrita numa expansão em série de Taylor em potências do campo elétrico incidente, sendo o coeficiente de n-ésima potência de campo denominado susceptibilidade[2] de ordem n, $\chi^{(n)}$, e o índice de refração total do meio fica sendo escrito numa série de potências da intensidade do campo incidente, onde a n-ésima potência da intensidade corresponde à susceptibilidade de ordem (2n+1), ou seja, as susceptibilidades de ordem par não afetam, em média, a velocidade de propagação da luz no meio (para meios com simetria de inversão[4] as susceptibilidades de ordens pares são nulas).

A técnica do Z-Scan[5] utiliza esta alteração do índice de refração total para realizar uma medida das susceptibilidades de ordem ímpar do material de interesse. Como a relação entre as diversas susceptibilidades segue $\chi^{(n+1)}/\ \chi^{(n)}\approx 10^{-3}$, neste trabalho trataremos apenas da susceptibilidade não-linear de terceira ordem, $\chi^{(3)}$. A alteração do índice de refração é $\Delta n=\gamma I$, onde γ denomina-se coeficiente não linear. A relação entre os sistemas cgs e MKS é dada por $\chi^{(3)}(\text{cgs})=(3n_0/4\pi)10^3\gamma(\text{cm}^2\text{W}^{-1})$, onde n_0 é o índice de refração linear no comprimento de onda estudado.

A teoria de Z-Scan baseia-se na excursão da amostra não-linear ao longo do eixo de um feixe laser no modo TEM_{00}[6], e na variação de seu índice de refração total, $n=n_0+\gamma I$. Um esquema da montagem originalmente proposta[5] pode ser visualizado na figura 1, onde *D1* e *D2* são detectores e o feixe laser encontra-se no modo TEM_{00}.

Com a amostra sobre o feixe, seu índice de refração total assume um perfil gaussiano, proporcional ao perfil de intensidade do modo, de modo que em termos de caminho óptico a amostra passa a assemelhar-se a uma lente, convergente se γ for positivo, e divergente se γ for negativo. Supondo que $\chi^{(3)}$ seja positivo, se a amostra encontrar-se antes da posição da cintura do feixe, o "efeito de lente convergente" fará

* Bolsista de Mestrado FAPESP

com que a potência luminosa que atravessa a íris diminua, aumentando quando a amostra encontra-se após a posição da cintura[6] (quanto menor a íris, mais pronunciado o efeito). Quanto mais próxima da cintura encontrar-se a amostra, mais pronunciado é o efeito de lente, e a curva de transmissão através da amostra em função de sua posição passa a apresentar um vale e um pico; a grandes distâncias da posição da cintura, não é mensurável o efeito não linear, e a transmitância assume um valor constante. O detector *D2* serve para normalizar o sinal de *D1*, que pode flutuar em decorrência da estabilidade do laser, e faz com que a transmitância normalize-se em 1 quando o efeito não-linear é pequeno (longe da cintura).

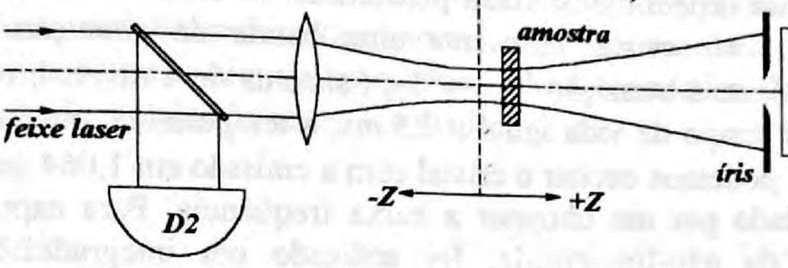

Figura 1 - esquema da montagem experimental de Z-Scan

Ao medirmos a distância entre pico e vale na curva de transmitância normalizada, obtemos $\Delta Z_{p\text{-}v}=1{,}7z_0$, sendo z_0 o parâmetro confocal do feixe, e da diferença de transmitância normalizada entre pico e vale obtemos $\Delta T_{p\text{-}v}=\alpha\Delta\Phi_0$, onde α é uma constante que depende da razão entre o diâmetro da íris e o diâmetro do feixe em sua posição, e $\Delta\Phi_0$ é o deslocamento de fase não-linear, proporcional à susceptibilidade $\chi^{(3)}$. É possível medir, com relativa facilidade, deslocamentos de fase de até $\lambda/100$.

As dificuldades neste método surgem devido a imperfeições (riscos, ondulações) na superfície da amostra, que podem alterar o caminho óptico de dimensões comparáveis à fase medida, e deve-se levar em conta que se o alinhamento do deslocamento da amostra com o feixe não for bom, o laser estará atingindo a amostra em um ponto diferente de sua superfície a cada posição. Também deve-se considerar que a potência do laser pode variar no tempo, para operação CW, ou em cada pulso, para operação pulsada. No entanto, todos estes efeitos descritos são lineares, e em princípio, não são de interesse.

No entanto, se a amostra estudada for um absorvedor de tempo de relaxação lento no comprimento de onda de interesse, uma variação do método[7] pode ser utilizada para aumentar sua sensibilidade. Nesta variante, impõe-se uma modulação com forma de onda quadrada ao feixe, sendo o seu período superior ao tempo de vida do nível absorvedor. Desta forma, a diferença de população que existe entre o estado fundamental e o estado absorvedor, causada pelo bombeamento do feixe laser, atingirá o equilíbrio somente após algumas constantes de tempo do nível superior. Esta diferença de população altera a polarização do meio, originando a não-linearidade. Assim, efetuamos duas medidas do sinal detectado através da íris, uma logo após a abertura do modulador, no tempo t_1, e outra antes de seu fechamento, em t_2. A razão dos sinais $S(t_2)/S(t_1)$ é a amplitude do efeito não-linear, já descontados os efeitos lineares, eliminando também a necessidade do detector *D2*, de normalização. Este tipo de medida é repetido para cada posição da amostra sobre o feixe, e posteriormente é construída uma curva da razão dos sinais em função da posição, que é a curva da transmitância normalizada de Z-Scan. Esta técnica, ao eliminar os efeitos lineares ponto-a-ponto, permite a eliminação de ruído mais eficientemente que técnicas anteriormente apresentadas, permitindo a observação de variações de fase, entre pontos consecutivos de uma medida, da ordem de $\lambda/10^4$ em torno de 500 nm[7].

Resultados Experimentais

Realizamos, até a data de entrega deste trabalho, uma medida da não-linearidade de terceira ordem apresentada pelo cristal de BaLiF:Ni(1%), crescido em nossos laboratórios. Este cristal apresenta uma banda de absorção centrada em 1180 nm, correspondente à transição $^3A_{2g} \rightarrow {}^3T_{2g}$ (sistema de 4 níveis), com eficiência quântica de 50%, e tempo de vida igual a 2,5 ms, à temperatura ambiente. Devido a estas características, podemos excitar o cristal com a emissão em 1,064 μm de um laser de Nd:YAG, modulado por um chopper a baixa freqüência. Para captar o sinal da evolução temporal da não-linearidade, foi utilizado um integrador Boxcar. Um exemplo do sinal medido pelo Boxcar pode ser visto na figura 2.

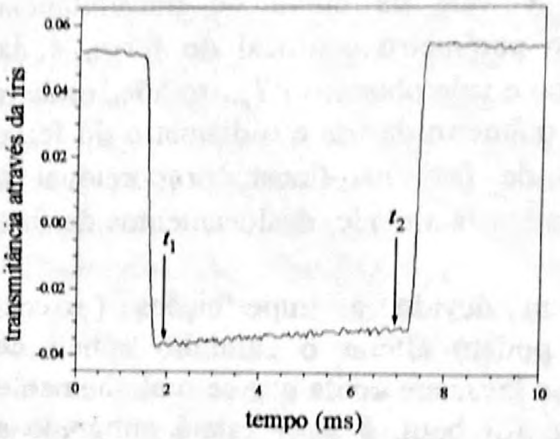

Figura 2 - Sinal lido pelo integrador Boxcar. A razão $S(t_2)/S(t_1)$ foi calculada nos tempos indicados no gráfico : t_1 = 1,95 ms e t_2 = 6,95 ms. Esta medida foi feita com a amostra entre a posição da cintura e o detector, revelando uma não-linearidade negativa

Foram levantadas curvas similares à da figura 2 para várias posições da amostra sobre o feixe, e para cada uma dessas curvas, sempre foi calculada a razão nos mesmos tempos t_1 e t_2. A curva de Z-Scan resultante pode ser vista na figura 3.

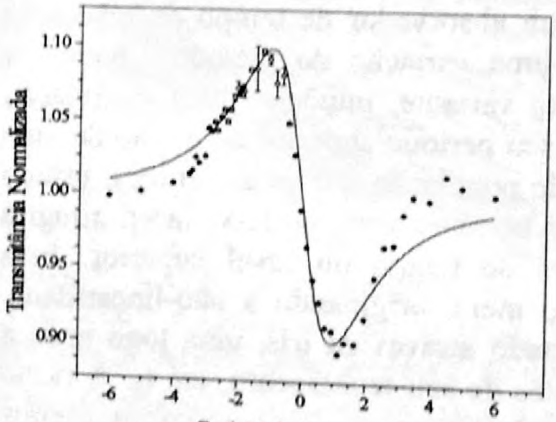

Figura 3 - curva de Z-Scan em 1,064 μm para amostra de BaLiF:Ni(1%) com 3,7 mm de espessura, com diâmetro de íris de 3,2 mm, e diâmetro do feixe igual a 7,7 mm sobre a íris. Sobre a amostra incide uma potência de 1,15 W de luz laser. A linha contínua representa o ajuste de função aos pontos, fornecendo um deslocamento de fase $\Delta\Phi_0$ = 0,532, e parâmetro confocal z_0 = 11,3 mm, correspondendo a uma cintura de 62 μm.

Os dados da medida indicam uma potência de 9,58 kW/cm^2 na posição da cintura do feixe. Sabendo ainda que o coeficiente de absorção linear da amostra, neste comprimento de onda, é $\alpha = 2,5$ cm^{-1}, e seu índice de refração linear é $n_0 = 1,5$, determinamos, preliminarmente, que seu coeficiente não-linear é **$\gamma = 3,9 \pm 0,2 \cdot 10^{-6}$ cm^2/kW**, ou ainda, sua susceptibilidade não-linear de terceira ordem é **$\chi^{(3)} = 3,3 \pm 0,2 \cdot 10^{-7}$ esu.**

Sabemos que o efeito não-linear medido é devido aos íons de Ni^{+2}, e não às propriedades não-lineares da matriz, pois fluoretos apresentam não-linearidades da ordem de 10^{-13} esu[8], além da absorção linear desses íons já citada. Não dispomos de dados para comparação, porém resultados[7] obtidos para íons de Cr^{3+}, um metal de transição assim como o níquel, apresentam não-linearidades de ordens de grandeza próximas à obtida, validando nosso resultado.

Agradecimentos

Agradecemos à FAPESP pelo apoio na forma do projeto 93/4999-7

Referências

1. di Bartolo, B., **"Optical Interactions in Solids"**, *John Wiley & Sons Inc,* New York, 1968.
2. Shen, R., **"The Principles of Nonlinear Optics"**, *John Wiley & Sons Inc,* New York, 1984.
3. Yariv, A., **"Quantum Electronics"**, *Third Edition, John Wiley & Sons, Inc,* New York, 1989.
4. Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D., **"Solid State Physics"**, *W. B. Saunders Company,* Philadelphia, 1976
5. Sheik-Bahae, M., Said, A. A., Wei, T., Hagan, D. J. and Van Stryland, E. W., **"Sensitive Measurement of Optical Nonlinearities Using a Single Beam"**, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 26(4), 1990.
6. Kogelnik, H. and Li, T., **"Lasers, beams and Ressonators"**, *Applied optics*, 5, pp. 1550-1567, 1966.
7. Oliveira, L. C. and Zilio, S. C., **"Single-Beam Time-Resolved Z-Scan Measurements of Slow Absorbers"**, *Appl. Phys. Lett.*, 65(17), 1994.
8. Weber, J., Milam, D. and Smith, W. L., **"Nonlinear Refractive index of Glasses and Crystals"**, *Opt. Eng.*, 17, pp. 463-469, 1978.