

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS

TESIS

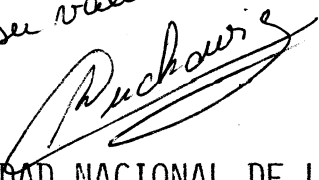
PARA OPTAR AL TITULO DE DOCTOR EN FISICA

EXCITACION DE LASERES DE COLORANTES POR LASERES GASEOSOS PULSADOS

RICARDO DUCHOWICZ

1981

Al Dr. Mario Gallardo
con todo mi agradecimiento
por el aporte de su valiosa
experiencia.


UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA

FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS

TESIS

PARA OPTAR AL TITULO DE DOCTOR EN FISICA

EXCITACION DE LASERES DE COLORANTES POR LASERES GASEOSOS PULSADOS

RICARDO DUCHOWICZ

1981

a mis padres

a mi esposa

a mis hijos

INDICE

CAPITULO I	INTRODUCCION	
	I - 1 Antecedentes generales	1
	I - 2 Objetivos	3
CAPITULO II	TEORIA DE OPERACION DE LOS LASERES DE COLORANTES	
	II - 1 Introducci3n	5
	II - 2 Propiedades fotof3sicas de los colo- rantes.	5
	II - 3 Caracter3sticas de la emisi3n del l3- ser de colorante	14
	II - 4 M3todos de excitaci3n	20
	II - 5 M3todos de sintonia	21
	II - 6 Teor3a de operaci3n	23
	II - 7 L3seres de colorantes excitados con l3seres gaseosos pulsados	30
CAPITULO III	DESARROLLO EXPERIMENTAL	
	III - 1 Introducci3n	35
	III - 2 L3ser de Xe	35
	III-2-1 Introducci3n	35
	III-2-2 Montaje experimental	40
	III-2-3 Circuitos de descarga	44
	III-2-4 Mediciones el3ctricas	46

III - 3	Láser iónico de Argon continuo	46
III - 4	Láser de colorante	47
III-4-1	Características del medio activo	47
III-4-2	Propiedades de la celda y el resonador	48
III-4-3	Elementos de sintonía	51
III - 5	Medidas de los pulsos luminosos	52
III - 6	Instrumentos utilizados para el registro de espectros	53

CAPITULO IV

RESULTADOS EXPERIMENTALES

IV - 1	Introducción	54
IV - 2	Características del láser de Xe	54
IV - 3	Emisión del láser de colorante	63
IV-3-1	Respuesta temporal	63
IV-3-2	Eficiencia	63
IV-3-3	Espectro de emisión de banda ancha	65
IV-3-4	Espectro de la emisión sintonizada	65
IV - 4	Comparación con la emisión continua	69
IV - 5	"Locking" en frecuencia mediante doble excitación	70
IV - 6	Aproximación fenomenológica de los procesos	78
IV-6-1	Espectro de banda ancha	82

	IV-6-2	Emisión sintonizada con la cuña	86
	IV-6-3	Emisión sintonizada con cuña y etalón	87
	IV-6-4	Emisión producida con doble excitación (continua y pul- sada)	90
CAPITULO V		DISCUSION FINAL Y CONCLUSIONES	
	V - 1	Introducción	94
	V - 2	Características de la emisión pul- sada de los láseres de colorantes	94
	V - 3	"Locking" en frecuencia mediante doble excitación	97
	V - 4	Aplicaciones	99
REFERENCIAS			101

CAPITULO I
INTRODUCCION

CAPITULO I

INTRODUCCION

I - 1 Antecedentes generales

A pesar de que en el momento en que hizo su aparición el láser de colorante en 1966, ya muchos otros, de variados tipos, barriaban el espectro desde el ultravioleta hasta el infrarrojo, ese hecho revolucionó varias áreas de la ciencia.

Ya en 1961, Ivanov (1), Brock et al (2) y Rautian y Sobelmann(3), fueron quienes propusieron el uso de sustancias orgánicas para obtener efecto láser. Sin embargo, ellos indicaban el uso de la transición fosforescente. En 1964, Stockman et al. (4) reportaron una pequeña ganancia al excitar con lámparas de flash una solución de perileno en benceno. La elección del colorante, en este caso, no era adecuada, por sus grandes pérdidas debido a absorciones $S_1 \rightarrow S_N$ y $T_1 \rightarrow T_N$.

En 1966, Sorokin y Lankard (5), mientras trataban de observar el efecto Raman estimulado desde una solución de cloro-aluminio-ftalocianina excitando con un láser de rubí, fueron los primeros en obtener emisión láser desde este tipo de sustancias en los laboratorios del Thomas J. Watson Research Center de IBM.

En el mismo año Schäfer et al(6) en la Universidad de Marburg obtuvieron emisión estimulada en 3,3'-diethyl carbocianina excitado por pulsos gigantes de un láser de rubí.

Por variación de las concentraciones y de los espejos fueron observados los primeros indicios de la sintonizabilidad del láser de colorante.

También variaciones en los solventes usados mostraban variaciones de las zonas de emisión y de las eficiencias. En poco tiempo el empleo de diversas sustancias permitió barrer el espectro desde el UV al IR cercano.

En 1967 Soffer y Mc Farland (7) introduciendo una red de difracción en lugar de uno de los espejos del resonador, lograron un importante avance, al reducir el ancho espectral de 6 a 0.06 nm. Al mismo tiempo, la emisión fue sintonizada en un rango de 45 nm.

El uso de distintas fuentes de excitación, láseres y lámparas de flash, permitió obtener variadas potencias y anchos de pulso, lográndose en 1969 (8) un máximo de 140 μ s de emisión. Ese mismo estudio mostró las causas de la terminación del pulso, principalmente por efectos térmicos (schlieren) y acústicos, además, del ya conocido de acumulación de moléculas en los tripletes.

En 1970 Peterson et al (9) lograron emisión continua en una solución de Rodamina 6 G en agua con el agregado de algún detergente (a fin de reducir la producción de dímeros que no fluorescen), excitado longitudinalmente con un láser iónico de argón continuo, logrando un muy pequeño volumen activo.

En la última década el avance fue arrollador. Su evolución tuvo y tiene considerable influencia en la ciencia y también en la tecnología. Desde su aparición y dada sus propiedades de sintonizabilidad sin mayor pérdida de potencia, compite ventajosamente con los de frecuencia fija.

Sus propiedades son comparables a cualquier otro láser. Sus formas de operación son continuas o pulsadas según la fuente de excitación utilizada. Estas pueden ser láseres para el primer caso y láseres y lámparas

de flash para el segundo. En este último caso la radiación puede ser generada desde el UV (3000 \AA) al IR (12.000 \AA).

Otra importante característica de los colorantes es la posibilidad de utilizar su ancho de banda para producir pulsos ópticos ultracortos (10). De esta manera, han sido obtenidos pulsos menores de un picosegundo (10^{-12} s) de duración (11). Dado que el ancho de banda necesario para la producción de esos pulsos es menor que el que brindan los colorantes, esos pulsos pueden sintonizarse. La técnica que los produce se denomina "mode-locking" e involucra establecer una relación de fase coherente entre las distintas frecuencias (o modos) oscilantes en la cavidad láser.

I - 2 Objetivos

En este trabajo se analizan las características de emisión de los láseres de colorantes, en particular de aquellos que operan en forma pulsada.

Inicialmente discutiremos las características dinámicas del medio activo relacionadas con los distintos procesos involucrados en la operación del láser.

Si bien los fundamentos generales de su funcionamiento son conocidos desde hace años, las dificultades de lograr sintonía encauzando la radiación en anchos de banda estrechos sin perder eficiencia (relación entre la energía emitida y la absorbida) aún subsisten y diversos sistemas y métodos se plantean día a día para optimizar la solución del problema.

Los láseres gaseosos pulsados poseen características de emisión cuyos efectos sobre los de colorantes son semejantes. En este caso, ilustraremos el problema estudiando el comportamiento de una solución de Rodamina 6G

excitada mediante un láser de Xe iónico pulsado.

La emisión continua obtenida al excitar el mismo medio con un láser de Ar iónico, posibilita la comparación de ambos modos de operación mostrando la drástica variación espectral de ambos.

Posteriormente, es descripta la utilización de un método que permite gobernar el espectro de emisión en láseres de colorantes pulsados.

Mediante un sencillo modelo fenomenológico que toma en cuenta la interacción flujo-molécula, se discutirán luego las principales características observadas ya sea con o sin sintonía. Finalmente, se analizan los resultados obtenidos así como las ventajas y desventajas del método utilizado y sus posibles aplicaciones.

CAPITULO II

TEORIA DE OPERACION

DE LOS

LASERES DE COLORANTES

CAPITULO II

TEORIA DE OPERACION DE LOS LASERES DE COLORANTES

II - I Introducción

En este capítulo se describen las principales propiedades fotofísicas de los colorantes, así como sus características espectrales propias de emisión al actuar como láser.

Los métodos de excitación y sintonía son descriptos en las secciones 3 y 4.

En la sección 5 discutiremos la interacción flujo - molécula, planteando ecuaciones que describen el comportamiento dinámico del sistema en operación pulsada.

Finalmente, en la sección 6, se mencionan distintos casos de excitaciones de colorantes con láseres gaseosos pulsados, particularmente mediante el de Xe iónico. En este caso, y en posteriores capítulos analizaremos las propiedades de los láseres de colorantes.

II - 2 Propiedades fotofísicas de los colorantes

Los compuestos orgánicos no saturados se caracterizan por poseer como mínimo una unión doble o triple, las que influyen sus propiedades espectroscópicas. Cuando dos uniones dobles están separadas por una unión simple, las dos uniones se llaman conjugadas. Ambas están formadas por electrones σ pero la doble posee también una unión entre electrones π .

ce

Las transiciones láser en las moléculas orgánicas de colorantes involucran estados electrónicos del llamado "sistema cromoférico". Este está constituido por una cadena de uniones conjugadas y determina los mecanismos responsables de la absorción de luz, características de estas sustancias, la que se produce por encima de los 200 nm,

Dada la complejidad del problema mecano - cuántico no es posible una derivación rigurosa de los mecanismos de absorción. Sin embargo, modelos simples como el de Kuhn (12) permiten explicar muchas observaciones experimentales, al menos para algunos compuestos. Se concluye que el sistema cromoférico tiene una serie de niveles permitidos de energía, mientras que los estados que los determinan son llenados en una manera consistente con el principio de exclusión de Pauli.

Si tenemos N electrones \uparrow , en el estado fundamental los $\frac{N}{2}$ estados de menor energía estarán ocupados con dos electrones cada uno con spines anti-paralelos, determinando un estado singulete. Cuando esto ocurre, los dos electrones del estado ocupado de mayor energía, están localizados sobre uno u otro de los átomos terminales. Como las moléculas son simétricas respecto a la cadena conjugada o muy cercana a ella, el estado fundamental es un "híbrido de resonancia" de las dos posibles polarizaciones. En el primer estado electrónico excitado uno de los dos electrones más energéticos es distribuido sobre los átomos de carbono de la cadena. Si el spin del electrón no cambia en la transición el estado excitado será un singulete. Si son paralelos este será un triplete con una energía levemente menor. Esta característica

también aparece entre estados singuletes y tripletes de más energía (fig.1). Considerando una transición desde el mayor estado ocupado al menor vacío, se determina la mayor longitud de onda de absorción, siendo proporcional a la longitud de la cadena al cuadrado e inversamente proporcional al número de electrones n . El modelo de Kuhn concuerda muy bien, por ejemplo, para las cianinas.

Cada uno de los niveles electrónicos de átomos o iones tienen un ancho del orden de 10^{-2} - 10^{-3} cm^{-1} . En cambio, en una cadena de átomos (50 o más) están perturbados por interacciones con modos vibracionales del esqueleto molecular. Además, perturbaciones electrostáticas y colisionales ensanchan las líneas individuales de tales series vibracionales. Por último cada uno de estos niveles tiene superpuesto un conjunto de subniveles rotacionales excitados. Estas están extremadamente ensanchados debido a las frecuentes colisiones con las moléculas del solvente, el cual perturba el movimiento rotacional, de tal manera que hay un cuasicontinuo de estados superpuestos a cada nivel electrónico.

En un proceso de absorción, un electrón pasa rápidamente desde el menor nivel en S_0 a un estado vibracional en S_1 . Dado que el tiempo empleado es despreciable respecto al movimiento nuclear, el estado de desequilibrio al que llega es un estado de Frank-Condon. Desde allí relaja sin radiar a un estado de equilibrio térmico en S_1 (10^{-13} - 10^{-11} seg.). La velocidad en que ocurre es debido a la alta frecuencia de colisiones con moléculas del solvente.

Así como el espectro de absorción es prácticamente un continuo, lo

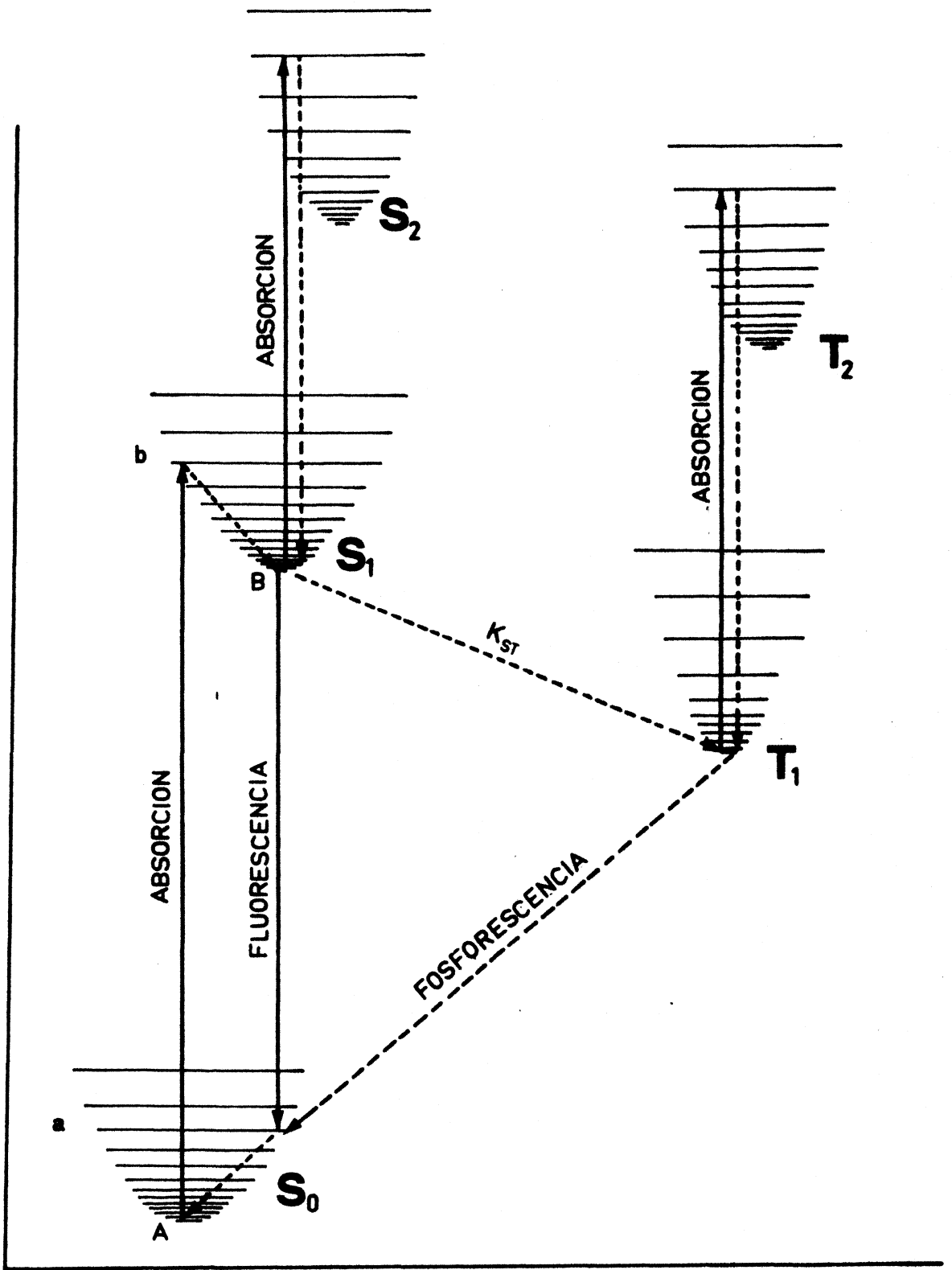


FIGURA 1

mismo ocurre con el de fluorescencia. Dado que las transiciones emisivas comienzan en el estado vibracional fundamental del primer estado electrónico excitado y finaliza en subniveles vibracionales excitados del estado electrónico fundamental, resulta en una imagen especular de las bandas de absorción desplazadas a mayores longitudes de onda por reflexión en la longitud de onda de la transición puramente electrónica. La figura 2 muestra el caso de la Rodamina 6 G.

Posteriormente, la molécula relaja de $S_0^* \rightarrow S_0$ en forma no radiativa, similar a la $S_1^* \rightarrow S_1$.

Existen otros medios de desactivar a S_1 . Uno de ellos es debido a que la hipersuperficie de energía del estado excitado se aproxima bastante a la del estado fundamental, de manera que un electrón pasa de $S_1 \rightarrow S_0^*$ (nivel vibracional muy excitado) por efecto túnel. Este proceso se denomina "conversión interna" (constante de probabilidad, K_{SS}). Este tipo de decaimiento es mayormente responsable de la pérdida de eficiencia de fluorescencia en colorantes orgánicos. El valor de K_{SS} puede diferir en varios órdenes de magnitud, dependiendo de la estructura molecular de éstos y de las propiedades del solvente.

× La conversión interna entre S_2 (estados excitados de mayor energía) es usualmente muy rápida. La diferencia de energía es disipada en el medio termalizado, o sea, la molécula "caliente" distribuye sus fonones en exceso a sus vecinas estableciéndose un equilibrio térmico. A temperatura normal esta disipación de energía vibracional ocurre en 10^{-11} s. Esta es lenta respecto al tiempo de una transición electrónica de absorción

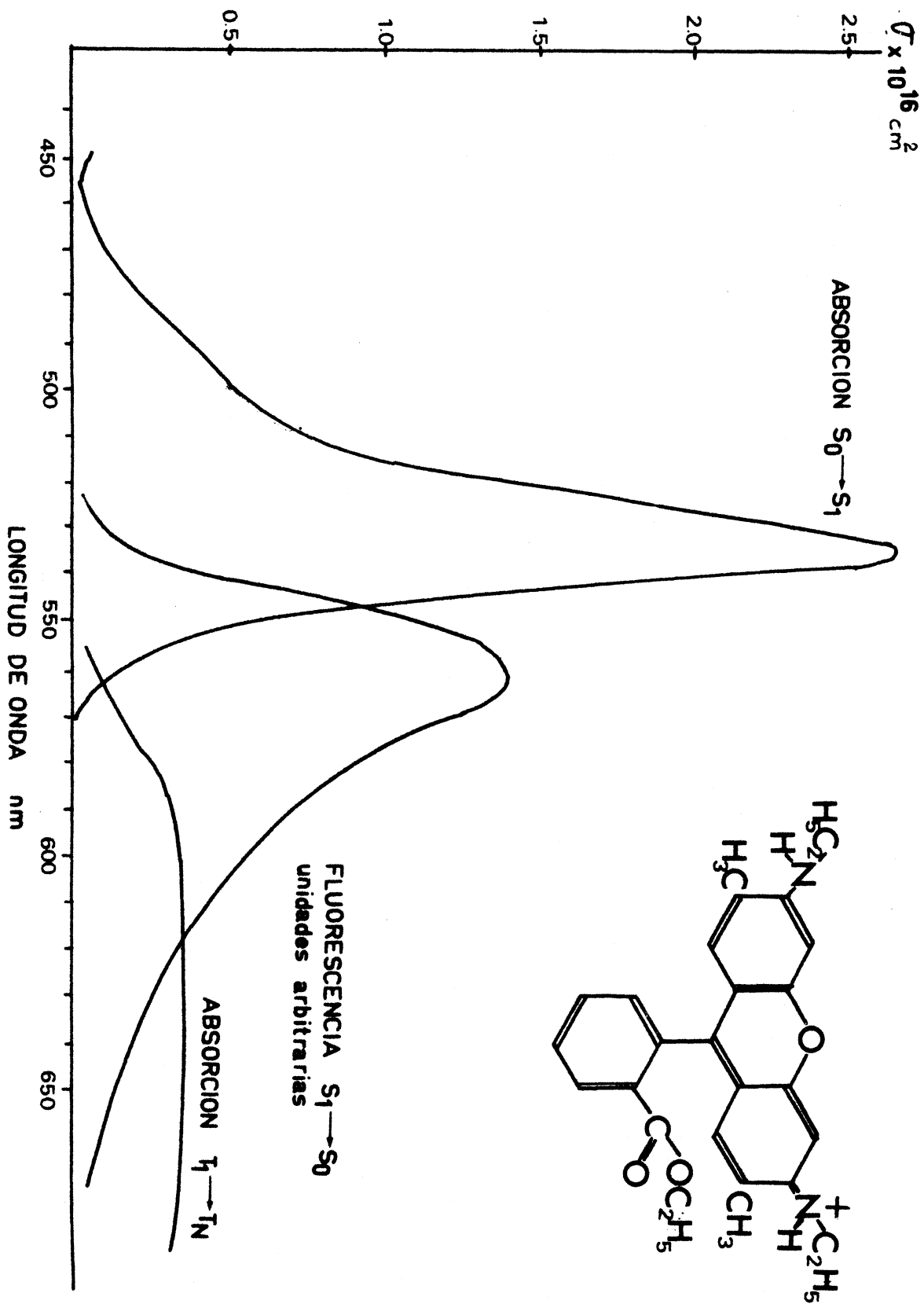


FIGURA 2 - RODAMINA 6G

pero rápida comparada con la fluorescencia normal (10^{-9} s) Esto explica porqué las propiedades de fluorescencia de una molécula en solución diluida son independientes del estado vibracional inicial en la banda de absorción $S_0 \rightarrow S_1$ a la cual la molécula es excitada. En muchas moléculas aromáticas (incluidos los colorantes) se encuentra que las propiedades fluorescentes son independientes del estado electrónico singulete inicial S_N al cual la molécula puede ser excitada. Procesos de este tipo (con $N > 1$) no son en general favorables, debido a la cantidad de energía que debe ser disipada en calor en la subsecuente relajación $S_N \rightarrow S_1$.

Esto también es cierto para el caso del láser y para los órdenes de tiempos que nos ocupa, es decir, por sobre los ns.

En modelocking, sin embargo, esto no es así, dado que la duración de los pulsos son del mismo orden que la relajación (ps).

También son posibles transiciones electrónicas isoenergéticas sin radiación entre estados de distinta multiplicidad. En este caso nos referimos a "interconexión de sistemas" (de constante K_{ST}). Esto puede ser producido por perturbaciones internas o externas (acoplamiento spin-órbita, sustituyentes o moléculas de solventes conteniendo núcleos con gran número atómico, etc) y es, por varias razones, un efecto no deseable en láseres de colorantes. Moléculas que llegan al sistema de tripletes son atrapadas por el tiempo de fosforescencia (10^{-7} a 10^{-3} seg., dependiendo del medio en que se encuentren y dado que el pasaje $T_1 \rightarrow S_0$ es prohibido por spin) y efectivamente removidas del proceso del láser. Este hecho marca una diferencia esencial entre operación continua o pulsada. En excitaciones temporalmente

largas, una fracción no despreciable del total de moléculas N pueden establecerse en T_1 . Por supuesto, si N_T se aproxima a N , la amplificación láser no es posible, dado que no hay moléculas para utilizar en el camino $S_1 \rightarrow S_0$.

Aún cuando esto no ocurre, puede desaparecer por otra circunstancia. Transiciones entre el conjunto de estados tripletes, por ejemplo $T_1 \rightarrow T_2$ son permitidos dado que no involucran cambio de spin. Las moléculas en T_1 tienen una gran sección eficaz para los procesos $T_1 \rightarrow T_2$ y $T_1 \rightarrow T_N$ y, desafortunadamente el espectro de absorción asociado con T_1 se encuentra superpuesto al de fluorescencia. De esta manera constituye un mecanismo de pérdida en la zona donde la ganancia óptica ha de ser producida. Para vencerla es necesario aumentar la excitación disminuyendo la eficiencia.

En muchos colorantes, esa pérdida es muy grande, no pudiéndose obtener inversión de población en operación continua, por no existir fuentes con la potencia necesaria.

El efecto del triplete es también el de absorber por el mismo procedimiento la radiación de excitación. Sin embargo este proceso puede ser de menor importancia.

Dado que la transición $S_1 \rightarrow S_2$ también es permitida, puede ser otro mecanismo de pérdida. Las moléculas que llegan a S_1 pueden absorber radiación y pasar a niveles superiores.

O. Teschke y otros (13) determinaron el espectro de absorción para Rodamina 6G a partir de medidas de transmisión y potencias de salida (Fig.

3), observándose una superposición apreciable y valores de sección eficaz aún mayores, con respecto al espectro de absorción del nivel fundamental. Es de particular importancia, en el caso que la población del nivel excitado se aproxima al número total de moléculas y en particular, en excitación continua, dado que reduce la potencia efectiva de la fuente.

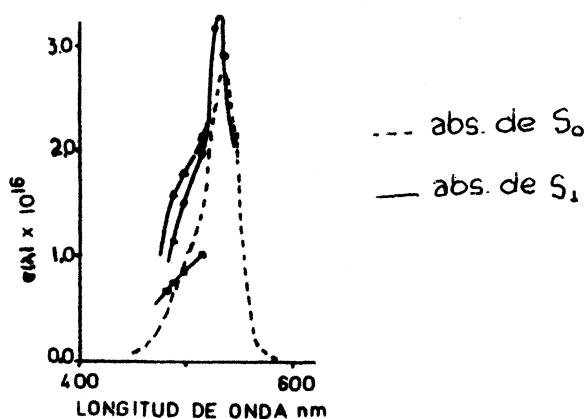


FIGURA 3 - RODAMINA 6G

Reabsorción de la radiación láser desde el estado fundamental por $S_0 \rightarrow S_1$ es también permitida, pero la sección eficaz de la transición es pequeña, debido a que los dos procesos de relajación dá a la fluorescencia un considerable corrimiento Stokes (aproximadamente 30 nm para Rodamina 6G (Fig. 2).

La operación del láser de colorante está acotada en longitud de onda por dos causas principales. El límite inferior está dado por la absorción de colorantes conteniendo solo dos uniones dobles conjugadas (en 220 nm). Como la fluorescencia está corrida al rojo, se puede obtener emisión sobre los 250 nm. Compuestos con una sola doble unión absorbe bajo los

200 nm, pero la descomposición química a esta longitud de onda compete con la desactivación radiativa de la molécula, dado que la energía de los fotones absorbidos es mayor que la energía de alguna determinada unión molecular.

La estabilidad térmica y fotoquímica determina el límite superior. Muchas moléculas, por excitación térmica pueden alcanzar el estado triplete fuertemente reactivo. Este puede reaccionar con moléculas del solvente, oxígeno disuelto, impurezas, para dar productos de descomposición, limitando la vida práctica del colorante. Estos procesos se acentúan por encima de los 1000 nm.

El rango de operación para los láseres continuos es aún menor, dado que además, el colorante debe tener una eficiencia cuántica elevada.

Información complementaria acerca de lo tratado puede encontrarse en las referencias (10, 14, 15).

II - 3 Características de la emisión del láser de colorante

Las transiciones láser son las mismas que las que producen la emisión fluorescente, es decir, aquellas que se desarrollan en $S_1 \rightarrow S_0^*$. Dado que este último estado puede ser bastante energético respecto a KT y el proceso de relajación es rápido, se encontrará prácticamente despoblado. La operación corresponderá básicamente, entonces, a un láser de cuatro niveles.

Aún cuando el espectro de los láseres de colorantes con espejos reflectantes de banda ancha suele ser ancho (en el caso de excitaciones

pulsadas puede ser de cientos de angstroms, como veremos luego en el caso particular que nos ocupa), es generalmente más reducido que el de la curva de ganancia (Ver, como ejemplo, el caso de operación continua en fig. 27) Esto es debido a la denominada "competencia entre modos" una de las responsables de la característica más importante de los láseres de colorantes y debida a que las emisiones ocurren entre niveles homogéneamente ensanchados.

Mediante sencillos procedimientos (el agregado de elementos dispersantes en la cavidad, etc.), es posible estrechar drásticamente el ancho espectral sin perder mayormente energía. La radiación puede simultáneamente, ser sintonizada en forma continua sobre la curva de ganancia. Este efecto fue descubierto en 1967 por Bernard H. Soffer y B.B. McFarland (7) al reemplazar uno de los espejos del resonador por una red de difracción. El primer orden de la red fue alineado en la cavidad y la sintonía fue lograda con solo rotar la red. El ancho de la emisión del colorante (Rodamina 6G excitada con lámparas de flash) inicialmente de 150 \AA fue reducido a 1 \AA a 2 \AA sin encontrar pérdidas apreciables de potencia. Además, con una concentración fija, fue obtenido un rango de sintonía de 300 a 400 \AA .

Para entender como la energía es canalizada de esta manera, haremos uso de los diagramas de energía potencial que nos ilustra el problema, al menos cualitativamente, dado la complejidad de las moléculas poliatómicas (fig. 4) El conjunto de niveles vibracionales y rotacionales puede reemplazarse por una distribución continua de dichos niveles.

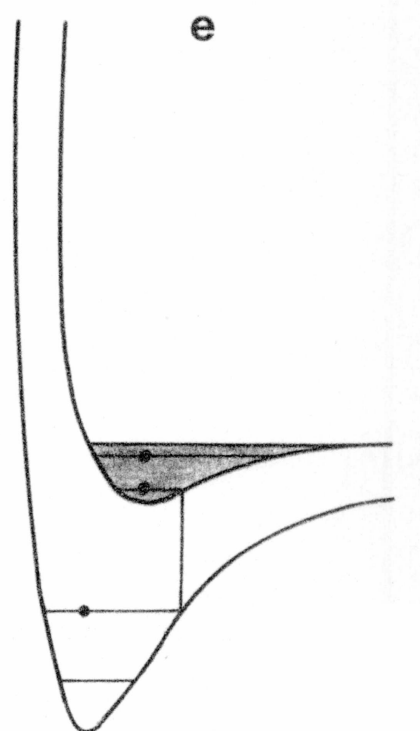
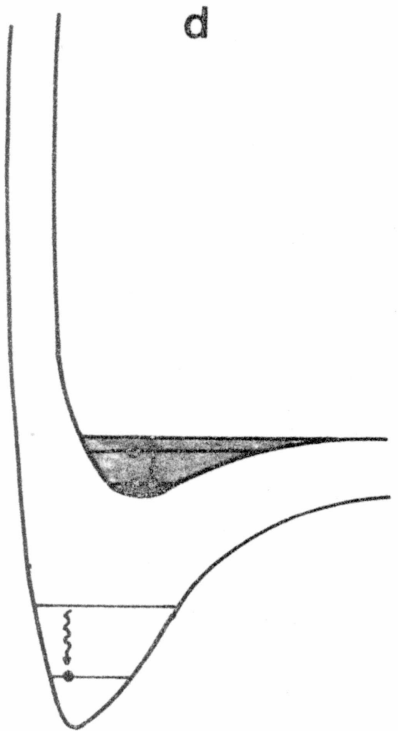
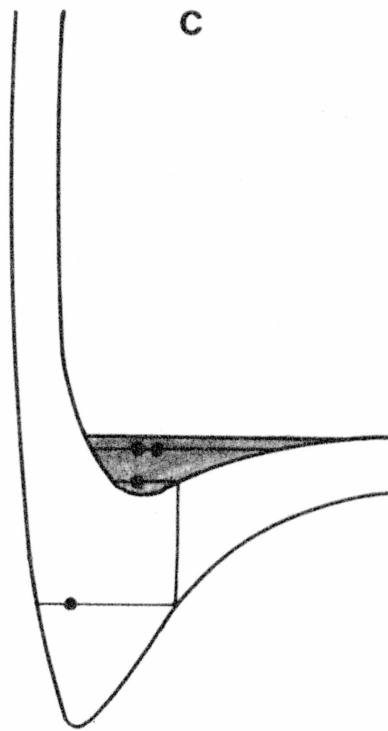
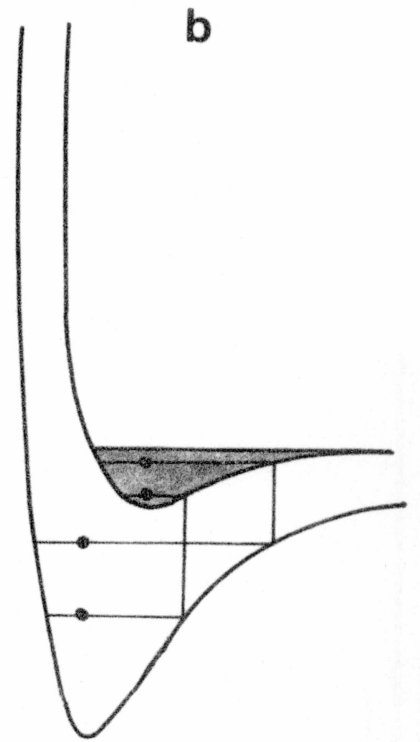
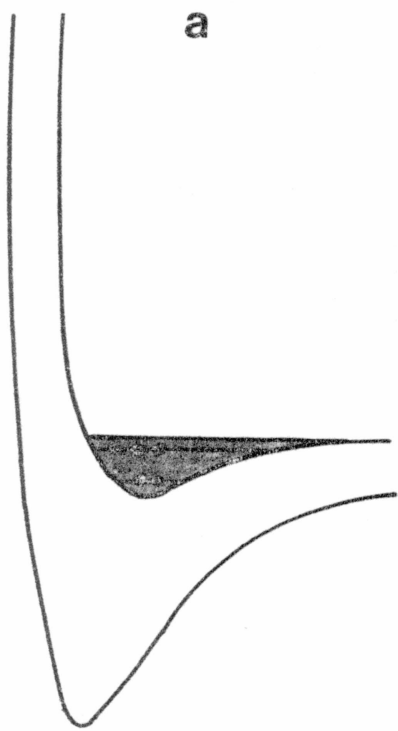


FIGURA 4

En cada diagrama, representamos un dado conjunto de moléculas en ciertos estados. Dado que, en general, el equilibrio térmico prevalece en cada continuo, sólo aquellos niveles con energías vibracionales iguales o menores que la energía térmica pueden ser ocupados. Entonces cada nivel es poblado de acuerdo a la distribución de Boltzman.

Cuando no hay elementos de sintonía en la cavidad, la emisión estimulada involucra a todas las moléculas presentes en el menor estado singulete excitado (fig. a y b). La longitud de onda de las moléculas que emiten desde el tope de la banda podrá ser mayor que aquellas que poseen menor energía vibracional. Por lo tanto, la emisión podrá cubrir un ancho rango espectral. Si un filtro de banda angosta es colocado dentro de la cavidad permitiendo oscilar, digamos, las bajas frecuencias, la emisión láser estará restringida a unos saltos determinados (c). Esto debería, en el ejemplo, despoblar la parte inferior de S_1 . Sin embargo, ya hemos expresado que el equilibrio térmico se logra en forma rápida (d), bajando moléculas de estados vibracionales superiores para seguir manteniendo la distribución primitiva, pudiendo continuar de esta manera el proceso (e).

Un proceso natural de reducción del ancho espectral es el ya mencionado "competencia de modos", el cual es debido a que la fuente que provee las moléculas emisoras es común (debido al efecto térmico) y a las características intrínsecas de la emisión estimulada. Como la ganancia depende de la densidad de radiación, aquellas frecuencias con mayor intensidad la aumentarán a expensas de la energía de las más débiles, produciéndose una contracción del espectro a medida que aumenta

la excitación.

La disminución del tiempo de actuación de ésta provoca una disminución en la eficiencia de la contracción (16, 17).

Otro efecto presente es la observación de un corrimiento hacia frecuencias mayores del máximo de emisión (17, 18) en operación pulsada. En ciertos casos, luego de alcanzar un máximo, un corrimiento menos sustancial es observado hacia el azul. Las causas de estos fenómenos, corresponden al hecho de que las poblaciones de fotones en los modos de la cavidad siguen una redistribución temporal, dependiente de la variación de sus ganancias por cambios en las poblaciones relativas de los distintos niveles.

El espectro de emisión de un oscilador no sintonizado puede ser modificado por inyección en la cavidad de una línea láser externa (injection locking) cuya frecuencia coincide con alguna de las de emisión del colorante. El efecto de acople del flujo en esta frecuencia puede persistir por mayor tiempo que la radiación inyectada. El uso de láseres continuos de He-Ne o de colorantes es bien conocido, aún en el caso de excitación con un laser de Xe iónico (19).

Esta técnica ha sido reconocida como un método alternativo en láseres de colorantes para obtener simultáneamente una salida de gran energía en anchos espectrales reducidos.

La primer experiencia del método fué realizada por Stover y Steier (20) al aplicarlo en la estabilización de un láser continuo de CO_2 de gran potencia mediante láseres de He-Ne acoplados operando en

un solo modo. En estos casos (CW), la inyección debe ser grande para eliminar la distribución de modos libres obteniéndose anchos muy pequeños. En el caso de operación pulsada, un eficaz "injection locking" puede ser logrado con radiaciones externas débiles, dado que la competición de modos durante la etapa inicial es muy sensible.

Erickson y Szabo (21) fueron los primeros en lograr el efecto en colorantes. Inyectando la radiación de un Ar^+ pulsado (514.5 nm) en un láser de colorante (4-metil-umbelliferona), excitado por uno de N_2 , redujeron el espectro de emisión de 40 nm a uno de uno a tres modos axiales de 1,6 pm. de ancho, separados 7 GHz_z (6 pm) uno de otro.

Más recientemente (22) mediante un sistema de dos etapas de inyección en colorantes excitados por lámparas de flash, pulsos de 12 J (6 MW) fueron obtenidos en ancho de 0.7 GHz_z (0.84 pm) con una eficiencia de compresión del 70%. La relación de la entrada inyectada inicialmente, a la salida, fue de 4×10^8 . Análisis teóricos realizados (17, 22) explican el hecho en términos del efecto de competición de modos dentro de la banda homogéneamente ensanchada de las moléculas de colorante. La radiación inyectada contribuye selectivamente en la etapa inicial de la acción láser, mientras que otros modos desaparecen. La inclusión de elementos selectivos también aumenta la eficiencia del proceso, eliminando parte de la radiación de fondo. También fue considerada la eficiencia respecto a la duración de la inyección (23), siendo la principal diferencia el corto rango de sintonía en que puede mantenerse elevada en el caso de inyección pulsada (pulsos menores que el tiempo de tránsito en

la cavidad respecto de la continua (régimen inverso al anterior).

En esta tesis, una técnica alternativa es utilizada (24). Fundamentalmente, es un proceso de inyección indirecto, ya que un campo de radiación de un limitado rango de frecuencias (o en una) se logra por excitación continua, donde la eficiencia de los elementos de sintonía es mucho mayor y limita los modos oscilantes dentro de la cavidad. Una excitación pulsada superpuesta produce una amplificación de la radiación ya establecida. El mecanismo que la realiza es similar al que se establece en el caso anterior.

Mayores detalles sobre el método y sus posibles ventajas y desventajas se discutirán en las secciones IV - 5, IV - 6 y V - 3.

II - 4 Métodos de excitación

Los esquemas utilizados muestran dos tipos de geometrías principales entre el haz de excitación y el emitido, transversal y longitudinal, obteniéndose menores divergencias con la segunda que simultáneamente posee umbrales más pequeños.

Pulsos gigantes provenientes de los modos fundamentales o de sus armónicos, de los láseres de rubí o neodimio (en vidrio) permiten la operación de los colorantes entre 3.4 y 11.8 μm , con picos de potencias mayores a 10^7 W con varios joules de energía por pulso. La duración de estos es de alrededor de 30 ns.

A menores potencias, el láser de nitrógeno es muy atractivo. Permite, dada la geometría de su haz, la excitación de tipo transversal,

obteniéndose pulsos del orden de los ns.

Los láseres de excimeros presentan características similares al de N_2 , pero sus potencias (45 MW) y anchos de pulsos (25 ns), son mayores permitiendo además intentar disminuir el límite inferior de operación de colorantes, dado que algunos emiten en la zona de 200 nm.

Mediante excitaciones con lámparas de flash es posible lograr pulsos de 50 ns a 10^{-3} s de duración con varios joules de energía y cuyos picos de potencia pueden ser mayores al MW.

Los antecedentes del láser de Xe, son muchos más modestos que los anteriores. Se observan en ellos el empleo de ambos tipos de geometría de excitación.

En la sección 2-6 se brindan específicas referencias de láseres de colorantes excitados por láseres gaseosos pulsados.

II - 5 Métodos de sintonía

La selección de la zona de emisión es posible atendiendo a la cuidadosa elección del colorante, del solvente y del resonador (10, Sec. 1.4.1.)

Como hemos expresado en las secciones anteriores, la introducción de elementos selectivos en la cavidad produce la obtención de anchos de banda más angostos y la posibilidad de sintonía.

Los resonadores selectivos empleados pueden, en primera instancia, clasificarse en cuatro grupos.

a.- Resonadores que incluyen elementos para separación espacial

de longitudes de onda. En este grupo podemos incluir las redes de difracción y los prismas.

b.- Resonadores que incluyen elementos para discriminación interferométrica: etalones Fabry-Perot o filtros de interferencia.

c.- Resonadores que incluyen elementos con dispersión rotacional. Estos sistemas hacen uso de la rotación de la polarización. Un método utiliza filtros birrefringentes, acompañados de una serie de polarizadores en ángulo de Brewster. Estos filtros tienen un retardo de varias longitudes de onda en el centro del rango de sintonía, donde tienen su máxima transmisión. Otro sistema utiliza la dispersión rotacional de cristales de cuarzo cortados en el eje Z.

d.- Resonadores con una realimentación (feedback) selectiva distribuida que se obtienen produciendo una variación espacial periódica del índice de refracción en, por ejemplo, un film de gelatina dicromatada. La modulación espacial es producida exponiendo el film a los modos de interferencia de dos haces de radiación UV coherente (láser de He-Cd). Luego de revelado se lo impregna de una solución de colorante y se lo excita transversalmente (25)

Nuevos elementos y métodos de sintonía aumentan las posibilidades de elección de sistemas más eficientes. Métodos eléctrico y acústico-ópticos, elementos como el etalon Fabry-Perot birrefringente, conjuntos y combinaciones de elementos ya mencionados son frecuentemente utilizados en estudios en diversos modos, principalmente pulsados, dada la dificultad de reducir allí efectivamente el ancho espectral.

II - 6 Teoría de operación

El análisis del comportamiento dinámico del láser de colorante, puede proveer una descripción más que cualitativa y posibilita la comprensión de las observaciones experimentales, tales como potencia, eficiencia y características espectrales.

Varios autores han descripto su operación, ya sea con el medio sintonizado, es decir oscilando en una sola frecuencia (13, 26, 27) o considerando el fenómeno de evolución espectral, donde se incluye la dependencia espectral de la interacción flujo-moléculas (16, 17). En este último caso, dada la complejidad del problema, el análisis se realiza generalmente en forma numérica mientras que en el primero, las expresiones derivadas brindan una cabal idea de la influencia de los parámetros sobre el sistema.

Nos introduciremos en el problema con la discusión realizada por Atkinson y Pace (16) para posteriormente considerar brevemente el trabajo de Teschke et al (13), con el medio sintonizado.

El ciclo que sigue la molécula en este proceso ya ha sido discutido en la Sección II - 2.

Las moléculas de colorante que conforman un amplificador de banda ancha y un generador de ruido, seleccionan de la cavidad aquellos modos con elevado Q del espectro de modos de espacio libre. El aumento de fotones en todos los modos entre λ y $\lambda + d\lambda$ debido a la emisión espontánea es $II - 1: N_1 E(\lambda) d\lambda / \tau_1$ (27 - a), donde N_1 es la población de S_1 (fig. 1), $E(\lambda)$ función de la forma de línea fluorescente

y τ_1 tiempo de vida de ese estado. Además $\int E(\lambda) d\lambda = \phi$ es la eficiencia cuántica de fluorescencia. Esta última es influenciada por los tres procesos siguientes: el decaimiento radiativo (fluorescente) con un tiempo de vida τ_R , la interconexión entre sistemas (singulete S_1 a triplete T_1) que ocurre en una proporción K_{ST} (seg.⁻¹) y la relajación no radiativa $S_1 \rightarrow S_0$ con una proporción K_{SS} (seg.⁻¹). Por ello, la eficiencia de fluorescencia es expresada por:

$$\phi = \frac{\tau_R^{-1}}{\tau_R^{-1} + K_{ST} + K_{SS}} = \frac{\tau_1}{\tau_R}$$

Si el volumen que ocupan los modos es V , entonces el número de modos en el rango $[\lambda, \lambda + d\lambda]$ es $8\pi \eta^3 V d\lambda / \lambda^4$, donde η es el índice de refracción del solvente.

El aumento de fotones en un modo de la cavidad debido a la emisión espontánea es entonces igual a: $N_1 \lambda^4 E(\lambda) / 8\pi \eta^3 \tau_1 V$. II - 2

Dado que la emisión estimulada se obtiene multiplicando la anterior por el número de fotones en el modo, tenemos para estos dos procesos que $\frac{dN_m}{dt} = N_1 \lambda^4 E(\lambda) (N_m + 1) / 8\pi \eta^3 \tau_1 V$ II - 3

Definiendo la sección eficaz de emisión $\sigma_e = \lambda^4 E(\lambda) / 8\pi \eta^2 \tau_1$ donde c es la velocidad de la luz y llamando F a la proporción del volumen modal ocupado por las moléculas, la densidad de éstas será $n_1 = N_1 F V$

$$y \quad \frac{dN_m}{dt} = F n_1 \sigma_e(\lambda) c (N_m + 1) / \eta \quad \text{II - 4}$$

En forma análoga podemos considerar la pérdida de fotones debido a la absorción de radiación del modo m por $S_0 \rightarrow S_1$ y $T_1 \rightarrow T_2$, salvo

que estarán multiplicados por N_m , pues no hay absorción espontánea.

También consideramos la pérdida de fotones debido a pérdidas por transmisión en los elementos ópticos, que es expresado en función de τ_m , tiempo de vida de la cavidad del modo m .

Finalmente expresando los resultados en función de densidades, tenemos:

$$\frac{dn_m}{dt} = n_m \left(n_1 \sigma_e(\lambda) - n_T \sigma_T(\lambda) - n_0 \sigma_a(\lambda) \frac{cF}{\eta} - \frac{1}{\tau_m} \right) + \frac{Fcn_1 \sigma_e(\lambda)}{\eta V} \quad \text{II - 5}$$

Además, para las distintas poblaciones tenemos:

$$\frac{dn}{dt} = W_e n_0 - \frac{n}{\tau_1} - \sum_m n_1 n_m \sigma(\lambda) c/\eta + \sum_m n_0 n_m \sigma_a(\lambda) c/\eta \quad \text{II - 6}$$

$$\frac{dn_{T_1}}{dt} = K_{ST} n_1 - n_{T_1}/\tau_{T_1} - \sum_m n_{T_1} n_m \sigma_{T_1}(\lambda) c/\eta + n_{T_2}/\tau_{T_2} \quad \text{II - 7}$$

$$\frac{dn_{T_2}}{dt} = \sum_m n_{T_1} n_m \sigma_T(\lambda) c/\eta - n_{T_2}/\tau_{T_2} \quad \text{II - 8}$$

$$n = n_0 + n_1 + n_{T_1} + n_{T_2} \quad \text{II - 9}$$

En (II-6), el primer término es la excitación óptica, el segundo la desactivación debido a la emisión espontánea, conversión interna entre S_1 y S_0 e interconexión de sistemas, el tercero es el decaimiento por emisión estimulada causada por los fotones en todos los modos de la cavidad y, finalmente, la absorción de la

radiación que repuebla el nivel superior.

En II-7-8 τ_{T_1} es el tiempo de decaimiento del triplete inferior metaestable y τ_{T_2} el tiempo de decaimiento del triplete excitado. La ecuación II-9 establece la conservación de las moléculas, donde n es el número total de moléculas por unidad de volumen.

El valor de τ_m es II-5 tomado como

$$\tau_m = - 2L (1 + F (\eta - 1)) / c \ln (t_1^2 t_2^2 T^2 R_1 R_2) \quad \text{II - 10}$$

donde L es la longitud de la cavidad, t_1 y t_2 las transmisiones de las ventanas de la celda del colorante y R_1 y R_2 las reflectividades de los espejos. T representa la transmisión de algún elemento de sintonía colocado en la cavidad, por ejemplo un etalon Fabry-Perot.

Además se ha supuesto que las densidades de población son uniformes; Rigrod (28) demostró que en el caso de transiciones láser homogéneas, es decir, en la cual la forma de la línea espectral no cambia durante la saturación de la ganancia y utilizando espejos con reflectividades mayores de 50%, las densidades varían dentro de un 6% y los errores en los cálculos son despreciables.

El tratamiento anterior fue derivado para su utilización con excitaciones de lámparas de flash, con duración de pulsos del orden de los microsegundos. Si bien en un tratamiento de estado estacionario podrían suponerse nulas las derivadas temporales de las poblaciones dado que todas las relajaciones son rápidas respecto a las variaciones de la excitación W_e y las poblaciones están en equilibrio dinámico de-

pendientes del valor de W_e , esto no es válido para la población de fotones en cada modo.

Tampoco se han considerado inhomogeneidades espaciales debido a la naturaleza de onda estacionaria, reduciéndose el problema numérico.

Los resultados muestran un corrimiento en el pico de la emisión láser en el tiempo dirigido hacia longitudes de onda mayores y presente aún con elementos de sintonía, como un etalon Fabry-Perot. Esto ocurre casi totalmente durante la crecida de la excitación, y la proporción de angostamiento decrece cuando se satura la transición láser.

En vez de considerar n_m o sea la densidad de fotones en cada modo, es posible transformar las ecuaciones II-5 a 9 expresándolas en términos de $I(\nu)$, densidad espectral del flujo de fotones y trabajando continuamente en intervalos mucho mayores que la distancia entre dos modos consecutivos.

Además es necesario realizar una corrección en el término de emisión espontánea (que es emitida en forma isotrópica), dado que en su derivación se ha considerado la radiación en el ángulo sólido 4π . Como sólo nos interesa la que se produce dentro del haz sostenido por la cavidad, multiplicamos el término por $\Delta\Omega/4\pi$, siendo $\Delta\Omega$ el ángulo sólido efectivo.

De esta manera obtenemos, despreciando los tripletes y la absorción de S_1 .

$$\frac{dI(\nu)}{dt} = I(\nu) \left\{ (\sigma_e n_1 - \sigma_a n_0) \frac{cF}{\eta} - \frac{1}{\tau(\nu)} \right\} + \frac{\Delta\Omega}{4\eta} \frac{8\eta F \nu^2}{c} \sigma_e n_1 \quad \text{II - 11}$$

Reemplazando $1/\tau(\nu)$ por $\frac{\alpha(\nu)}{T}$, donde $T = \frac{2L}{c}$ es el tiempo de tránsito del fotón en la cavidad tenemos (con $\eta = 1$).

$$\frac{dI(\nu)}{dt} = \frac{I(\nu)}{T} \left\{ 2\ell (\sigma_e n_1 - \sigma_a n_0) - \alpha(\nu) \right\} + \kappa \sigma_e n_1 \quad \text{II - 12}$$

donde $\frac{\Delta\Omega}{\eta} \frac{8\eta F \nu^2}{c}$ y $F = \frac{\ell}{L}$, dado que en la mayoría de los casos (incluso en el que consideraremos en el Capítulo IV) no se considera la divergencia del haz.

Similarmente para n_1 y n_0 :

$$\frac{dn_1}{dt} = \left\{ W_e + \int \sigma_a(\nu) I(\nu) d\nu \right\} n_0 - \left\{ \frac{1}{\tau_1} + \int \sigma_e(\nu) I(\nu) d\nu \right\} n_1 \quad \text{II - 13}$$

$$n = n_0 + n_1 \quad \text{II - 14}$$

En las próximas secciones centraremos nuestra atención en la excitación de colorantes mediante un láser de Xe cuyo pulso tiene un ancho temporal del orden de los 100 ns. En este caso, la influencia de los tripletes es escasa y se justifica su anulación. La actuación de la absorción del nivel excitado, como ya lo hemos expresado, podrá ser importante si lo es la población de S_1 . Como éste no es el caso, al estudiar el comportamiento del sistema cerca del umbral, tampoco lo consideraremos.

La ganancia molecular está dada por:

$$\gamma(\nu) = \sigma_e(\nu) n_1 - \sigma_a(\nu) n_0 \quad \text{II - 15}$$

mientras que el término de pérdida, en la forma más general (incluyendo dos etalones Fabry-Perot), es:

$$\alpha(\nu) = - \ln (R_1 R_2 T_1^2(\nu) T_2^2(\nu)) \quad \text{II - 16}$$

donde T_1 y T_2 son transmisiones de los elementos de sintonía. A su vez, la salida desde el oscilador depende de la energía dentro de la cavidad y de la transmisión del espejo de salida. La densidad espectral del flujo de salida está dada por (en el caso en que $R_1 = 1$ (ref.17)):

$$- \frac{I(\nu)}{2} \ln R_2 \quad \text{II - 17}$$

y la energía total de salida (donde S es la sección del haz)

$$E = - \frac{S}{2} \ln R_2 \int_0^\infty d\nu \int_0^\infty I(\nu) dt \quad \text{II - 18}$$

Dado que en realidad, lo expresado en el tratamiento anterior es equivalente a promediar $I(\nu)$ y N_1 a lo largo de la cavidad, este será válido mientras $\Delta I(\nu, t) \ll I(\nu, t)$ donde $I(\nu, t)$ donde $\Delta I(\nu, t)$ es la variación de la densidad espectral en un pasaje.

Teschke y otros analizaron el caso de excitación continua y pulsada realizada en forma longitudinal con la emisión sintonizada. El campo en la cavidad es supuesto que consiste de dos ondas que viajan en direcciones opuestas de manera que $I = I^+ + I^-$ es la intensidad total.

Son derivadas expresiones en condiciones estacionarias para la ganancia y la transmisión T_0 bajo condición de emisión láser, suponiendo ésta saturada. La intensidad de la salida está dada en la forma

$$I_s = \beta (I_p - I_u) \quad \text{II - 19}$$

donde β es la pendiente de la eficiencia y I_u el umbral de excitación.

La teoría muestra que la absorción del colorante es distinta respecto a la absorción de pequeña señal. Una fuerte excitación aumenta la transmisión debido al blanqueo del colorante, pero la acción láser lo reduce al retomar las moléculas al estado fundamental. También

muestra que para excitaciones grandes y espejos de acople con grandes pérdidas, la población de S_1 es grande y la absorción del estado excitado tiene un efecto significativo. Esto produce un aumento en la absorción al reducir la transmisión de la excitación. Sin embargo, esto no se traduce en ganancia sino en una rápida circulación de las moléculas de colorante entre S_1 y S_2 . Para cavidades con bajas pérdidas, la población es menor y el efecto puede ser despreciable.

Otro dato de interés, es que, en primera aproximación (despreciando σ_a^0 y σ_a^1), la ganancia depende de la intensidad absorbida total de la excitación $I_p (1 - T_0)$ donde T_0 es la transmisión (despreciable en muchos casos).

II - 7 Láseres de colorantes excitados con láseres gaseosos pulsados.

Como ya hemos expresado, si bien mediante excitaciones pulsadas es posible obtener altas potencias, la dificultad radica principalmente en que la eficiencia no sea reducida en gran proporción al ser sintonizada la emisión. La introducción de elementos de sintonía constituye una fuente de pérdida, cuyo grado está determinado, en general, por su eficacia como tal. Así, las redes son más eficientes que los prismas pero estos producen menos pérdidas.

Dadas las características de la emisión de los láseres pulsados (particularmente de anchos espectros) se requieren cavidades en general complejas, que buscan la optimización de los dos parámetros principales: eficiencia en la conversión de la energía y logro

de sintonía con emisiones en un rango estrecho de frecuencias, o bien en un sólo modo.

Hänsch (29), en 1972, propuso un sistema eficaz para ser utilizado en espectroscopía de alta resolución. El láser de colorante, que fue excitado con uno de N_2 , produjo una potencia máxima de 1 KW en pulsos de 15 a 100 ns con repeticiones mayores a 100 Hz. La emisión se sintonizó en un ancho de banda menor a 0.4 pm. El láser consistía de una celda (denominada desde entonces celda de Hänsch) consistente en un tubo de Pirex de 12 mm de diámetro y 10 mm de largo con ventanas de cuarzo, con recubrimientos antirreflectantes, colocadas en forma de cuña con un ángulo de 10° para evitar efectos de cavidad. El colorante, que fue hecho circular por la celda, fue excitado transversalmente, enfocando la radiación con una lente cilíndrica en un ancho de 0.15 mm.

Una zona activa cercanamente circular fue lograda graduando la profundidad de la excitación con la concentración. La cavidad estuvo constituida, por un lado, con un espejo plano, mientras que, por el otro, un sistema telescópico expandía el haz sobre una red en montaje Littrow, luego de pasar por un etalon Fabry-Perot. En este caso, la expansión aumenta la resolución de la red, a la vez que evita la concentración de grandes intensidades que podría dañarla.

La emisión correspondió al UV y visible (utilizando distintos colorantes) y fue luego ampliado al IR cercano (30)

Diversas versiones produjeron variaciones respecto de la

anterior, principalmente en el uso de sistemas de expansión por reflexión reduciéndose, por lo tanto, las pérdidas, lográndose en algunos casos operación en régimen de monomodo. König et al (31) lograron en una cavidad plegada con astigmatismo corregido un ancho de 7 pm con una salida de 10 KW (excitado con un láser de N_2 de 500 KW).

El uso de sistemas de expansión con redes de difracción en montaje rasante es adecuado en UV para obtener mayor resolución. Estas cavidades son particularmente utilizadas en excitaciones con láseres de excímeros, obteniéndose emisiones de ancho de banda 1.2 pm sintonizable entre 335 y 345 nm (32). Con este tipo de excitación es también posible la obtención de pulsos con picos de potencia de 2 MW y 20 pm de ancho espectral (33).

Más recientemente, mediante una cavidad inestable anular de baja divergencia, en el que uno de los espejos fue reemplazado por una red que permitió la sintonización, se logró una eficiencia mayor del 30% en anchos de banda de 10 pm, excitando el medio con un láser de N_2 de 500 KW (34).

Diversas cavidades propuestas, permiten también emisión en dos longitudes de onda simultáneamente y aún con operación en un solo modo de cada una de ellas, sintonizables en forma independiente (35). Emisiones simultáneas desde distintos colorantes en una misma solución también es posible (36).

Láseres axiales de N_2 funcionando en IR (37) o de Xe pueden también ser utilizados.

Los antecedentes de excitación de colorantes mediante láse-

res de Xe son mucho más limitados

Hänsh et al (38) (1973) obtienen eficiencias (relación entre la potencia de salida respecto de la excitación) mayores a 25% en Rodamina 6G y en Cresyl Violet, utilizando pulsos de 150 W y 450 ns de duración. El medio excitado longitudinalmente se encontraba dentro de una cavidad de tres espejos compensada astigmáticamente (39). El ancho de emisión fue menor a 10 nm.

Con una cavidad similar, pero reemplazando el espejo de salida por una red de 1200 líneas/mm en montaje Littrow, Scheerer (40), obtuvo sintonía en Rodamina 6G (10^{-3} M en etanol) entre 546,5 y 630 nm con un ancho de banda menor a 0.025 nm con un pico máximo de 50 W. Un sistema telescópico fue utilizado dentro de la cavidad para aumentar la eficiencia de la red. Sin este, el ancho de emisión fue de 0.2 nm con un pico máximo de 100 W.

En 1976 Levenson y Eesley (41) lograron operación en un solo modo con un pico de potencia de 2 KW. Una celda tipo Hänsh es excitada transversalmente con pulsos de 20 KW y 160 ns de duración. El sistema de sintonía es similar al anterior, salvo que la red funciona en el 5º orden y se le suma un etalon Fabry-Perot. Nuevamente es utilizada una solución de Rodamina 6G (0.125 gr/lit en etanol). Dado que la oscilación en un sólo modo es lograda cerca del umbral, le fue sumada una etapa amplificadora. Este láser fue luego utilizado para un estudio de absorción de dos fotones sin ensanchamiento Doppler en potasio atómico.

Ese mismo año Teschke y otros (13) utilizaron un láser de Xe de 40 KW para comprobar su teoría

Dado que es posible lograr emisión UV en Xe (42) de similitudes características a la visible, la excitación de colorantes en esa zona amplía el rango de operación de este láser (43).

La escasa influencia de los elementos de sintonía utilizados en operación continua, en el caso de excitación longitudinal pulsada (realizada con un láser de Xe) también ha sido puntualizada (44). En la última parte de la sección II - 2 ya nos hemos referido a dos métodos propuestos para solucionar dicho problema.

CAPITULO III

DESARROLLO EXPERIMENTAL

DESARROLLO EXPERIMENTAL

III - 1 Introducción

En este capítulo se enumeran los instrumentos utilizados en las tareas que serán detalladas en el Capítulo IV.

Comenzaremos por el láser de Xe IV, introduciéndonos con sus antecedentes y, posteriormente, con el esquema experimental utilizado en esta oportunidad y los elementos de mediciones eléctricas empleadas.

Una breve referencia al láser de Argón continuo, es realizada en la Sección III - 3, describiendo en la siguiente las variadas características del láser de colorante (medio activo, cavidad, celda y elementos de sintonía).

Finalmente se mencionan los sistemas de detección y de discriminación de frecuencias empleados.

III - 2 Láser de Xe

III- 2-1 Introducción

A pesar de que el análisis de la radiación del láser de Xe (tres veces ionizado) comenzó hace más de 15 años y que potencias de hasta 80 KW fueron obtenidas, muy poco se ha referido en la literatura sobre su funcionamiento microscópico. El inconveniente básico es el desconocimiento del esquema de niveles de energía entre las cuales ocurre el ciclo láser.

El estudio de la emisión de radiación por el Xe, tanto co-

mo láser o como fuente espectroscópica, desarrollado desde el comienzo del ex Laboratorio de Espectroscopia Óptica y Láser (L.E.O.L.) del Departamento de Física de la Facultad de Ciencias Exactas de la Universidad Nacional de La Plata o actualmente en el CIOp, está encaminado a completar la información existente en este y otros aspectos de dicho átomo. Los resultados obtenidos han sido presentados en varias publicaciones y dieron oportunidad a trabajos de tesis doctoral (45 - 46 - 47)

Los antecedentes del láser de Xe anteriores a 1971 fueron resumidos en la Tesis Doctoral presentada por Eliseo Gallego Lluesma (45). Desde entonces, solamente pocos trabajos fueron dedicados al estudio de los mecanismos responsables de la emisión láser. La mayor parte fue referida a aplicaciones, principalmente la excitación de colorantes, que fueron indicadas en el Capítulo anterior.

Las características de emisión mostradas por el láser de Xe IV pulsado como fuente simple, eficiente y coherente desde el UV a la región visible del espectro, produce un gran interés demostrado en varias publicaciones.

El comportamiento del Xe como láser es, en muchos aspectos, similar a otros láseres iónicos de gases nobles.

Existen aún dudas sobre el número de etapas requeridas en el proceso de excitación electrónica para llegar al nivel superior (Xe IV excitado), siendo mayor de 65 e V la diferencia energética desde el estado fundamental del átomo. Diversos mecanismos son también in-

dicados tanto para la iniciación, como para la terminación del pulso láser.

En la ruptura de la descarga, el campo eléctrico no varía hasta que el aumento de la corriente desencadena los procesos de ionización primarios y secundarios en el cátodo y así, produce su colapso. La extensión de la excitación y de la ionización durante este período está determinado principalmente por el valor de E/p (campo eléctrico sobre presión), que alcanza grandes valores.

El comportamiento del plasma en esas circunstancias es muy complicado. Papayoanou et al (48) realizaron importantes observaciones, hallando que su dinámica puede influenciar la emisión de luz. Análisis realizados con una cámara ultrarrápida ("streak camera") muestran la contracción del plasma (efecto "pinch") en cuyo transcurso ocurre el efecto láser.

Junto con medidas previas de densidad electrónica y un modelo simplificado de la contracción (modelo de Bennett), se determina una temperatura electrónica semejante al caso de los láseres pulsados y CW de Ar II (entre 4 y 9 10^4 K) pero la densidad obtenida (4 a 8 10^{15} cm^{-3}) fue dos órdenes de magnitud mayor. O sea que en este caso, prácticamente todo el gas está ionizado, mientras que en los láseres iónicos ordinarios la ionización es del 1%.

La característica de emisión en el Xe IV durante la contracción permitió a Pappalardo(49) clasificar ciertas líneas observando los espectros de emisión. Las de menor grado de ionización llenan

todo el volumen o aparecen en los bordes del tubo. En cambio, las correspondientes al tercer ión aparecen concentradas en el centro del tubo.

La dependencia de la corriente también muestra aspectos interesantes. Davis y King (50) plantearon, a través de sus observaciones, la posibilidad de que existan dos mecanismos que en distintas situaciones limiten la duración del pulso láser. En descargas rápidas (menores de 5 μ s) y con picos de corrientes elevados (mayores a 500 A) el pulso de luz apareció durante la crecida del de corriente, finalizando antes que éste llegue al máximo. En el caso de descargas más lentas (de 5 a 100 μ s) y con picos menores, el pulso de luz se superpuso al máximo de corriente, finalizando en su caída. En este último caso, ellos propusieron la contribución de dos procesos para el corte de la emisión. Por analogía con el comportamiento de otras transiciones láser en iones, el mecanismo para la acción láser en niveles del (n+1)-ésimo estado de ionización del Xe probablemente involucra impacto electrónico de niveles en el n-ésimo estado de ionización, principalmente su estado fundamental. La limitación del láser puede ocurrir al crecer la población del nivel inferior láser al crecer la excitación o por caída de la población del n-ésimo estado al caer el grado de ionización del plasma. En el primer caso, la limitación está en la actuación del campo eléctrico axial, que aumenta al aumentar la capacidad del circuito de descarga.

Las observaciones mencionadas, también podrían corresponder a dos procesos distintos de excitación, tal como fue indicado por Sasaki et al (51). La similitud con el láser iónico de argón (y otros de gases nobles) queda también aquí comprobado. Ellos reportan la emisión de dos pulsos de distintas características que aparecen simultáneamente en una descarga de 100 ns de largo de tipo escalón con una corriente de 300 A. El primer pulso cuya duración es menor de 5 ns es hallado que depende de I^2 , mientras que el segundo, que aparece luego de un tiempo muerto ($\sim 10 \mu s$, dependiendo de la presión) sigue luego a la corriente en su caída y es proporcional a I^{6-7} indicando que es un proceso de excitación de varias etapas. En el tipo de descarga rápida generalmente utilizado, el segundo pulso no tiene oportunidad de aparecer. Ellos concluyen que el primer pulso es por excitación en una etapa, mientras que el segundo necesita tres o cuatro.

La obtención de potencia de radiación es en general, realizada descargando grandes capacitores (mayor a 300 nF) a través de circuitos rápidos y no siempre con tensiones mayores a 10 KV.

Gundersen y Harper (52) obtienen 80 KW descargando dos condensadores de 350 nF mediante una válvula Tiratrón trabajando con tensiones entre 15 y 25 KV. La corriente alcanza un máximo de 4.000 A en $1.5 \mu s$ mientras el pulso de luz aparece cerca del pico del pulso de corriente. El tubo es de 17 mm. de diámetro y tres electrodos con intervalos de 1.5 m entre ellos.

Marling (41) en cambio, utiliza un capacitor de 30 nF cargado a 25 KV y obtiene 6.5 KW en el visible y 1.5 KW en 231.5 nm. Utiliza un tubo de 7 mm de diámetro y 1.2 mts. de longitud de descarga.

La dependencia de la presión con el diámetro del tubo fue estudiada también por Papayoanau (48). Considerando su propio trabajo y anteriores referencias obtuvo:

$$P_{\text{opt}} = P_0 - C (D - D_0) \quad \text{para } 2.5. \text{ mm} < D < 12.5 \text{ mm} \quad \text{con}$$

$$C = \frac{\Delta P}{\Delta D} = 0.6 \text{ mtorr/mm} \quad D_0 = 2.3 \text{ mm} \quad \text{y } p_0 = 22 \text{ torr,}$$

donde p_{opt} es la presión donde se observa el máximo de la emisión en todas las líneas. Es de hacer notar que, en general, la potencia aumenta con el diámetro del tubo. Las razones para que ello ocurra pueden estar relacionadas a varios aspectos, por ejemplo, una mejora en las condiciones de excitación o una disminución de atrapamiento de iones en las paredes del tubo.

III-2-2- Montaje experimental

El dispositivo utilizado en nuestros experimentos se observan en la fig. 5. Consistió de un tubo de descarga axial con electrodos "fríos" de tungsteno recubierto con indio (53), lo que permite operar con altas corrientes sin que se desgasten y sin introducir sustancias contaminantes, lo que es de mucha importancia en este tipo de láseres, ya que gracias a ello aumenta la salida en un orden de magnitud. Fue terminado en ventanas de cuarzo colocadas en ángulo de Brewster para obtener un haz polarizado y evitar pér-

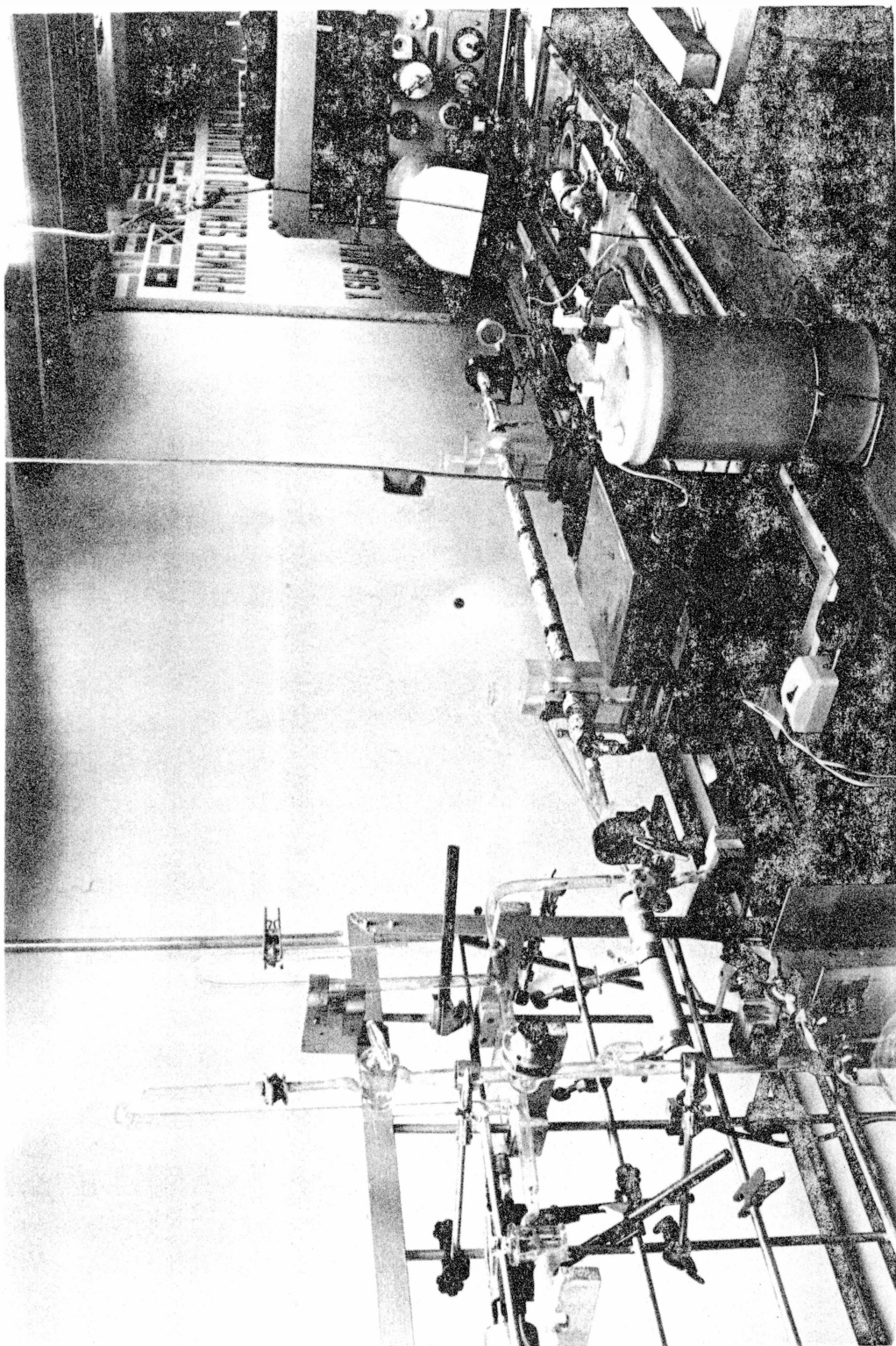


FIGURA 5

didadas por reflexión en las ventanas. Una camisa metálica conectada al electrodo de tierra provee un retorno coaxial a la corriente, reduciendo la inductancia del circuito. Una camisa de vidrio brinda la posibilidad de refrigerar el tubo, requerimiento indispensable en operación a altas repeticiones (fig. 6 y 7).

El tubo fue evacuado utilizando un sistema de vacío de tipo convencional que consta de una bomba mecánica de dos etapas con un caudal de 150 lit/min. una difusora de aceite y una trampa de aire líquido. Este equipo provee presiones de hasta 10^{-6} torr.

Un balón de Xe espectroscópicamente puro (99.99 % de pureza en volumen) se halla ubicado en el equipo de vacío entre la trampa y el tubo separados por llaves que posibilitan dosificar su carga. La presión de trabajo fue variada de 15 a 30 mtorr., funcionando en el límite inferior prácticamente a la presión de equilibrio del Xe sólido atrapado en la trampa de aire líquido. La presión del sistema se midió utilizando un medidor "Speedivac" modelo 2 A de Edwards High Vacuum Ltd. con cabezas calibradas Pirani (10^{-2} torr) y Penning (10^{-5} torr).

Fueron empleados principalmente espejos fabricados con recubrimientos de multicapas de dieléctricos. Uno de ellos posee un máximo de reflectividad en la zona de 4750-5500 Å de 99.8%. El otro utilizado de espejo de acople, tiene un 20% de transmisión promedio en dicha zona.

El radio de curvatura es de 1.50 mts. y fueron ubicados for-

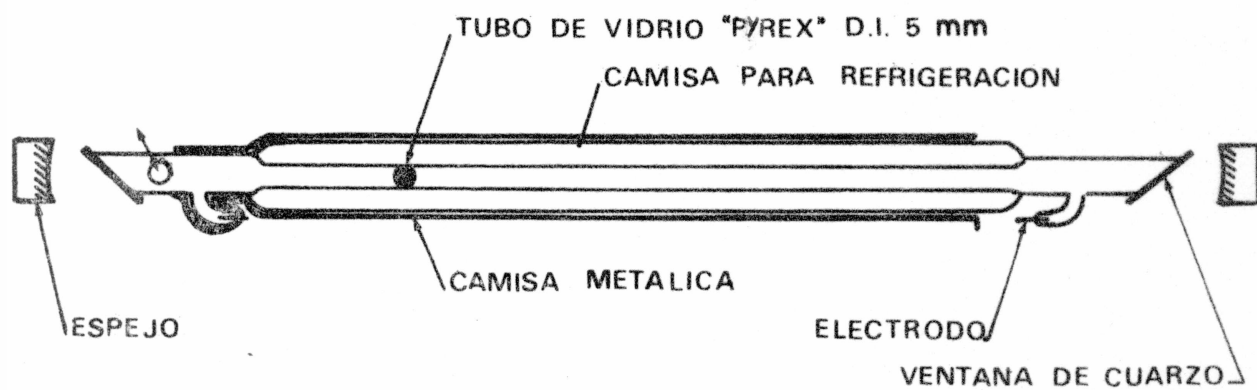


FIGURA 6

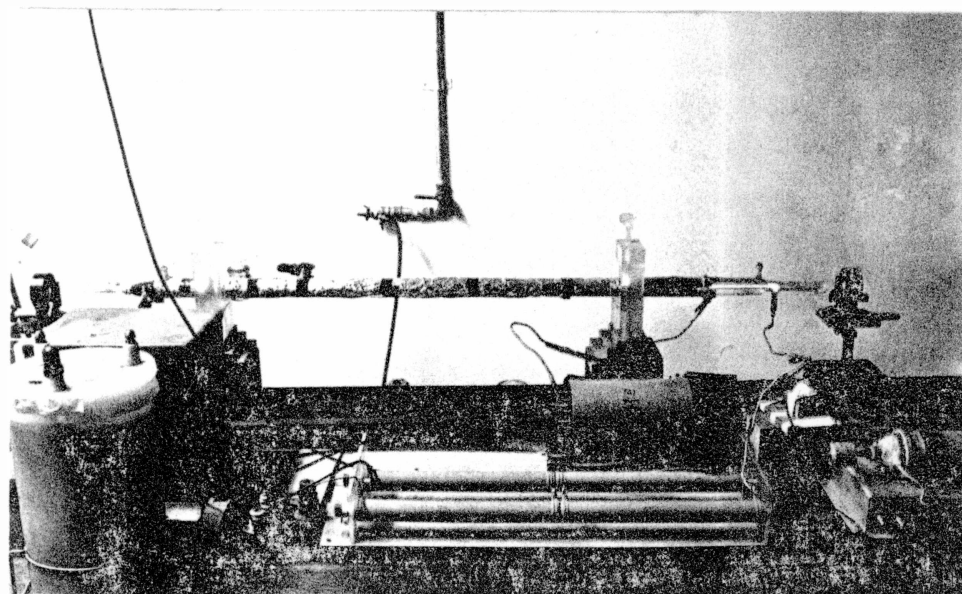


FIGURA 7

mando una cavidad cercanamente confocal. Los espejos están colocados en montajes que permiten su alineación mediante tornillos micrométricos. Esta se realiza inicialmente mediante un láser de HeNe comercial.

III-2-3- Circuitos de descarga

Fueron utilizados dos circuitos distintos de descarga que pueden apreciarse en la figura 8.

El circuito 8 a) produce pulsos de corriente de corta duración y elevado valor de pico. Un banco de condensadores C de 10 nF-30 KV es cargado mediante un transformador de 15 KV de valor pico y limitado a una corriente máxima de 50 mA regulado por un variac

Los valores de los parámetros eléctricos utilizados produjeron a la frecuencia de trabajo (50 H_z) un circuito inductivo de carga resonante que permite elevar prácticamente al doble la tensión de carga de los condensadores. El circuito de descarga se cierra mediante el disparo de un pulso de alta tensión y baja corriente (pulso del "trigger"), en la llave utilizada. Este fue un explosor ("spark-gap") de simple construcción y constituido por una esfera de bronce y una bujía (conectada a tierra) tal como se observa en la figura.

En el caso 8b) se transponen las posiciones del condensador (reemplazado por uno de 100 nF-20 KV) y el spark-gap (reem-

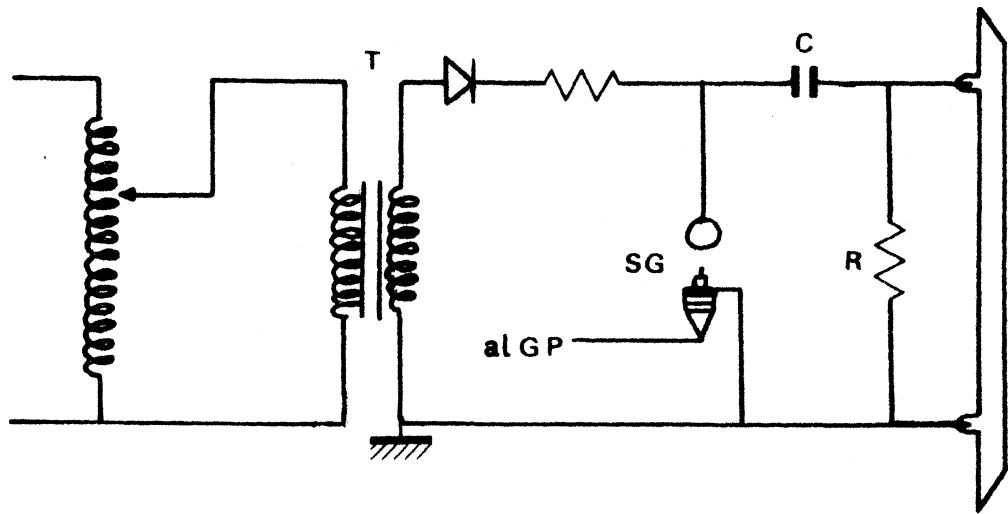


FIGURA 8a

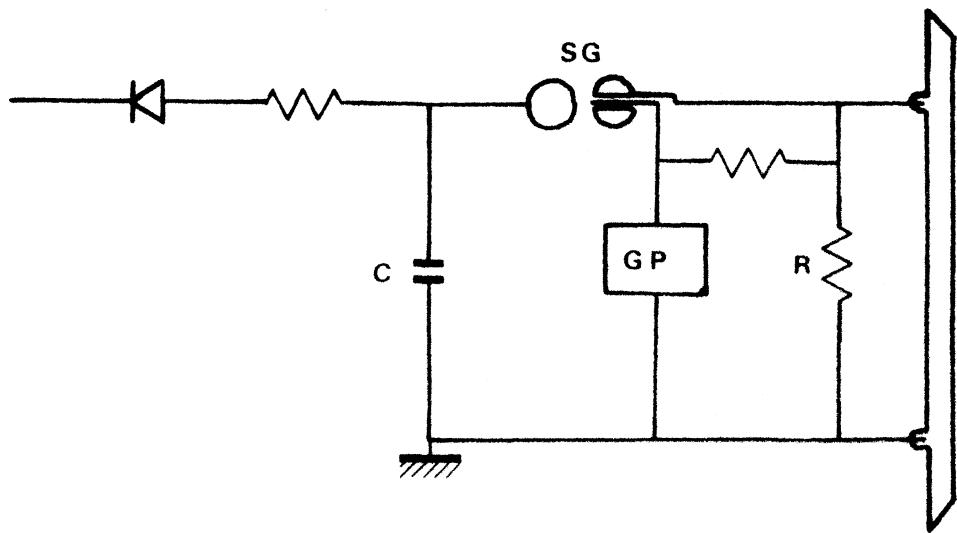


FIGURA 8b

plazado por uno marca EG & G GP-92 de 20 KV de max. La transposición en si no tiene influencia en la descarga principal, pero dado que la descarga del "trigger" va a tierra por el tubo, preioniza al gas reduciendo la tensión umbral de descarga. La carga en este caso se realiza con una fuente de corriente continua.

La resistencia en paralelo con el tubo permite en ambos casos el cierre del circuito y la circulación de una corriente muy baja mientras el tubo no conduzca.

III-2-4- Mediciones eléctricas

Para estudiar el comportamiento eléctrico del sistema fueron utilizados los siguientes elementos:

Las medidas de tensión fueron realizadas utilizando una punta resistiva de alta tensión Tektronix P - 6015 - 1000 X de 40 KV de pico y 4 ns de tiempo de crecida (conectado a $1\text{ M}\Omega$)

La corriente en el tubo fue observada utilizando una espira de Rogowsky, auto integrado modelo PIM-220 de baja impedancia y 2 ns de tiempo de crecido, calibrado a 1.1 KA/volt. (conectado a 50Ω).

La visualización fue realizada utilizando un osciloscopio Tektronix modelo 7904 con las siguientes unidades: 7 B 92 A de barrido, 7 A 26 de $1\text{ M}\Omega$ y 200 M H_z de ancho de banda y 7 A 19 de 50Ω y 500 M H_z de ancho de banda. La respuesta máxima es de 500 ps.

III - 3 Laser iónico de argón continuo.

Con el objeto de comparar los resultados obtenidos en operación pulsada con la emisión continua del láser de colorante en el mismo sistema, fue utilizado un láser comercial de argón (Spectra Physics, modelo 165-09) para dicho modo de excitación.

Este láser puede operar en siete líneas simultáneamente (desde 457.9 a 514.5 nm) o sintonizando mediante un prisma en una sola frecuencia. En el primer caso su potencia máxima es de 5 vatios y en el segundo, alrededor de 2 vatios en cada una de sus líneas más potentes 488.0 y 514.5 nm.

El diametro del haz de luz a la salida es de 1.23 mm y su divergencia de 0.78 m rad.

III - 4 Laser de colorante

III-4-1- Características del medio activo

El colorante utilizado en este trabajo fue Rodamina 6G (fig. 2), cuyas soluciones proveen uno de los medios activos más eficientes en este tipo de láseres.

Forma parte del grupo de los Xantenos cuya emisión cubre la región de 500 a 700 nm. Su espectro de fluorescencia forma una imagen especular de las bandas de absorción en sus mayores longitudes de onda.

Usando etilen glicol como solvente, el máximo de absorción ocurre en 530 nm. Si bien no es el óptimo, su viscosidad lo hace apropiada para utilizarlo en una celda sin ventanas, muy importante en el caso de excitación continua como se discutirá lue-

go. Las concentraciones utilizadas fueron $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ y $2 \cdot 10^{-3} \text{ M}$, consideradas óptimas para operación continua bajo la excitación con láser de argón.

III-4-2- Propiedades de la celda y el resonador

La cavidad utilizada en la experiencia es de tipo comercial (Spectra Physics, modelo 375) cuyos criterios de diseño fueron establecidos para excitación continua. En ese modo de operación y dada que las potencias disponibles son muy limitadas, es necesario concentrar la excitación en zonas pequeñas (algunas mm) para poder superar el umbral. Por otro lado, si se desea sintonizar la radiación o usar en aplicaciones de "mode-locking" es esencial que el resonador sea largo. Estos requerimientos se logran utilizando lentes internas o espejos enfocados. Estos últimos poseen menos pérdidas.

En este caso, corresponde al diseño de Kogelnik (39) y es en esencia una cavidad plegada formada por espejos (fig. 9). La geometría utilizada produce astigmatismo en el haz que deterioraría su funcionamiento como resonador. Sin embargo, éste es corregido debido a que la celda del colorante se ubica en ángulo de Brewster. Relacionándolo con el índice de refracción del medio activo y su espesor, es posible hallar el ángulo de doblez que compensa dicho astigmatismo.

El espejo final M_1 y el colimador M_2 son idénticos. Ambos son de 5 cm. de radio de curvatura y su recubrimiento da re-

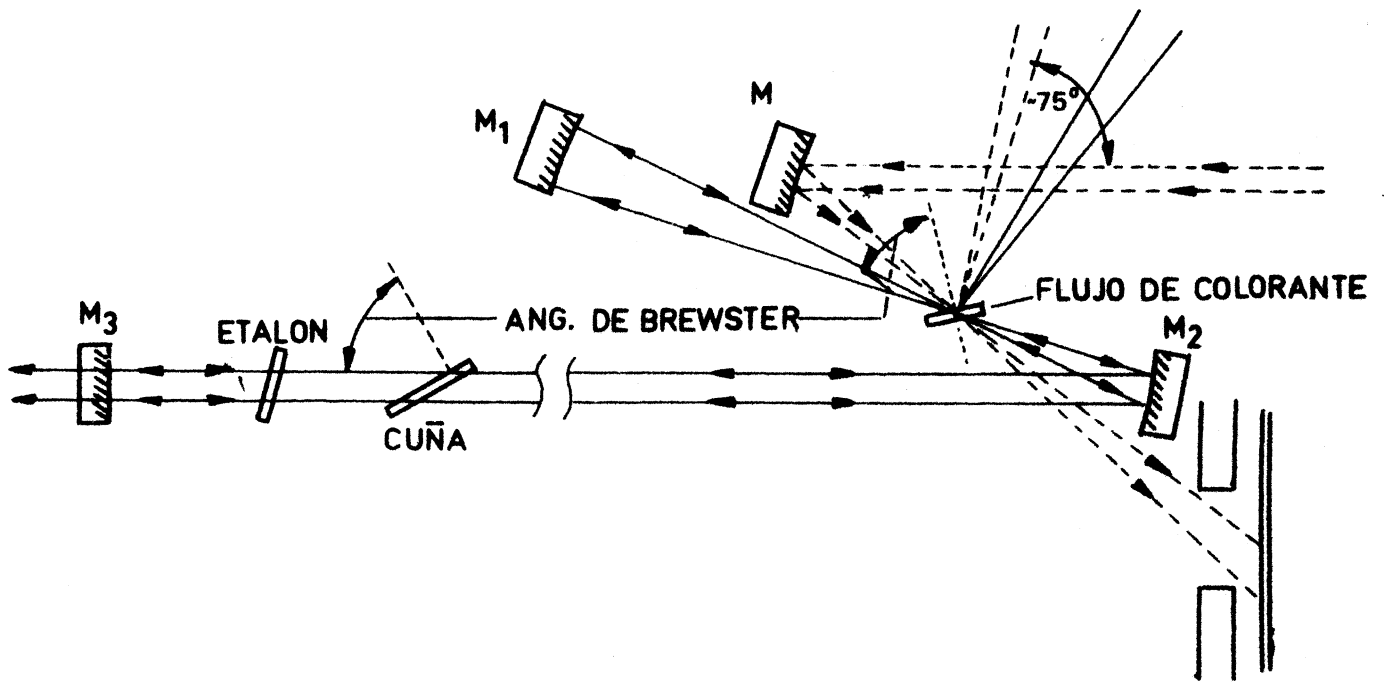


FIGURA 9

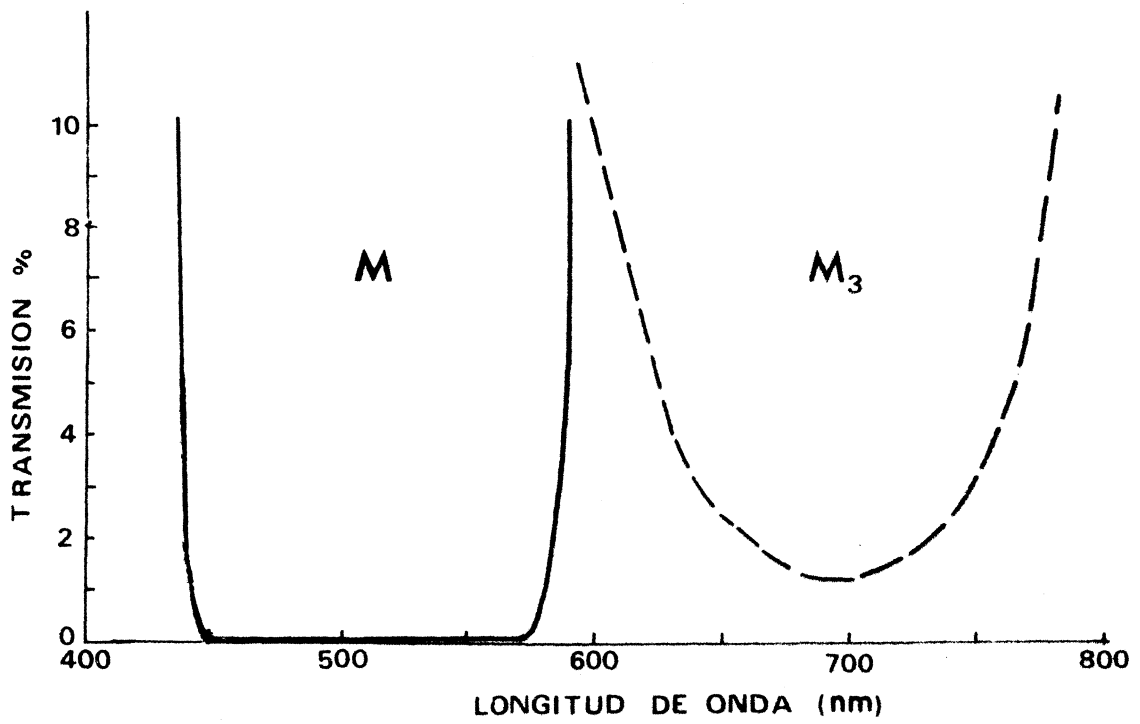


FIGURA 10
DESDE (54)

flexión máxima en la región de 600 nm. El espejo plano de acople M_3 está diseñado para la misma zona. Su transmisión se puede observar en la fig 10. El espejo de entrada de la excitación M posee reflexión máxima para las líneas del láser de argón, es decir para la zona azul-verde, y su radio de curvatura es también 5 cm.

La "celda", que no posee ventanas, está constituida por un flujo laminar que se logra bombeando la solución a través de una tobera. El flujo es luego recogido por una manguera de teflón y enviado al depósito.

Un valor típico del flujo es $15 \text{ cm}^3/\text{seg.}$, dependiendo de la viscosidad. El espesor de la película líquida en la zona de excitación es de aproximadamente $240 \text{ }\mu\text{m}$. El diseño de la celda está dirigido a eliminar problemas térmicos y el posible deterioro de ventanas debido a la intensidad de la radiación en operación continua. También introduce continuamente nuevas moléculas disminuyendo el problema representado por la acción de los tripletes.

La cavidad limita el tamaño del haz en el medio activo (el diámetro del haz en la cintura es $\sim 30 \text{ }\mu\text{m}$), mientras que el radio de curvatura del espejo de entrada R y la divergencia del haz excitador limitan, en primera instancia, la zona irradiada. Si bien las exigencias en el caso de excitación pulsada no son tan estrictas, esta cavidad limita la posibilidad de pérdidas y, además, como hemos expresado en la sección II-4, posee un umbral más bajo que una posible excitación transversal. Esto posibilita un rango más extendido para

el estudio de su comportamiento, además de la posibilidad de comparación de sus resultados con el caso continuo. Por último, nos dá la posibilidad de sumar los dos modos de operación, tal como se discutirá en la sección IV.

III-4-3- Elementos de sintonía

Para sintonizar la radiación y disminuir su ancho espectral fueron utilizados los siguientes elementos:

Una cuña óptica (fig.11), formada con dos recubrimientos de espejo separados por otro recubrimiento de espesor variable en una

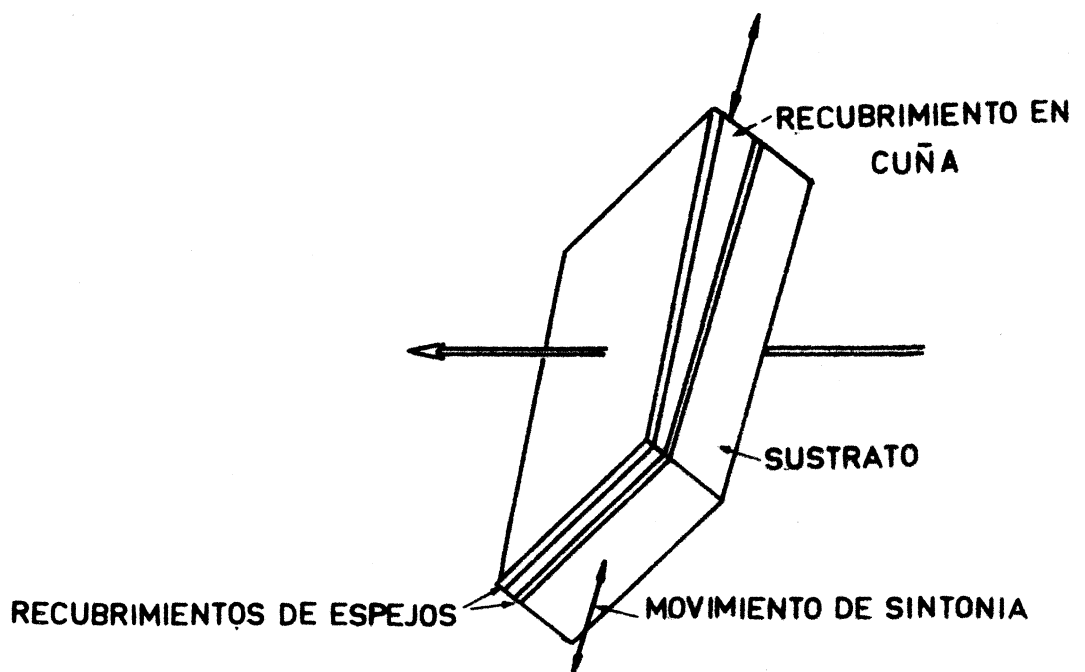


FIGURA 11

dirección y colocadas todas sobre un sustrato. Dado que la variación continua del espesor es muy pequeña, la cuña actúa como un etalón Fabry-Perot sintonizable al trasladarlo en una dirección y de gran rango espectral libre.

Un etalón Fabry-Perot, constituido por una pieza de vidrio sin recubrimientos de 0.11 mm de espesor, actúa como filtro de transmisión, permitiendo operar solo a aquellas frecuencias en que es sintonizado. Esto se realiza rotándolo, de manera que aumente el camino óptico.

III - 5 Medidas de los pulsos luminosos

Las mediciones de potencia tanto del láser de Xe como del de colorante fueron realizados con dos fotodiodos rápidos.

Un detector Hadron TRG-105 C con tiempo de crecida menor de 0.35 ns de superficie S_1 y polarizado con 2000 V. El factor de calibración es de 4.37 KV/MW, utilizando un difusor en la entrada (particular del detector) que atenúa y dispersa el haz sobre su superficie.

El otro fue un Lite Mike Modelo 560B (fotodiodo de silicio EG & G SGD 10) de 5 ns de tiempo de crecida.

Para la medición de señales débiles se usó un fotomultiplicador 931 A de 2 ns de tiempo de crecido y superficie S_4 polarizado a - 1000 V. Para ello fue utilizada una fuente de Pacific Precision Instrument modelo 204 de alta tensión (- 2000 V y

10 mA regulables continuamente.)

La observación fue realizada con el mismo osciloscopio (Tektronix 7904) mencionado en la sección III-1-4.

III - 6 Instrumentos utilizados para el registro de espectros.

Las distintas radiaciones fueron analizadas utilizando un espectrógrafo Shimadzu de montaje Ebert, de 3.4 mts. de distancia focal con una red plana de difracción de 600 líneas/mm de 12 cm por 5 cm de área rayada, con "blaze" en 5000 \AA y "unblaze" en 25.000 \AA . La dispersión en 1er. orden es 4.8 \AA/mm . El ancho de la rendija varió, según la potencia disponible en las fuentes, entre 15 y $100 \mu\text{m}$ (en general, no fue necesaria gran resolución) Los espectros fueron almacenados en películas Ilford FP4 tipo 500 de 125 ASA.

En ciertos casos fue montado un detector a la salida del espectrógrafo (fotodiodo o fotomultiplicador) a fin de obtener una distribución de los picos de emisión de las distintas frecuencias del láser de colorante. Esto fue realizado trabajando a distintos órdenes (según la dispersión requerida) y limitando el detector con una ranura de $200 \mu\text{m}$. No fueron usados espectros de referencia sino que se trabajó con la calibración del espectrógrafo.

También fue utilizado un espectrógrafo de barrido Jarrell Ash de 0.5 mts. de distancia focal, montaje Ebert con una red plana de 295 líneas/mm.

CAPITULO IV
RESULTADOS EXPERIMENTALES

CAPITULO IV

RESULTADOS EXPERIMENTALES

IV - 1 Introducción:

En la primera sección describiremos los resultados obtenidos con el láser de Xe y las conclusiones que, respecto a su funcionamiento, se desprenden de ellas.

Luego, nos introduciremos de lleno en las características del láser de colorante con excitación pulsada y su amplia diferencia respecto a la emisión continua. Posteriormente se describe un método que posibilita obtener las mayores ventajas de ambos tipos de operación. Finalmente, mediante un sencillo modelo es posible reproducir las principales características de los procesos dinámicos que ocurren en el colorante (sección IV - 6).

IV - 2 Características del láser de Xe

El espectro de emisión (fig. 12) fue registrado en el espectrógrafo "Shimadzu" (ver sección III - 6) observándose las líneas indicadas. En el mismo registro es posible observar su comportamiento con relación a la presión. Las tres líneas verdes tienen su máximo en forma simultánea, mientras que la 4954 lo tiene a una presión inferior. El máximo absoluto coexiste con el de esta última, debido principalmente a que los espejos utilizados la favorecen. El rango barrido (en el que existe emisión láser) es de 30 a 15 mtorr (en orden decreciente). La zona de máxima emisión es alrededor de 20 mtorr

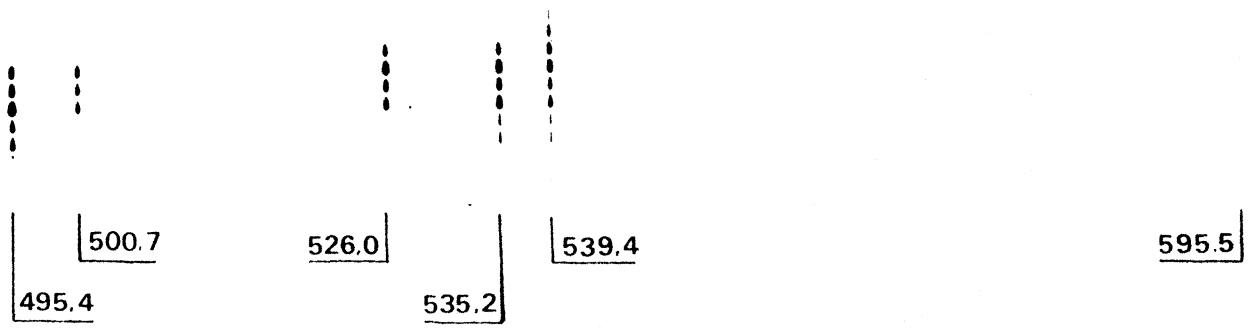


FIGURA 12 (en nm)

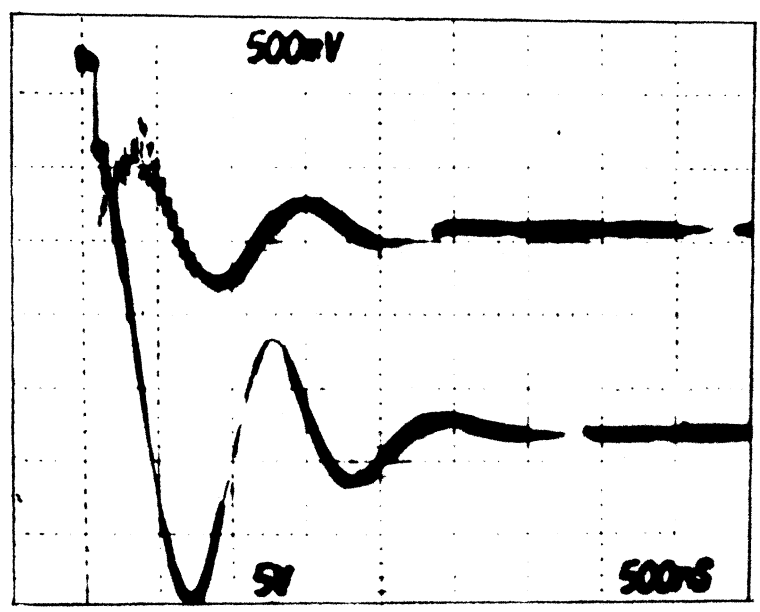


FIGURA 13

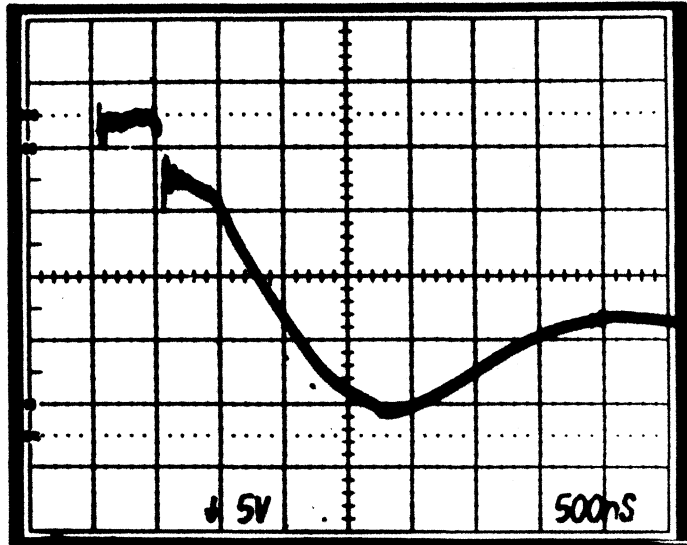


FIGURA 14 a

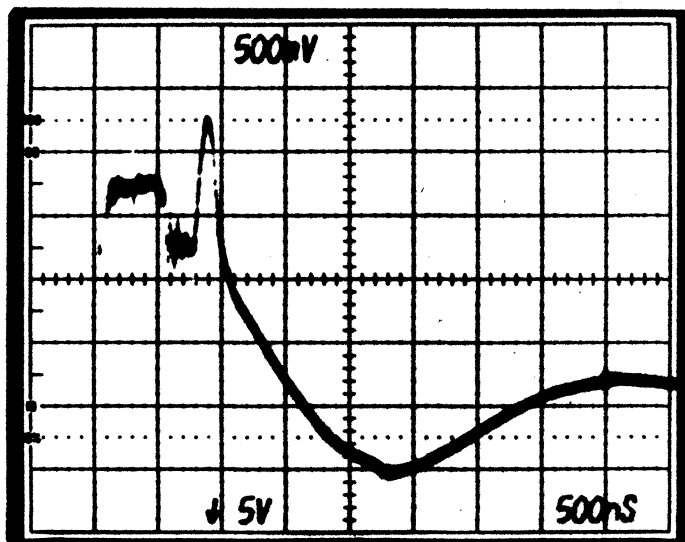


FIGURA 14 b

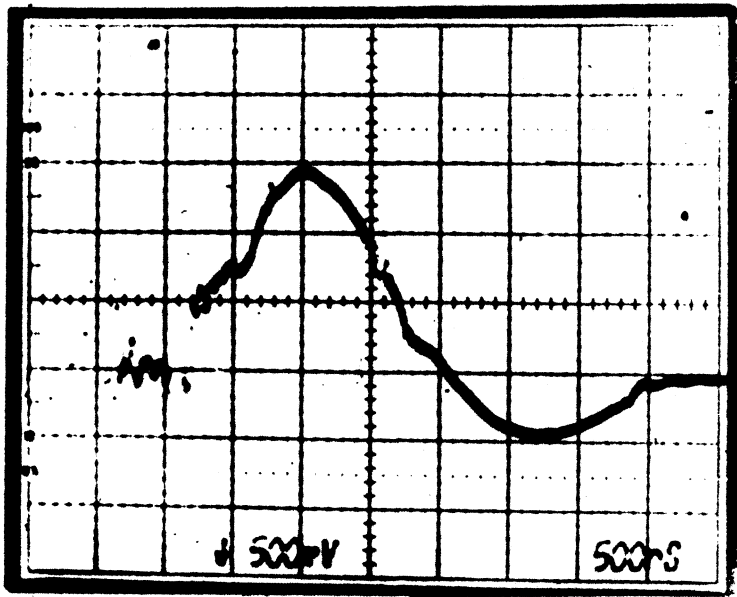


FIGURA 15 a

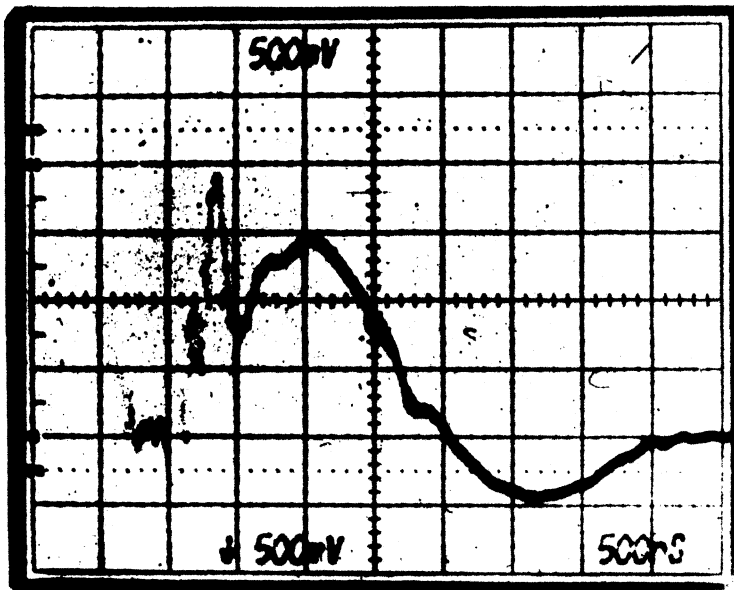


FIGURA 15 b

En las figuras 13, 14 (a y b) y 15 (a y b) se observan los oscilogramas de tensión y corriente obtenidos, en el primer caso con el circuito A (fig. 12) y en los siguientes con el B. En estos últimos puede observarse (utilizando la función suma del osciloscopio) la superposición de dichos oscilogramas con el de emisión. Esto ilustra en gran medida la influencia de dichos parámetros.

En el caso de la tensión, se observa que luego de una abrupta caída, ésta se estabiliza durante un período que, para el caso en que se utilizó el circuito B, dura 400 ns (aquí es utilizado un condensador de 100 nF) cayendo posteriormente. En la mitad final de dicho escalón se observa el pulso láser. El comportamiento a distintos valores de la tensión es similar, manteniéndose la longitud del escalón.

La corriente en este período muestra una rápida crecida, un posterior crecimiento lineal no tan pronunciado y finalmente un desarrollo oscilatorio. La etapa intermedia coincide con la estabilización de la tensión. Se observa que el pulso de luz aparece en ese tramo. Observaciones sistemáticas mostraron una efectiva corriente de corte o "quenching" en 800 A (4100 A/cm^3) comenzando la emisión, en este caso, en 500 A (la corriente fue incrementada aumentando la tensión). Una disminución del máximo a valores inferiores a éstos, produjeron un desplazamiento (y una disminución) hacia el pico de corriente desapareciendo cuando ésta fue menor de 150 A.

El comportamiento del sistema A es similar, salvo que los procesos son más rápidos, transponiendo la etapa semejante a la lu-

miniscente a la semejante al arco, en 100 ns (en este caso el capacitor utilizado es de 10 nF).

Lo expresado anteriormente, concuerda con lo dicho en la primer parte de la sección III-2-1, mostrando que una gran transferencia de energía (con gran E/p) ocurre en zonas cercanas a la ruptura con la creación de electrones muy energéticos.

Sin embargo, varias razones indicarían que la excitación de los niveles superiores de la transición láser, se realiza en un proceso de, al menos, dos etapas (como fue sugerido por Davis y King (50)) y no en una sola colisión como lo sugieren Sasaki et al (51).

En primer lugar, ya hemos mencionado que los cálculos de Papayouanou (48) indicaron una temperatura electrónica semejante al caso del argón. En forma global, la diferencia de energía necesaria para llegar del estado fundamental al nivel superior láser es el doble en el Xe respecto al Ar, por cuyo motivo sería improbable que ocurriese en una sola etapa. Posteriormente, la observación del oscilograma de tensión muestra un retardo de aproximadamente 200 ns para la aparición del pulso luminoso desde el comienzo de la excitación (en el inicio puede observarse la emisión láser de transiciones del Xe neutro en IR). Dado que los procesos de decaimientos en iones son, muy rápidos (sus vidas medias μ s, disminuyen al crecer el grado de ionización), indicarían la posibilidad de que se cree una población iónica inicial (probablemente de Xe III) para posteriormente poder obtener una inversión de población entre los niveles láser. La dependen-

cia con la corriente (I^2) indicada en la referencia 51, así también lo indicaría.

La dependencia de la potencia con la tensión de carga del condensador (para el circuito B) indicado en la Fig. 16 a nos muestra un umbral bajo ($\sim 3\text{KV}$) en relación al de 12 KV obtenido para el circuito A. En 9 KV hay un cambio de pendiente que indica la saturación de la emisión con relación a la tensión. El comportamiento de las dos líneas mas fuertes es similar (fig 16 b), siendo la azul (495.4 nm) alrededor de dos veces más potente que la verde (535.3nm)

Las observaciones realizadas muestran que la duración del pulso está limitada en primera instancia por la duración del escalón de tensión, manteniendo inalterable su forma (Fig. 17), salvo en los límites de alta presión o baja tensión, donde es posible observar dos picos apenas desplazados, correspondiendo a distintas transiciones.

Por último, cabe mencionar que la máxima potencia alcanzada fue de 2 KW en pulsos de 80 ns de duración, con el sistema A (a 22 KV) Con el sistema B (a 15 KV) el máximo alcanzado fue de 800 W en 160 ns de ancho considerado en la mitad de su altura.

La divergencia total de la radiación (medida con tomas fotográficas a varias distancias fue de 1.5 m rad y el diámetro a la salida de 5 mm, observándose la mancha en la Fig. 18.

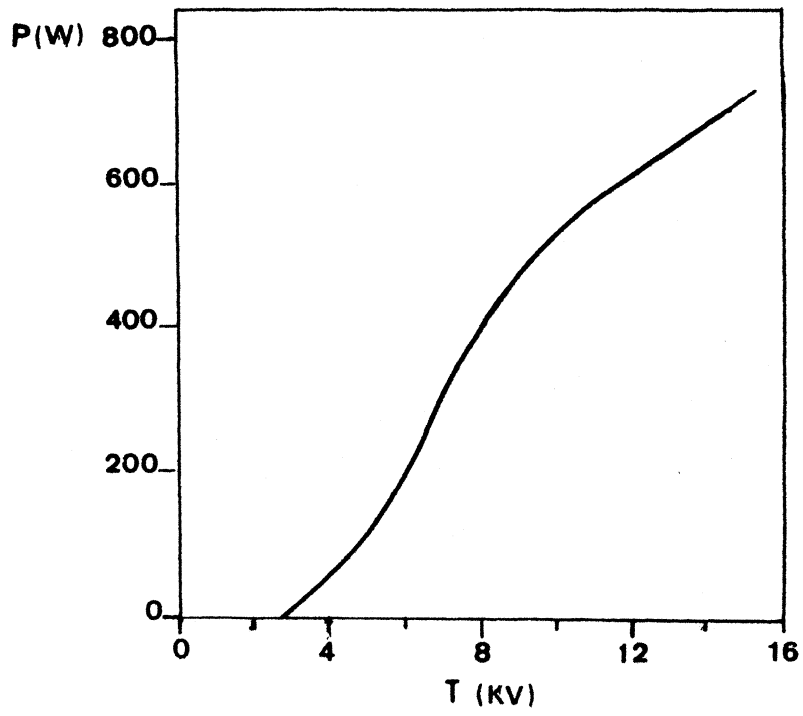


FIGURA 16 a

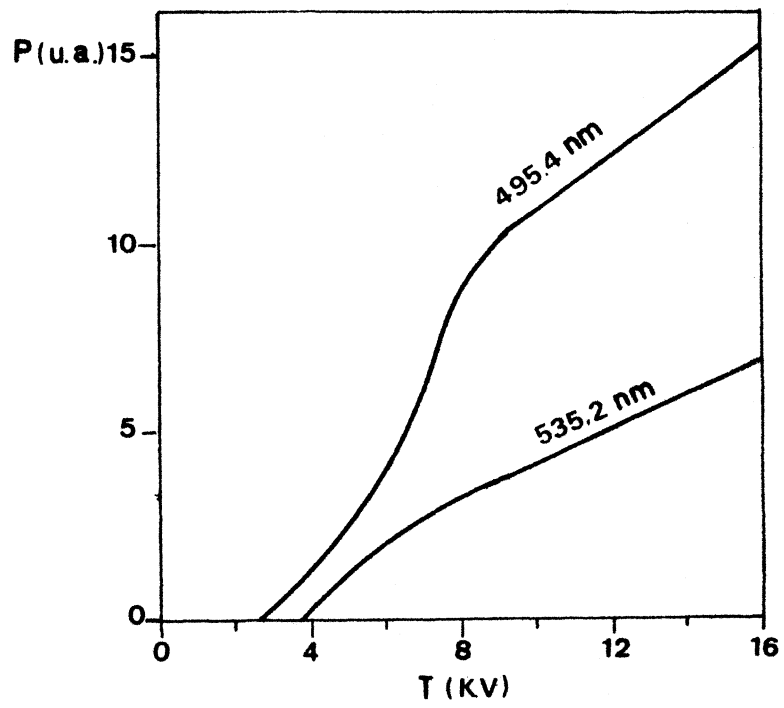


FIGURA 16 b

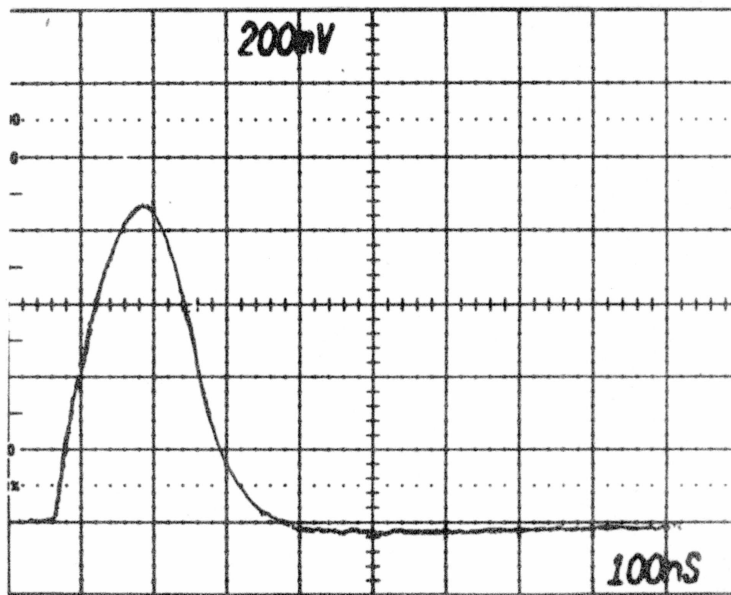


FIGURA 17

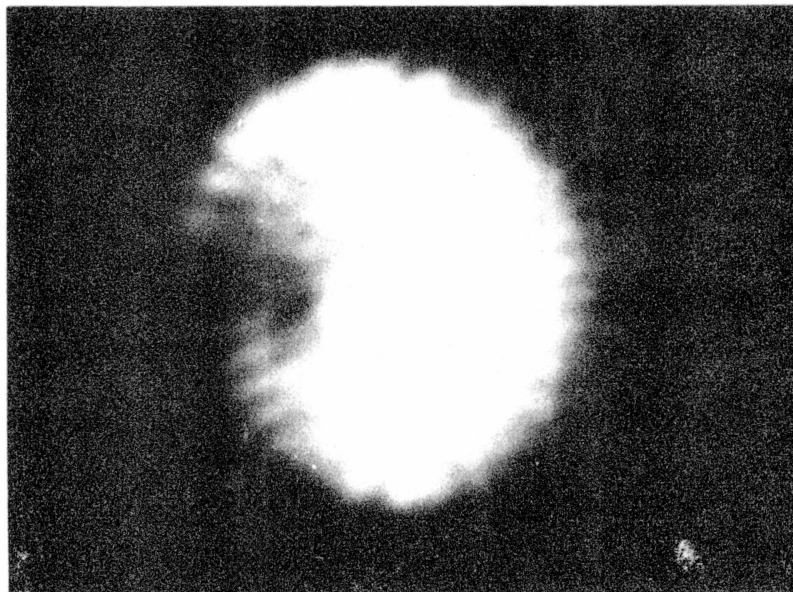


FIGURA 18

IV - 3 Emisión del láser de colorante

Utilizando un láser de Xe IV cuyas características fueran descritas en la sección anterior, fué excitada una solución de Rodamina 6G ($2 \cdot 10^{-3}$ m) según el esquema de la fig. 9. La emisión láser fué obtenida luego de una alineación perfecta de la cavidad. La divergencia del haz (medida en idéntica forma a la del Xe) fué de 2 mrad mientras que el diámetro de la mancha (fig. 19) a la salida fue de 0.5 mm.

En las siguientes subsecciones se enumeran las características más salientes de la radiación emitida por el colorante.

IV-3-1- Respuesta temporal

La figura 20 muestra la forma del pulso obtenido observándose una perfecta similitud con el de excitación (fig.17). Esto indica que la emisión está saturada desde el umbral (concuerta con II-19) El ancho del pulso es similar al de excitación, salvo cuando la excitación es pequeña y el láser opera cerca del umbral. En ese caso, la reproducción es de un pulso de excitación "recortado" a cierta altura, que tiene por lo tanto un ancho temporal menor (siempre medido a su altura media).

IV-3-2- Eficiencia

Mediante el empleo de los dos fotodiodos, el osciloscopio y filtros de mallas metálicas (que atenuan en un 50%) fué obtenida una

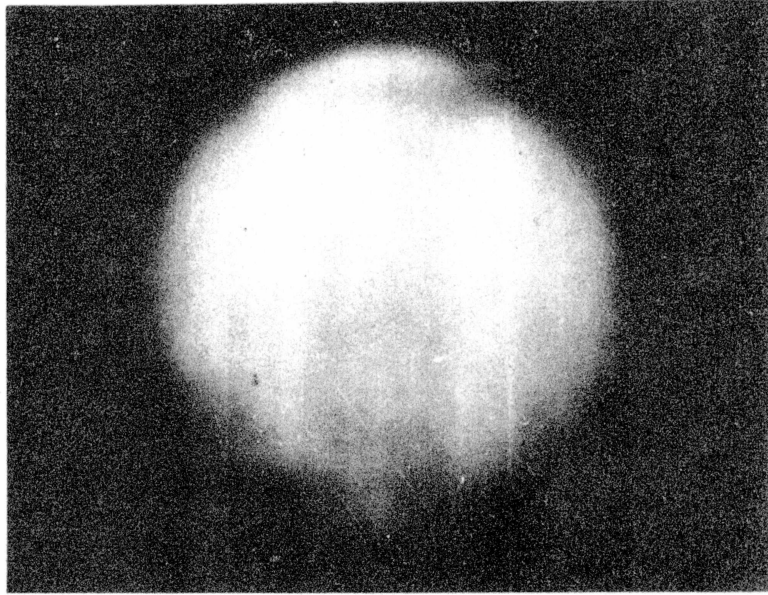


FIGURA 19

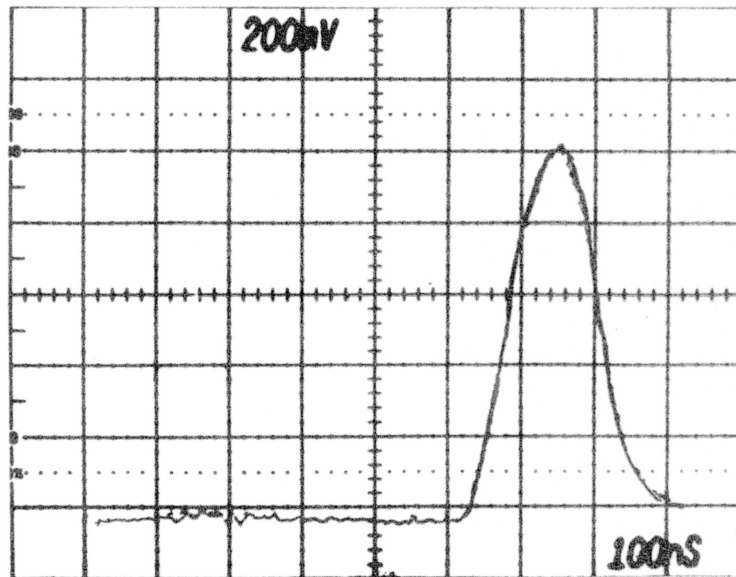


FIGURA 20

relación entre la potencia de entrada y la de salida en el caso de emisión sin sintonía.

El gráfico de la fig. 21 muestra una recta, que, como hemos expresado en IV-2-1, es característica de una emisión saturada en este caso con relación a la excitación y desde el umbral. La pendiente $\beta = 0.44$, mientras que la potencia necesaria para llegar al umbral es 3 W.

IV-3-3 Espectro de emisión de banda ancha

La radiación fue analizada con los espectrógrafos mencionados en III-5, obteniéndose un registro fotográfico y una distribución de los picos de intensidades en función de la longitud de onda (Fig. 22). La variación de dicha distribución dentro del rango de excitación utilizado fue mínima. Es posible observar el extenso intervalo de emisión y la semejanza con el espectro de fluorescencia, denotando una gran influencia de la emisión espontánea.

IV-3-4 Espectro de la emisión sintonizada.

En forma similar al párrafo anterior, fueron obtenidos registros fotográficos de la emisión sintonizada en distintas frecuencias (cambiando la posición de la cuña) obteniéndose también el rango de sintonía y sus valores máximos relativos (fig.23). El valor en el máximo absoluto es un 90% de la potencia del láser sin sintonizar.

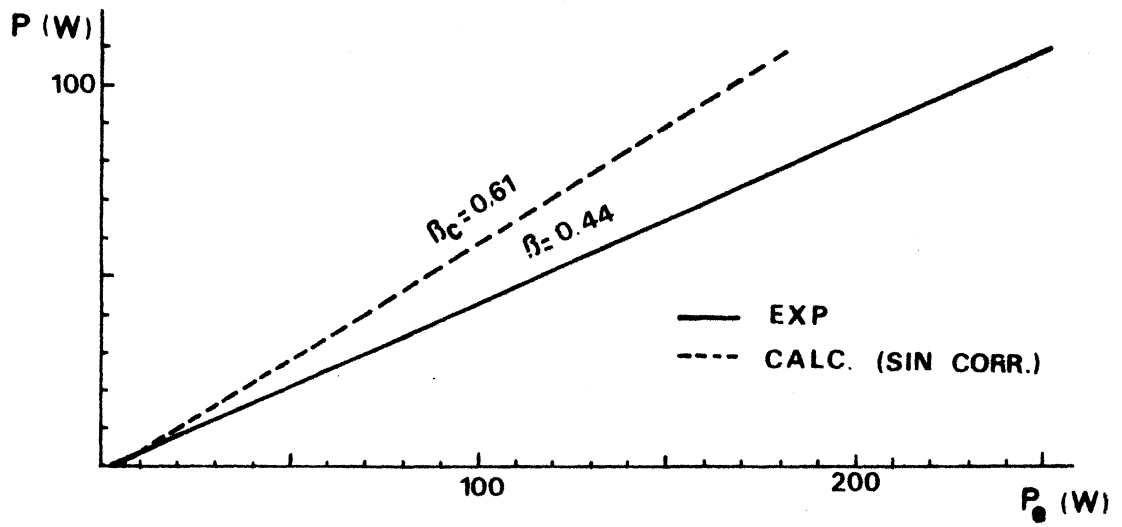


FIGURA 21

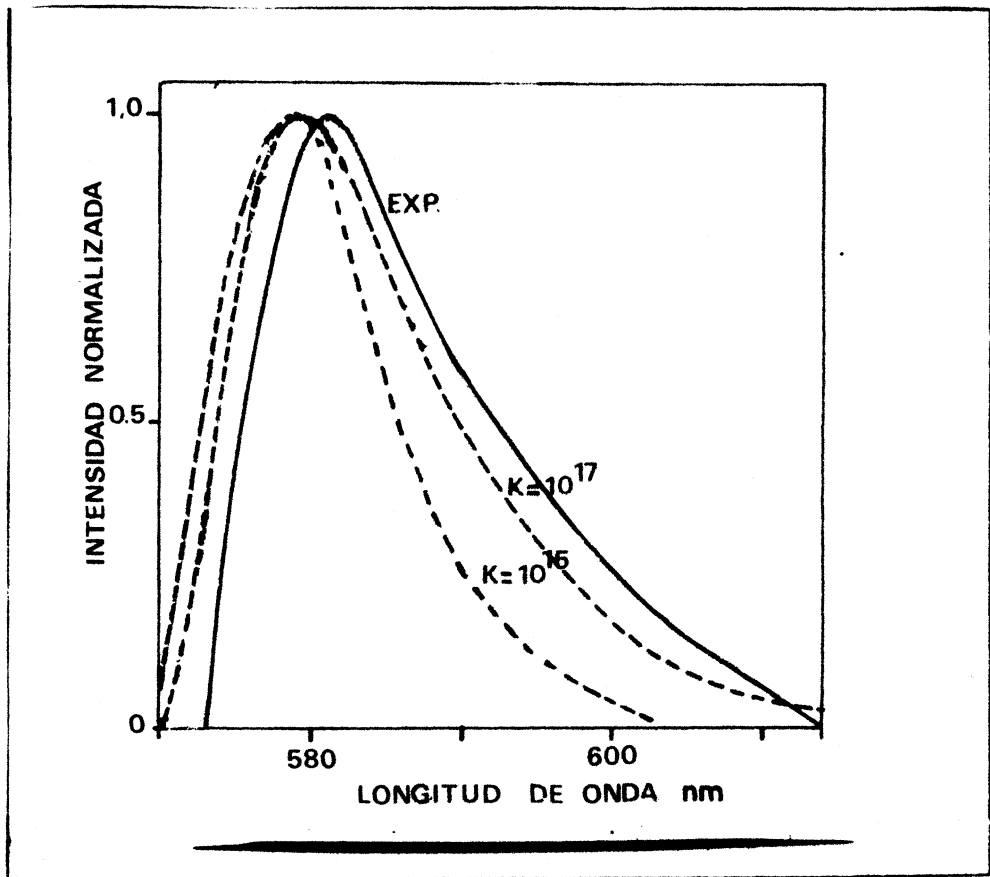


FIGURA 22

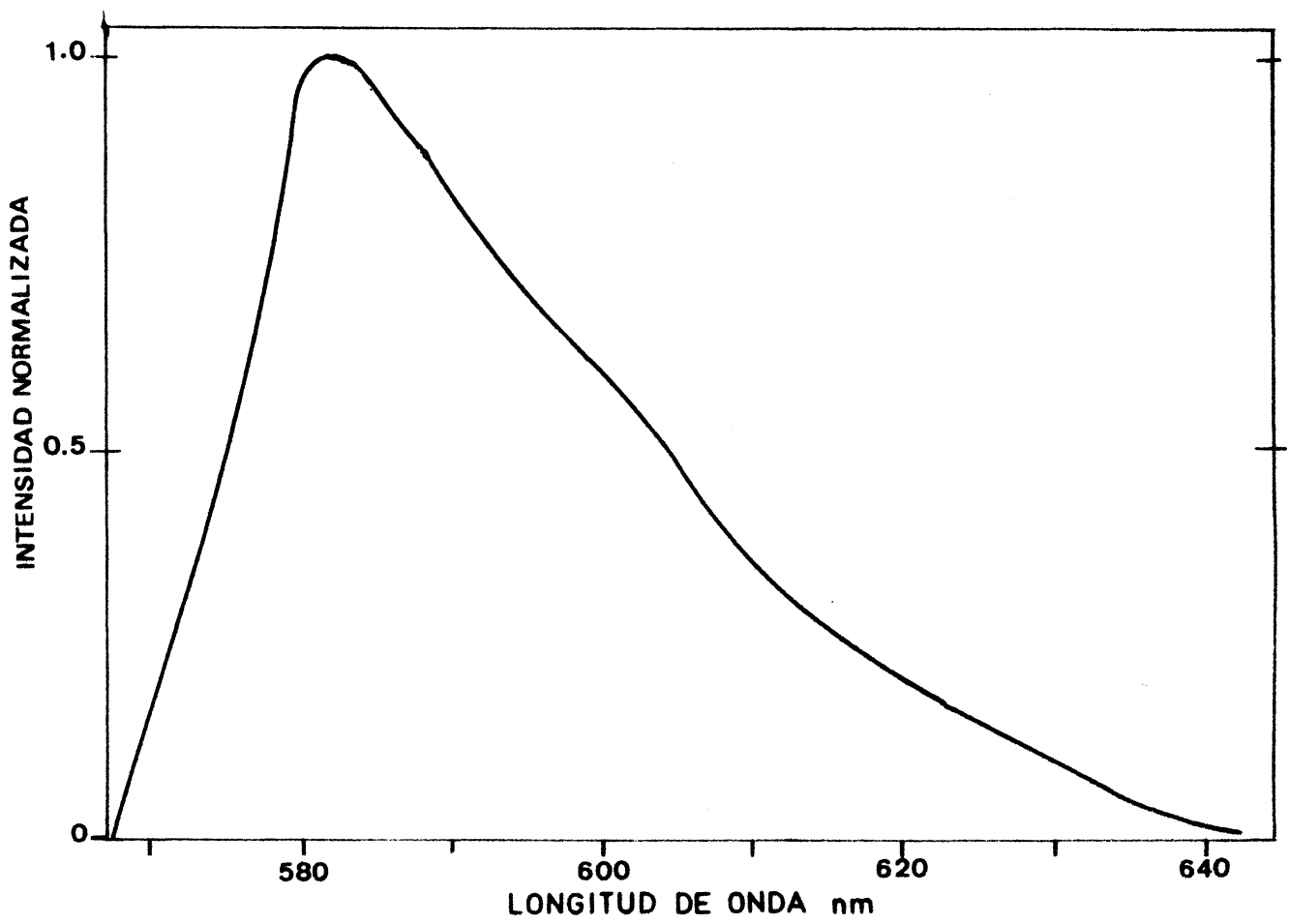


FIGURA 23

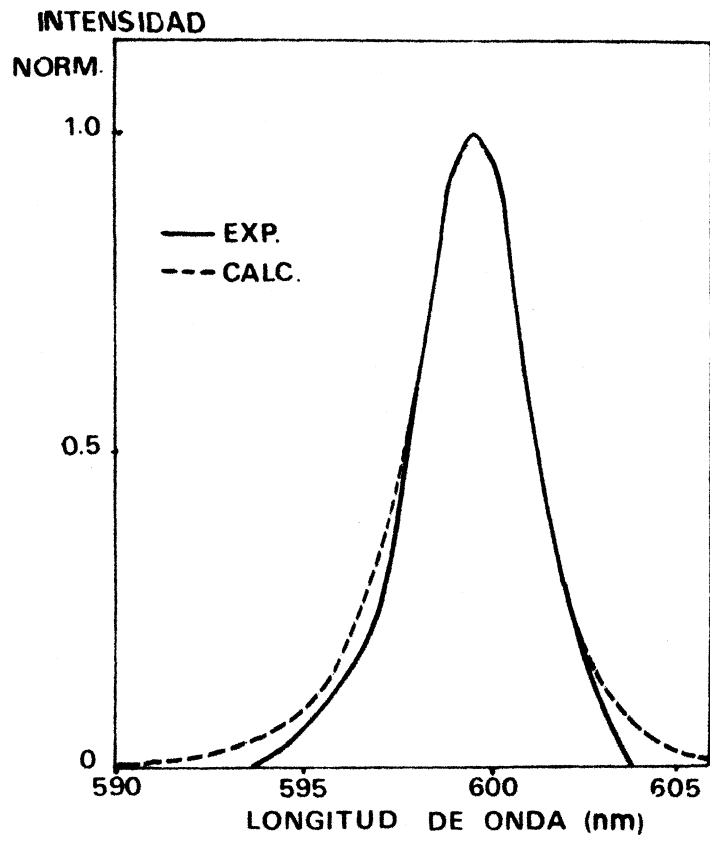


FIGURA 24

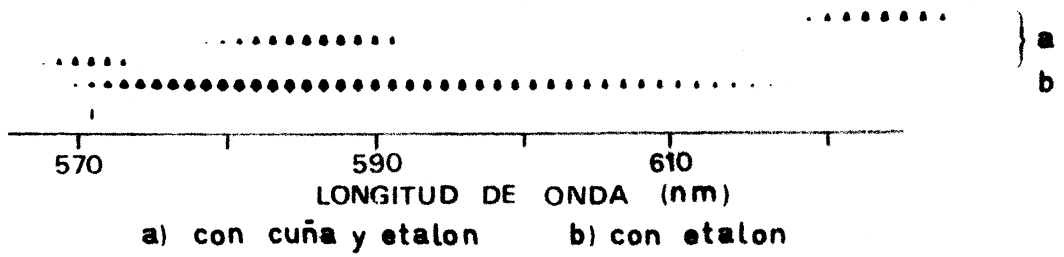


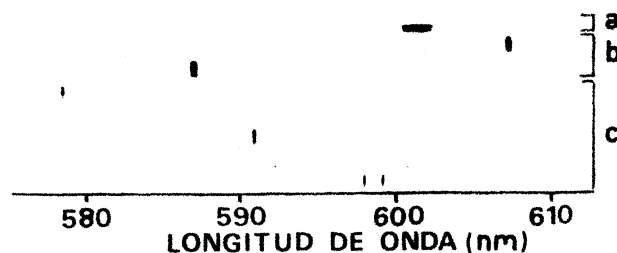
FIGURA 25

En la figura 24 se observa la distribución en longitud de onda, del espectro sintonizado en 600 nm. En él puede apreciarse una inversión (respecto del espectro de banda ancha) en cuanto a la posición del máximo de radiación respecto al centro del intervalo. También es posible observar el corrimiento de dicho máximo respecto de la posición del máximo de transmisión de la cuña.

En la figura 25 puede apreciarse el efecto del agregado del etalón FP en la cavidad. Dado que la emisión es de varios nm y el FSR del etalón 1 nm, el efecto de su inclusión es de modular la salida.

IV - 4 Comparación con la emisión continua

A fin de establecer la limitación en la eficiencia de los elementos de sintonía debido al corto tiempo de vida de la radiación dentro de la cavidad respecto del caso continuo, al que puede considerárselo infinito, el mismo sistema fue excitado con el láser de argón iónico, utilizando 1.5 vatios en 514.5 nm. La radiación del colorante fue atenuada mediante filtros neutros y el registro fotográfico fue obtenido utilizando el espectrógrafo Shimadzu en el primer orden de difracción



FIGURA, 26 EMISION CONTINUA a) SIN SINTONIZAR
b) CON CUÑA c) CON CUÑA Y ETALON

Los resultados obtenidos son coincidentes con las indicadas en el manual del proveedor del láser de colorante (54) para excitación con argón. El espectro de la banda ancha es de 2 nm centrado en 600 Å mientras que los obtenidos con la cuña y con la cuña y el etalón son 0.2 y 0.05 nm, respectivamente. El rango de sintonía es mas limitado (575 a 610 nm) que en el caso del pulsado. La eficiencia es $\sim 10\%$.

En la figura 27, es posible observar el efecto de los elementos de sintonía y de la competición de los modos (sección II-3), para este caso.

IV - 5 "Locking" en frecuencia mediante doble excitación

En las secciones precedentes se han detallado las apreciables diferencias existentes entre ambos modos de operación en un mismo sistema. Ya hemos referido que la búsqueda se inclina en general, a la obtención de emisiones de apreciable potencia y anchos de banda reducidos, lo que no es sencillo de obtener.

En la sección II-3 nos hemos referido a los fundamentos de "injection locking", o sea, la introducción en la cavidad y por consiguiente en el medio activo de radiación de pequeño ancho de banda y cuya frecuencia pertenece al rango de emisión del láser de colorante. Su valor debe ser tal que compita efectivamente con la emisión espontánea, de manera que sólo ella, y quizás algunos modos cercanos, superen el umbral.

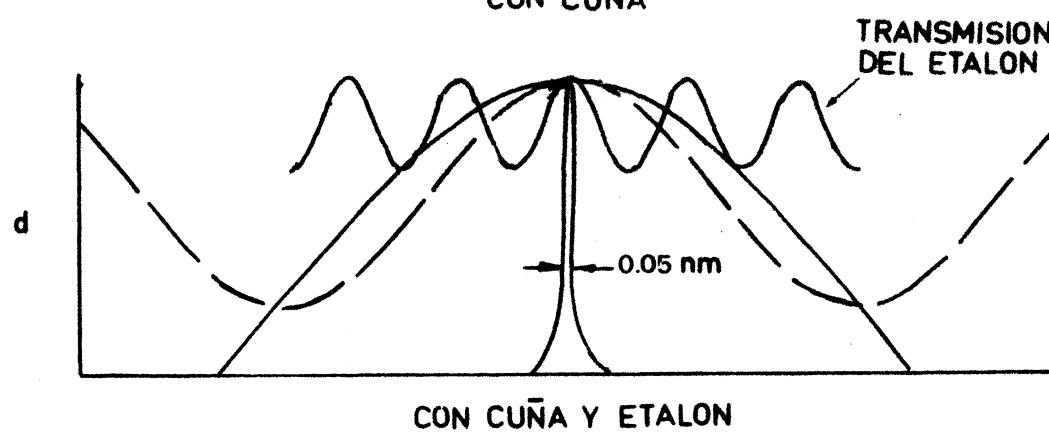
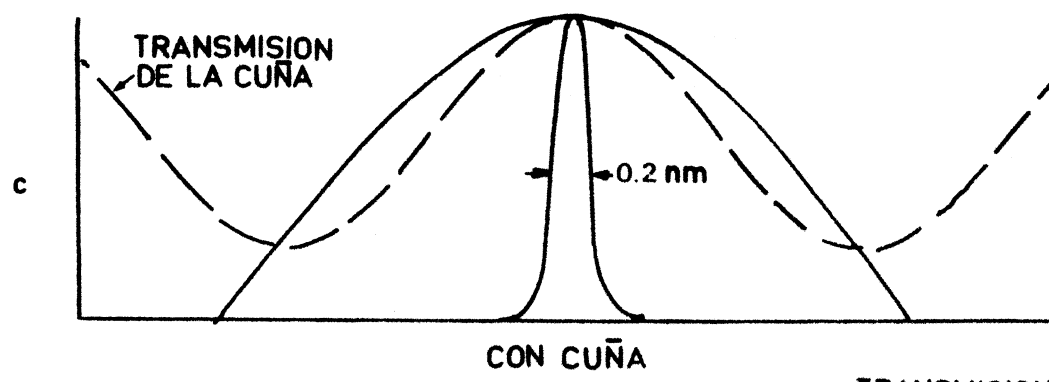
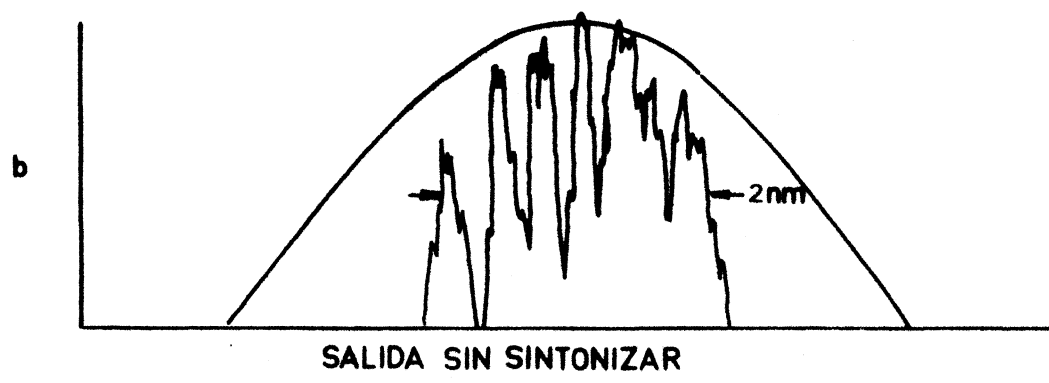


FIGURA 27
DESDE (54)

En este caso el método utilizado difiere de aquel, en que es el mismo medio que actúa como oscilador, para proveer un campo de radiación limitado a ciertas frecuencias, y como amplificador, produciéndose la elevación de la potencia. Por otra parte, la radiación adicionada en este caso es "independiente" de la emisión, dado que su frecuencia debe caer dentro de la banda de absorción. Las ventajas y desventajas del método serán discutidas en el Capítulo V.

El esquema experimental se observa en la figura 28. Los haces de los láseres de Ar y Xe iónicos son superpuestos sobre el espejo de entrada a la cavidad, mediante un divisor de haces de 50%. La elección de la ubicación de ésta, relativa a los haces, se debió a que la reflexión del haz continuo en el divisor, era mayor que su transmisión, a causa de su polarización. Es de hacer notar que por problemas de instalación ambos láseres excitadores debieron funcionar a dos metros del de colorante, disminuyendo sus eficiencias relativas. En el caso del láser de argón esto resultó crítico, logrando disminuir efectos de gradientes térmicos, que aumentaban el tamaño del haz, entubando su radiación. La potencia utilizada fue la máxima que producía en ese momento, o sea 4.2 W en todas las longitudes de onda, y la concentración fue de $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ (no se observó una diferencia apreciable con relación a la anterior, $2 \cdot 10^{-3} \text{ M}$).

La emisión del colorante así obtenida, consistía de un fondo continuo de baja intensidad (algunos milivatios) modulado por pulsos de cientos de vatios, según el valor de la excitación (de carac-

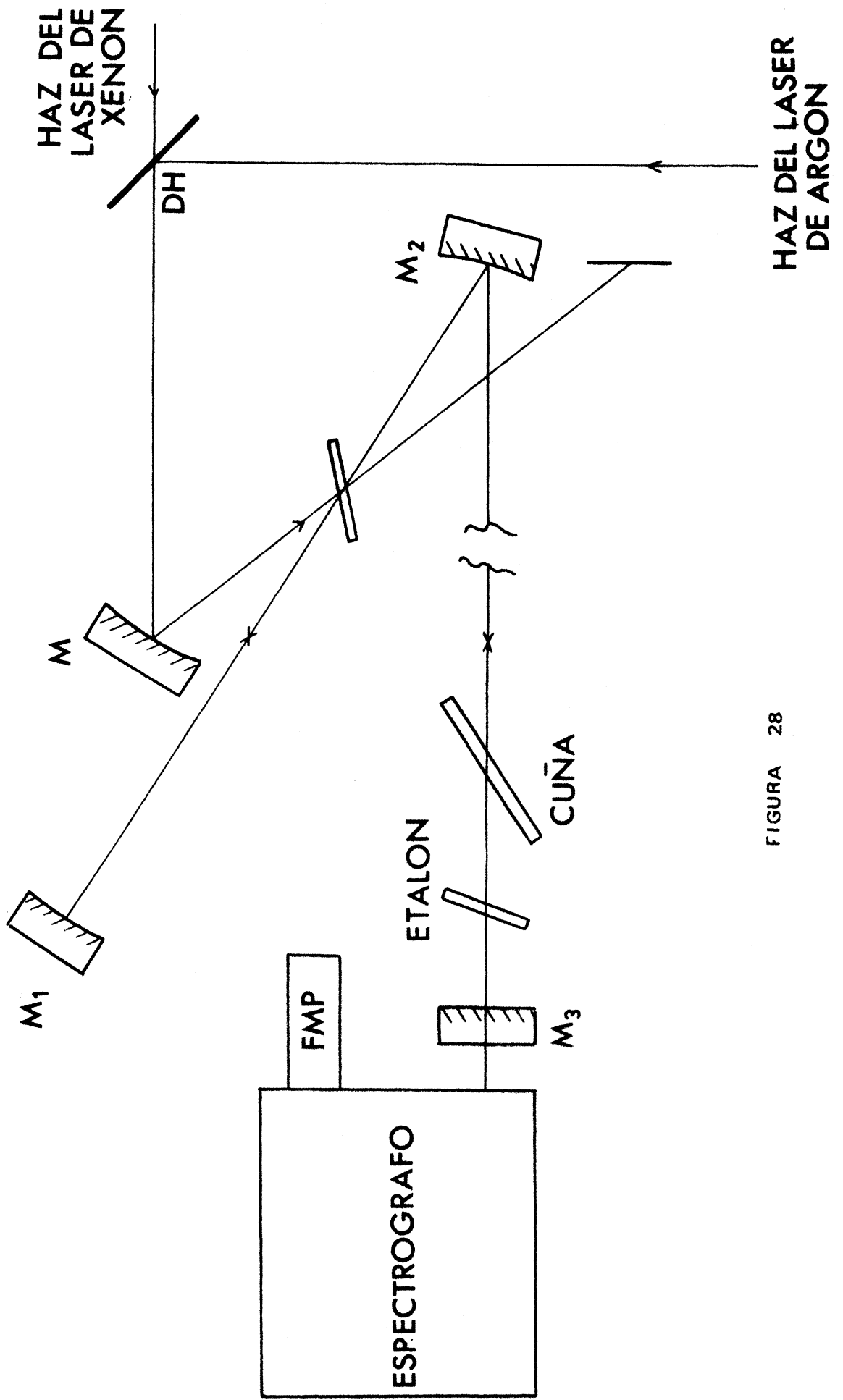


FIGURA 28

terísticas temporales idénticas a las mencionadas en la sección IV-3-1

Dado que la presencia de la emisión espontánea cubriendo todo el espectro impidió observar fotográficamente si la emisión pulsada se concentraba o no, fue necesario analizar la radiación montando el fotomultiplicador a la salida del espectrógrafo "Shimadzu", limitando el ancho espectral, que recibe el detector, con una ranura de 200 μm , lo que representó una resolución de 0.096, 0.048 y 0.03 nm en el primero, segundo y tercer orden de difracción, respectivamente. Las observaciones fueron realizadas con el osciloscopio Tektronix 7904.

Los resultados obtenidos se ilustran en las figuras 29, 30 y 31. Los primeros obtenidos en primer orden muestran la distribución espectral de la emisión pulsada sin elementos de sintonía, con y sin la superposición continua. El gráfico es similar a los reportados en el caso de inyección. La concentración de energía en los 2 nm continuos es de $\sim 90\%$. El resto presente es debido principalmente a la separación entre los máximos de emisión en los dos modos independientes, que posibilita la coexistencia de ambos.

En el segundo caso, obtenido en el segundo orden, colocando la cuña en la cavidad, la limitación de la emisión pulsada a un rango más pequeño y cercano a la continua posibilitó la total concentración cuando ambas excitaciones se superponen. Es evidente aquí también el desplazamiento del máximo en el caso pulsado respecto del máximo del continuo, el que coincide con el máximo de transmisión de la cuña.

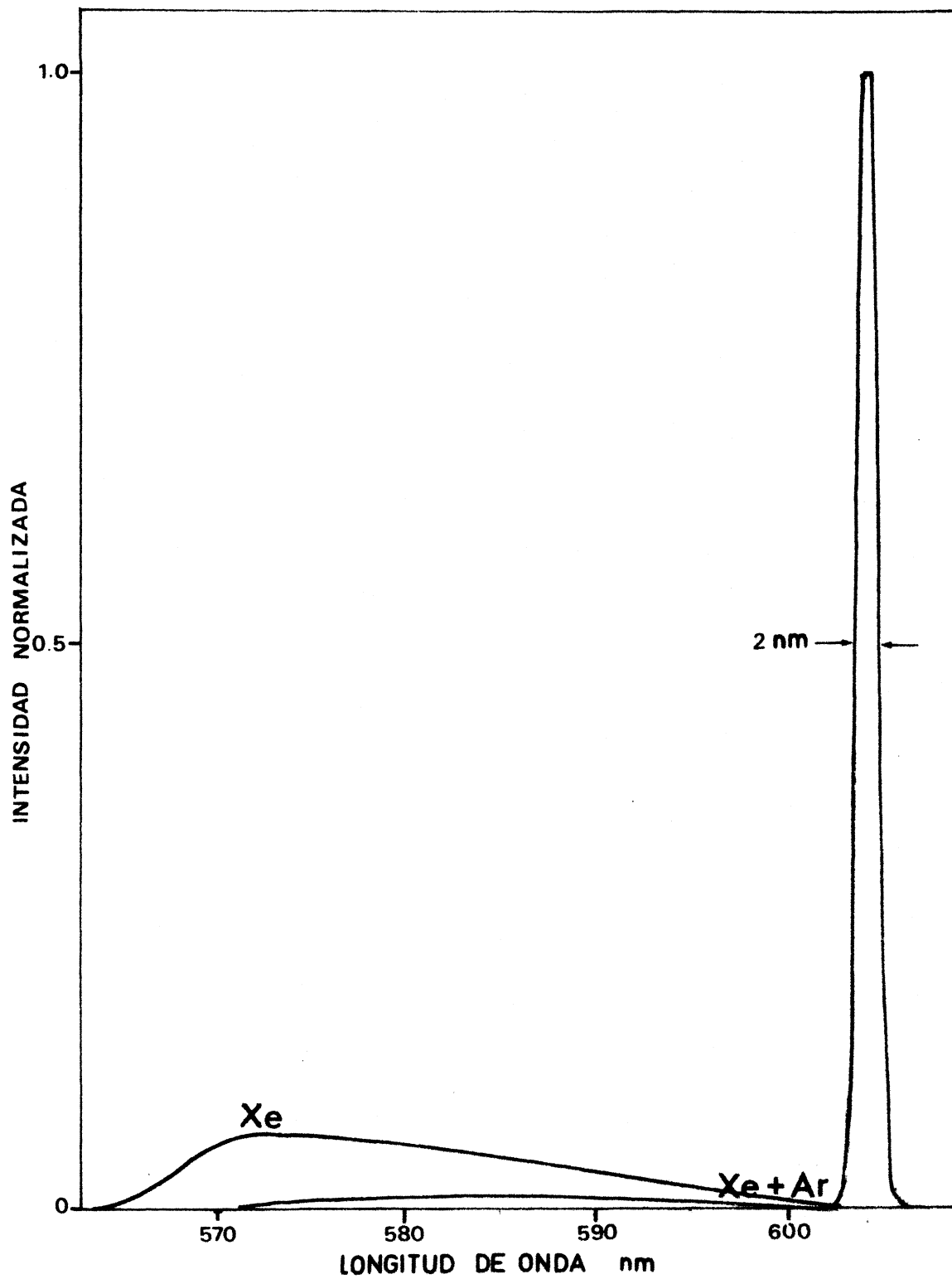


FIGURA 29

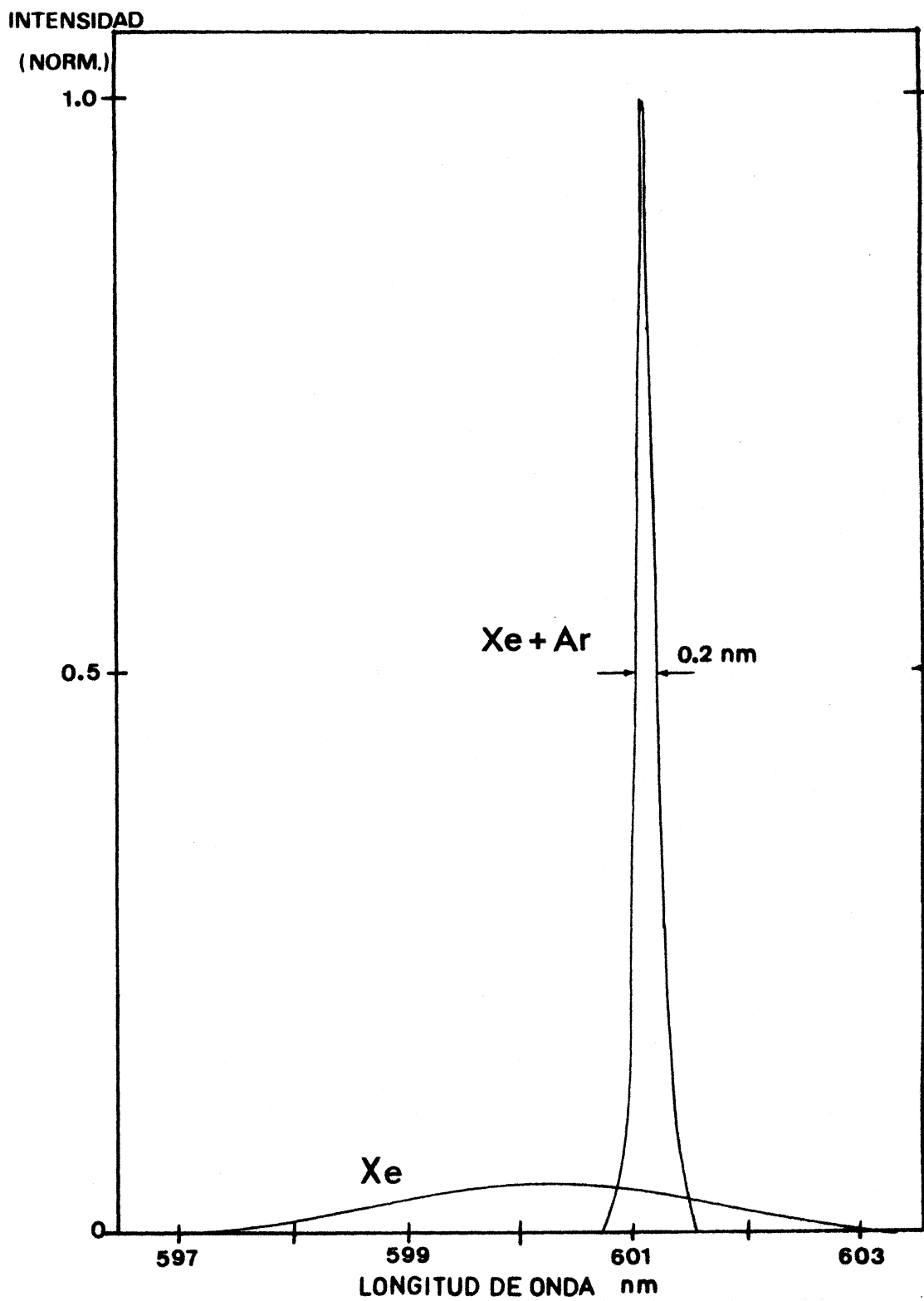


FIGURA 30

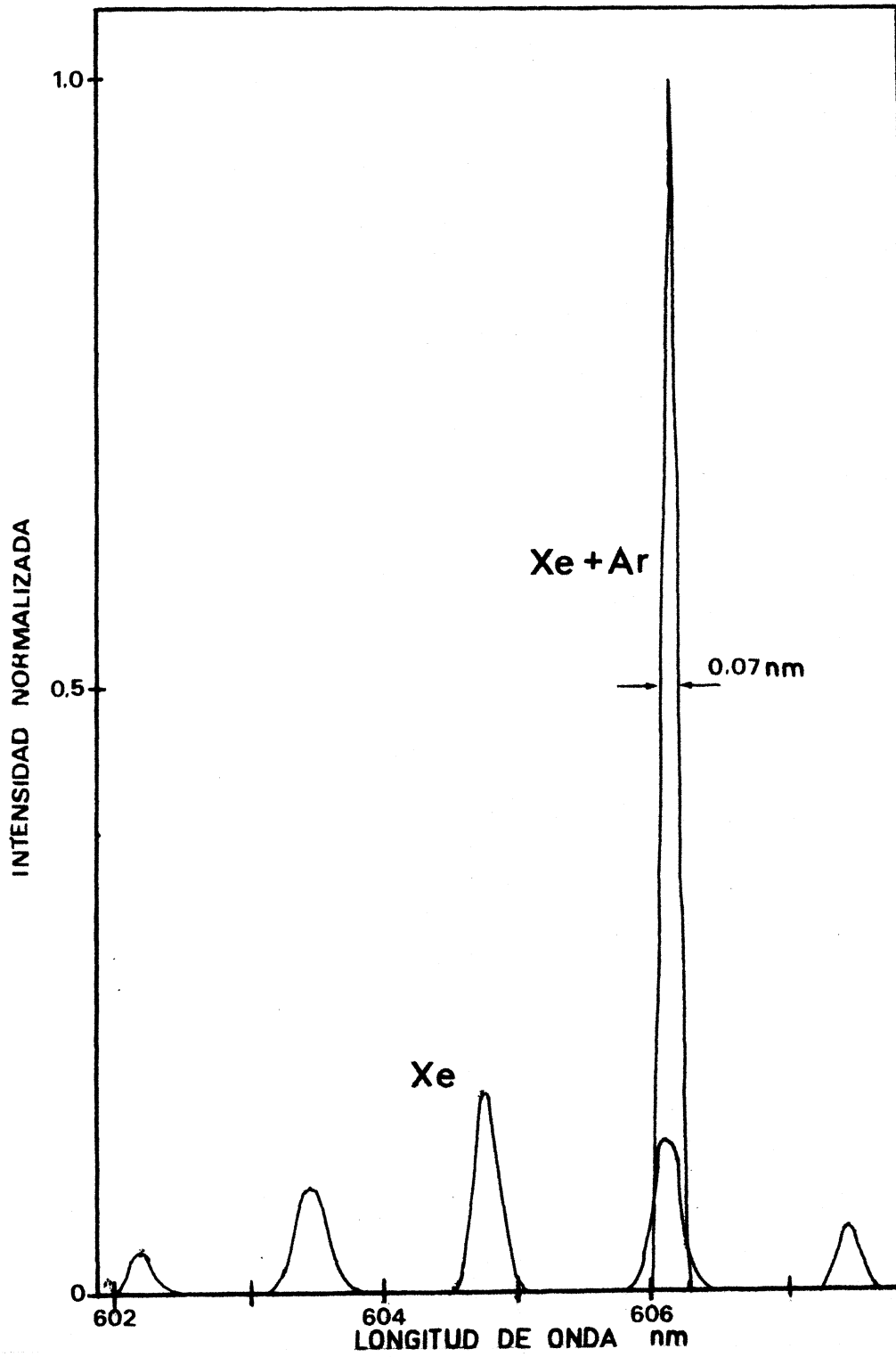


FIGURA 31

La situación es idéntica al agregar el etalón. La figura 31, que fue obtenida en el tercer orden, muestra los lóbulos de la emisión pulsada con el de máxima intensidad también desplazado.

En todos los casos el ancho espectral de la emisión pulsada coincide con el del continuo dentro de los límites de resolución del sistema de medición.

En todos los casos, las áreas bajo las curvas, con y sin el continuo, son idénticas, o sea que la energía involucrada es la misma.

IV - 6 Aproximación fenomenológica de los procesos

Las ecuaciones diferenciales 12, 13 y 14 fueron resueltas numéricamente utilizando las sencillas técnicas de Euler en una mini computadora Radio Shack TRS-80 para los distintos casos mencionados en las secciones IV-3 y IV-5.

Dichas ecuaciones fueron normalizadas a fin de llevar las cantidades a valores manejables por la máquina

$$\frac{dy}{dt} = \left\{ P + \int_{\nu_1}^{\nu_2} x(\nu) \sigma_a(\nu) d\nu \right\} (y - y_1) - \left\{ k_0 + \int_{\nu_1}^{\nu_2} x(\nu) \sigma_e(\nu) d\nu \right\} y_1$$

$$\frac{dx(\nu)}{dt} = \frac{x(\nu)}{T} \left\{ 2\ell_0 (\sigma_e(\nu) y_1 - \sigma_a) - \alpha(\nu) \right\} + \kappa \sigma_e(\nu) y_1$$

(en esta ecuación despreciamos un σ_a por ser $\sigma_a \ll \sigma_e$)

$$\text{donde } y = \frac{n}{N}; y_1 = \frac{n_1}{N_1}; P = \frac{W}{N^e}; x = \frac{I}{N}; k_0 = \frac{1}{\tau_1 N}; \ell_0 = \ell N$$

(dado que las funciones las expresamos en λ , reemplazamos $dv = -\frac{c}{\lambda^2} d\lambda$ en las integrales y $v = \frac{c}{\lambda}$)

A continuación enumeramos las funciones y datos utilizados en todos los casos (las características de los elementos de sintonía se incluyen luego).

$$W_e = D \left(\frac{x}{t_0} \right)^b \exp \left(-b \left(\frac{x}{t_0} - 1 \right) \right)$$

$$\sigma_a(\lambda) = k_1 \exp(k_2(\lambda - 600))$$

$$\sigma_e(\lambda) = k_3 (1 - k_4 \exp(k_4(\lambda - 590))) (k_5 + k_6(600 - \lambda)) + k_7 \exp(k_8(\lambda - 590))$$

$$\alpha(\lambda) = -\ln(R_1 R_2)$$

$$R_2 = 1.3 - \lambda \cdot 0.2 \cdot 10^{-2}$$

$$T_2 = 1 - R_2$$

$$\tau_1 = 2.70 \cdot 10^{-9} \text{ seg.}$$

$$k_1 = 0.5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$$

$$l = 4 \cdot 10^{-9} \text{ cm}$$

$$k_2 = -0.0987$$

$$\kappa = 1 \cdot 10^{17} \text{ fot/molec.cm.sec.}$$

$$k_3 = 6.25 \cdot 10^{-4}$$

$$n = 1.2 \cdot 10^{18} \text{ molec/cm}^3$$

$$k_4 = 0.277$$

$$N = 1.2 \cdot 10^{18}$$

$$k_5 = 1.22$$

$$\begin{aligned}
 b &= 2.65 & k_6 &= 2.9 \cdot 10^{-2} \\
 t_0 &= 65 \cdot 10^{-9} \text{ seg.} & k_2 &= 5.45 \cdot 10^{-2} \\
 T &= 2.39 \cdot 10^{-9} \text{ seg.} & k_8 &= 4 \cdot 10^{-2} \\
 C &= 2.998 \cdot 10^{-17} \text{ nm/seg.} & k_9 &= 1.10 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 \\
 R_1 &= 1
 \end{aligned}$$

λ_1 , λ_2 y D son variadas según cada caso.

σ_a y σ_e fueron tomadas de la Ref. 17, corregidas según (10) para ampliar su rango (565-640 nm). Si bien ellas están tomadas en etanol, los valores no difieren mucho y las formas más importantes en este caso, presentan variaciones mucho más pequeñas.

ℓ fue calculada a partir del espesor del flujo (240 μm) y el ángulo que la radiación del colorante en la cavidad forma respecto a la normal a su superficie (53°) (Fig. 32).

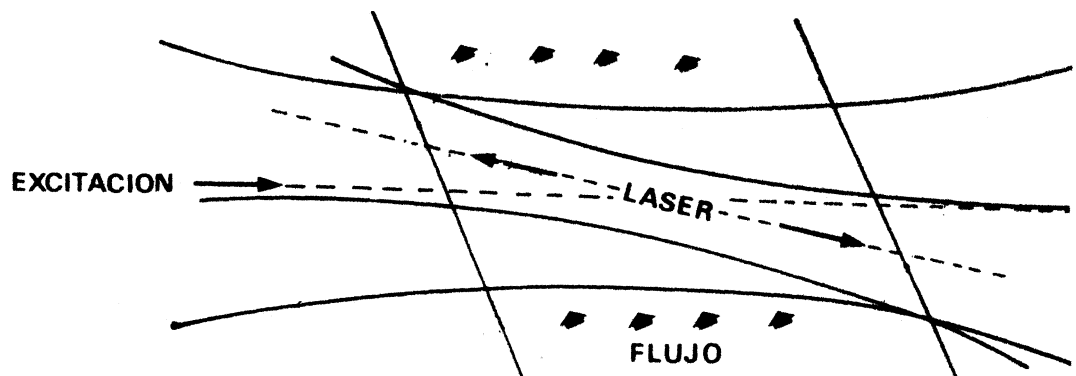


FIGURA 32

$$T = \frac{2L}{c} \text{ donde } L \text{ es la longitud de la cavidad (36 cm)}$$

El valor de κ utilizado reproduce mejor las curvas experimentales, mientras que de acuerdo a la definición (Sección II - 6) $\sim 10^{-15}$ fot/molec cm seg.

n corresponde a la concentración utilizada ($2 \cdot 10^{-3}$ M)

La función para R_2 fué tomada de la Fig. 10.

La función de excitación (Fig. 35) fué elegida tal que $W_e(t)$ y $\frac{dW_e}{dt}(t)$ fueran nulas cuando $t = 0$. Fue supuesta una excitación homogénea del medio de manera que $W_e = \frac{W_0}{vN}$, donde W_0 es el número total de fotones excitantes y v es el volumen excitado de la celda.

En general, fueron utilizados valores cercanos al umbral por facilidad de cómputo, ya que más excitación significaba menor paso para que el cálculo sea estable. Valores mayores utilizados mantuvieron las características de los resultados.

El valor de la vida media del nivel excitado τ_1 fué corregido según la referencia 56, debido al efecto de eliminación de moléculas en ese estado por colisiones con otras moléculas de colorante. Si éste es supuesto proporcional a la concentración, el tiempo de vida se reduce a

$$\frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{\tau_0} + k_Q n$$

con $\tau_0 = 4.8 \cdot 10^{-9}$ seg., $k_Q = 1.35 \times 10^{-10}$ cm³/seg. y $n = 1.2 \cdot 10^{18}$ molec/cm³

Los valores iniciales tomados fueron $x(\lambda, 0) = 0$ para todo λ e $y_1(0) = 10^{-28}$ molec/cm³. (variaciones en varios órdenes de este

valor tienen influencia despreciable en los resultados). La salida del programa de valores de y , de $x(vt)$ y de $I_s(t)$ donde

$$x_s(vt) = - \frac{x(vt)}{2} \ln R_2$$

$$y \quad I_s(t) = - \frac{1}{2} \ln R_2 \int_0^{\infty} dx(vt)$$

El intervalo temporal utilizado en la iteración fue de 2×10^{-10} seg.

IV-6-1- Espectro de banda ancha

El problema presentado fue resuelto para el intervalo (565-620 nm) con $D = 1.2 \cdot 10^8$ fot/seg. Es de hacer notar que los modos donde se observa que no hay amplificación, tienen efecto despreciable y el no considerarlos limitando el rango no alteran los resultados. Estos se observan en la figura 33

La característica más saliente es el corrimiento que el máximo de la distribución en longitudes de onda hace en el transcurso del tiempo. Estos corrimientos han sido hallados experimentalmente para pulsos de excitación mayores a 10 ns (55). Con excitación de pulsos gigantes fue medido un corrimiento de 7.5 nm hacia el rojo en 15 ns. En excitaciones más largas (ns) también se halla presente, pero el fenómeno es más complicado dado que se observaron corrimientos hacia el rojo, hacia el azul o variación de la dirección durante el pulso. Los resultados aquí presentados son similares a los de las Referencias 16 y 17 pero los corrimientos son mucho mayores.

Dado la índole de transitorio del proceso, pueden ser enten-

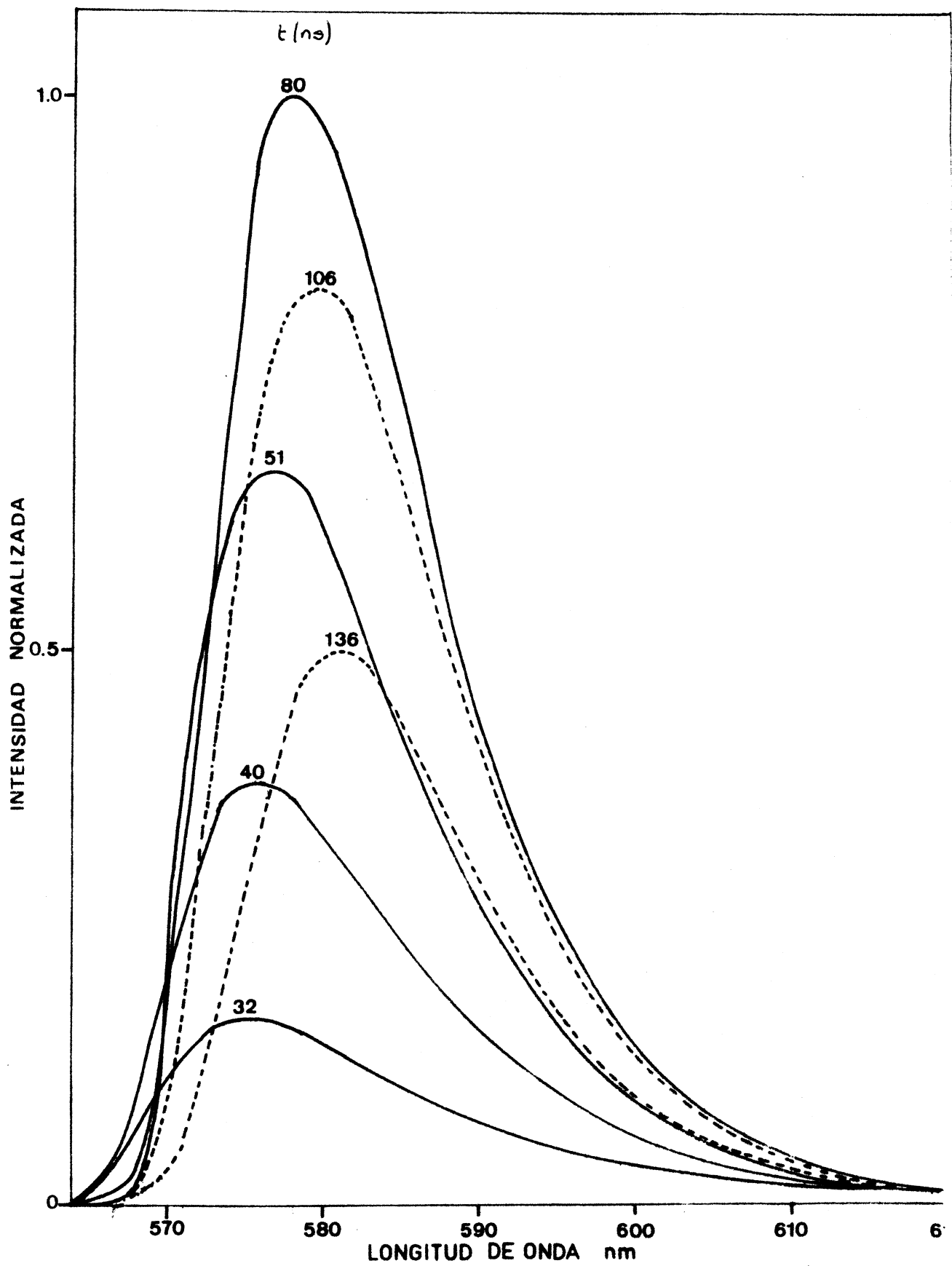


FIGURA 33

didas en función de la variación de la ganancia, en el transcurso del tiempo debido a las variaciones de las poblaciones del nivel excitado y del fundamental (principalmente del primero). Dado que la población de éste (Fig.34) supera ampliamente el valor del umbral antes que la radiación llegue a niveles que permita un "equilibrio" entre ambas, los modos que se amplifican primero están ubicados más cerca del máximo de fluorescencia o en él. A medida que disminuye γ (o n_1) aumenta la influencia de la absorción del estado fundamental corriendo el máximo de la ganancia hacia el rojo. La forma en sí no sufre variaciones importantes, aún aumentando el valor del pulso de excitación en un orden de magnitud. La figura muestra que los máximos en cada longitud de onda no son simultáneos.

Por último, cabe destacar que la variación en 2nm del máximo real respecto al calculado (tal como se observa en la figura 22) cae dentro del posible error de los valores de sección eficaces utilizados. Variaciones de los valores de éstas en ese orden no modifica la forma de la emisión sino que sólo la desplazan en alguna dirección (16).

La figura 35 concluye lo dicho en IV-3-I- observándose una perfecta concordancia entre el pulso de excitación y el emitido.

La eficiencia calculada (Fig. 21) fue $\beta_c = 0.61$ W comparada con $\beta = 0.44$ que fue la medida. La discrepancia radica fundamentalmente en que no todo el volumen excitado es aprovechado por la cavidad. En el presente caso, en que el área excitada por el láser

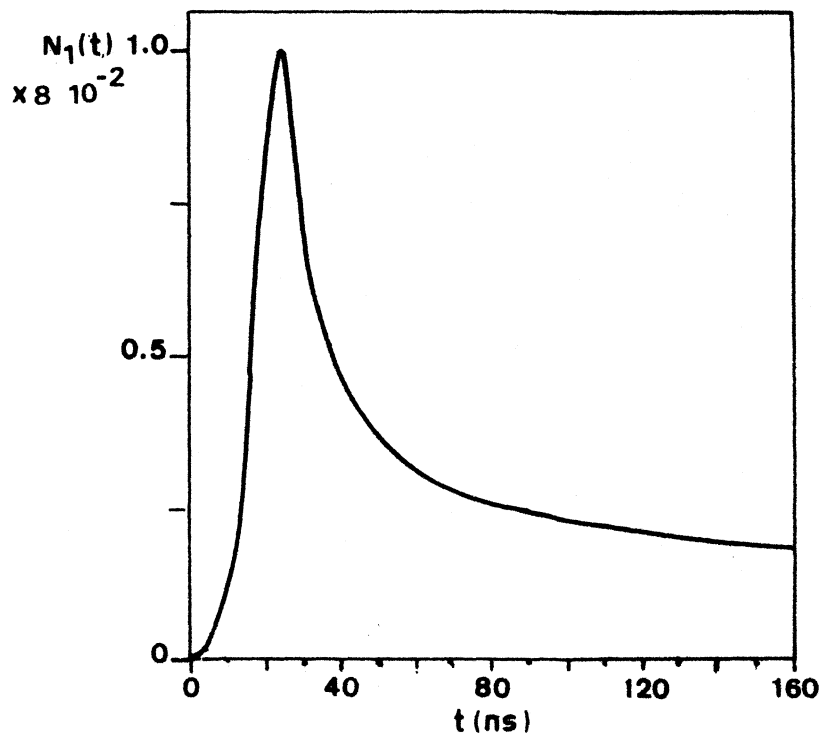


FIGURA 34

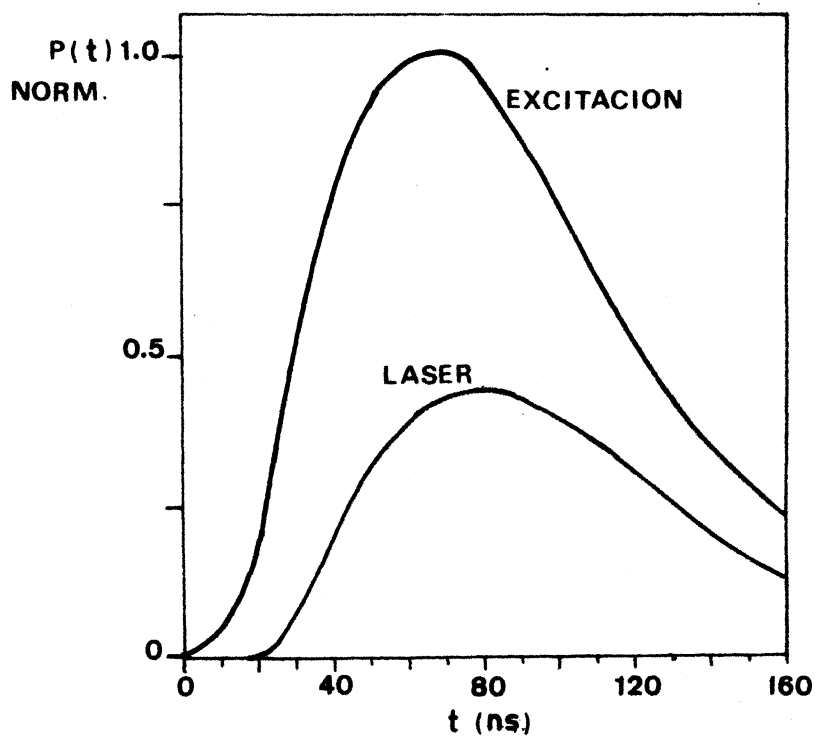


FIGURA 35

de X_e (A_e) es mayor que el área de la radiación del colorante en el medio activo (A_m) la relación entre dichas eficiencias puede considerarse igual a $\frac{\beta}{\beta_c} = \frac{A_m}{A_e} = \frac{\eta \omega_m^2}{\eta \omega_e^2} = 0.72$

que establece que como $\omega_m = 15 \mu\text{m}$ entonces $\omega_e = 17.7 \mu\text{m}$.

Suponiendo $2 \omega_e = f \cdot D$ donde $f=2.5 \text{ cm}$ (distancia focal del espejo M de entrada y $D = 1.5 \cdot 10^{-3}$ divergencia del haz del láser de Xe, tenemos $\omega_e = 18.7 \mu\text{m}$

El valor de potencia de umbral calculado $P_{uc} = 4.54 \text{ W}$ mientras el valor real era $P_u = 3 \text{ W}$.

IV-6-2 Emisión sintonizada con la cuña

La función de la ganancia fue modificada por

$$\alpha(\lambda) = -\ln \{ R_1 R_2 (T_1)^2 \}$$

Siendo $T_1(\lambda)$ la transmitividad de la cuña (básicamente un etalón) y este dado por

$$T(\lambda) = \left\{ 1 + \frac{(2 F_1 \sin \frac{(\lambda - \lambda_{01}) \eta}{\Delta \lambda_{01}})^2}{\eta} \right\}^{-1} T_{01}$$

donde T_{01} es el máximo de transmisión, $\Delta \lambda$ el rango espectral libre y F_1 la fineza $\sim \eta R^{1/2} (1-R)^{-1}$ donde R es el coeficiente de reflexión de los dos recubrimientos que constituyen el etalón.

En $\alpha(\lambda)$, T se halla elevada al cuadrado, dado que en cada viaje de ida y vuelta la radiación la atraviesa dos veces.

En este caso, $T_{01} = 1$, $\lambda_{01} = 600 \text{ nm}$, $\Delta\lambda_1 = 110 \text{ nm}$, $F_1 = 3.2$ (datos tomados desde el manual de la cavidad del láser de colorante) y $D = 1.2 \cdot 10^8 \text{ fot/seg}$.

Básicamente las características generales son similares salvo que se observa, al introducir un mecanismo de pérdidas selectivo, un efecto más marcado de la competencia entre modos que lleva a una reducción gradual del ancho espectral (Fig. 36). Aún con este elemento dentro de la cavidad, se aprecia un corrimiento progresivo. Una reducción en el máximo de la radiación integrada $I_S(t)$ es debido a que fue sintonizado fuera del máximo de la emisión de banda ancha.

IV-6-3 Emisión sintonizada con cuña y etalon

En forma similar al anterior, tenemos aquí

$\alpha(\lambda) = -\ln(R_1 R_2 T_1^2(\lambda) T_2^2(\lambda))$, con F_2 definido en forma idéntica a F_1 .

Para el etalón $F_2 = 0.76$, $\Delta\lambda_2 = 1 \text{ nm}$, $\lambda_{02} = 600 \text{ nm}$ y $T_{02} = 1$. El resto de valores son idénticos al caso anterior.

Dado la limitación de puntos disponibles en λ y las que se hubieran necesitado para representar debidamente todos los lóbulos que aparecen con esta disposición (Fig. 25) se optó por obtener con los puntos con que se cuentan, debido a la limitación de memoria de la mini computadora utilizada, un panorama de la distribución de la radiación.

Se observa en la figura 37 que la posición del centro geométrico de los máximos de intensidades no se corresponde con el máximo

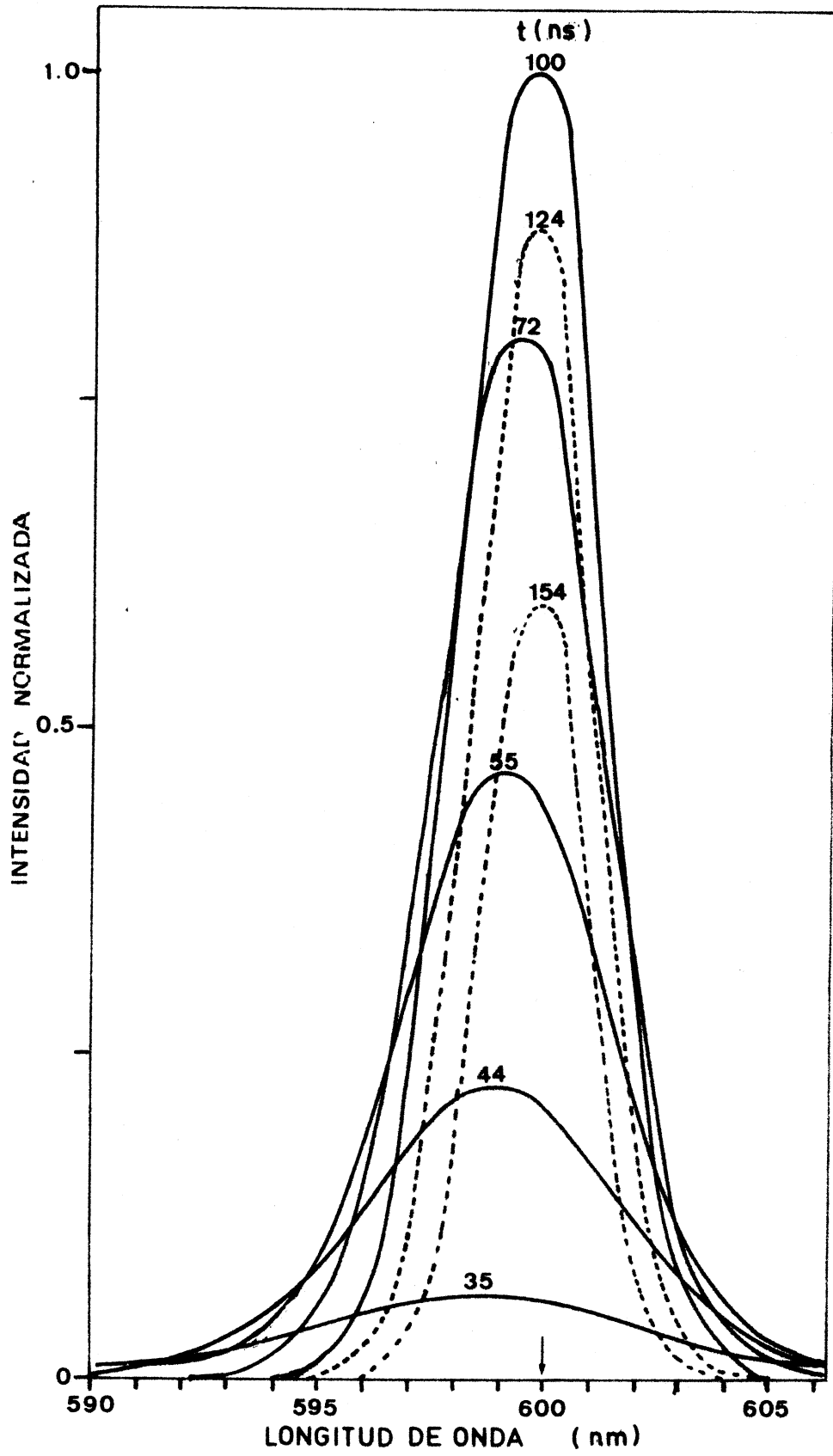


FIGURA 36

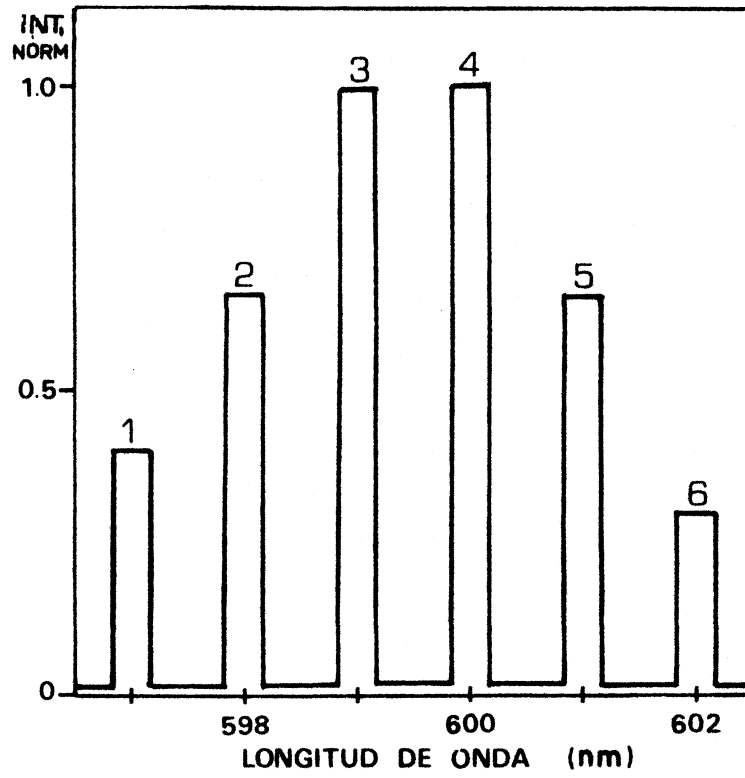


FIGURA 37

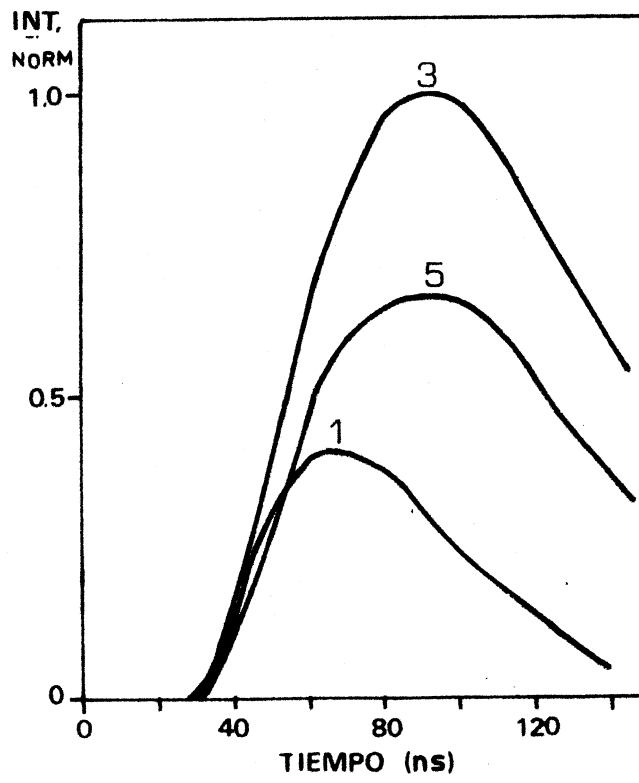


FIGURA 38

de la cuña, limitándose la salida, en este caso, a los modos del etalón y que, en general, no fueron simultáneos (Fig. 38).

La eficiencia es aquí también reducida por los factores mencionados en IV-5-2.

IV-6-4 Emisión producida con doble excitación (continua y pulsada).

Solamente fue resuelto el modelo para el caso de sintonía con cuña y los valores de los parámetros son en este caso los empleados en IV-5-2.

Las condiciones iniciales fueron modificadas de manera de simular un flujo estacionario en la cavidad.

Fue supuesta una distribución espectral gaussiana equivalente a una salida continua de 15 mW fuera de la cavidad.

$$\text{Resulta que: } x_1(\lambda_0) = Q e^{-\frac{(\lambda - \lambda_0)^2}{\delta\lambda}} \ln 2$$

$$\text{con } Q = 1.2 \cdot 10^{-6} \text{ fot/cm}^2 \quad \delta\lambda = 1 \text{ nm y } \lambda_0 = 600 \text{ nm}$$

donde $\delta\lambda$ es la mitad del ancho a mitad de la altura, valores que corresponden a la emisión continua sintonizada con la cuña.

Además, $Y_1(o) = 2 \cdot 10^{-2} \text{ molec/cm}^3$ fue la población inicial supuesta calculada para operación sobre el umbral del continuo.

También, fue sumado a P un término constante igual a $1 \cdot 10^{-11} \text{ fot/s}$, equivalente a una excitación cercana al umbral de $\sim 600 \text{ mW}$ en 514,5 nm del laser de Argón, distribuido en un área cuyo diámetro es 20 μm .

En primera instancia fue comprobado que con dichos valores la situación, tanto de la población como del flujo no variaba apreciablemente en un tiempo (5 ns) en que la excitación pulsada comenzara a dirigir el proceso. La figura 39 muestra el comportamiento de la radiación cuando la excitación pulsada fue iniciada. Se observa en este caso la ausencia de corrimientos, dado que la radiación continua establecida constituye el límite de dichos procesos. El colorante, en este caso actúa como un perfecto amplificador manteniendo su forma espectral intacta.

La respuesta temporal (Figs.40 y 41) es también similar en este caso, reduciéndose levemente el tiempo necesario para llevar al umbral, debido a que la excitación efectiva es un poco mayor. La eficiencia obtenida es comparable a la de emisión en banda ancha, es decir, sin elementos de sintonía.

Es de notar que la valoración de los resultados obtenidos en estos casos así como los logrados por otros autores con el simple modelo utilizado, adolecen de la dificultad que, al transponer el umbral, deja de tener validez la aproximación utilizada ($\Delta I/I \ll 1$) en un breve intervalo de tiempo. Sin embargo, cualitativamente, el comportamiento real es semejante al calculado. La constante κ (vinculada con la proporción de la emisión espontánea) que reproduce mejor las curvas experimentales, es menor que la total calculada ($\sim 10^{18}$ fot/molec cm seg) y mayor que la corregida al considerar la proporción que se mantiene en la cavidad ($\sim 10^{15}$ fot/molec cm seg). Esta variación es seguramente debida a las simplificaciones forzosas utilizadas en el modelo. Variaciones de esta constante solo cambia el espectro de la emisión y levemente el tiempo en que se llega al umbral, sin modificar prácticamente la eficiencia.

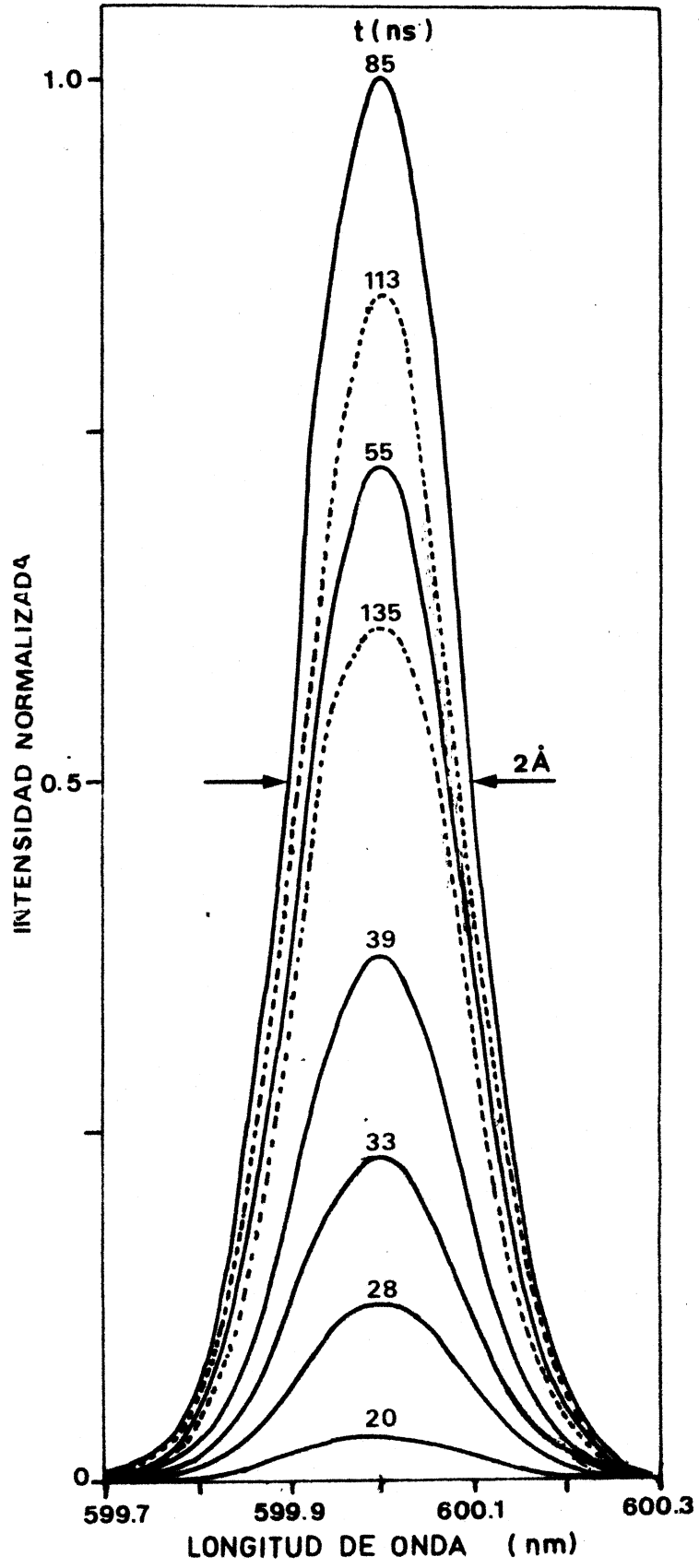


FIGURA 39

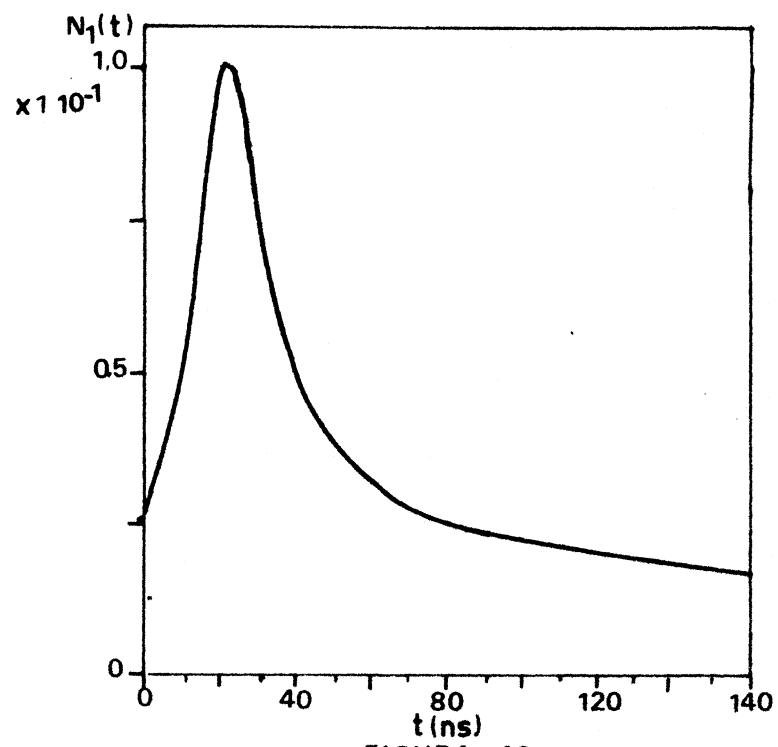


FIGURA 40

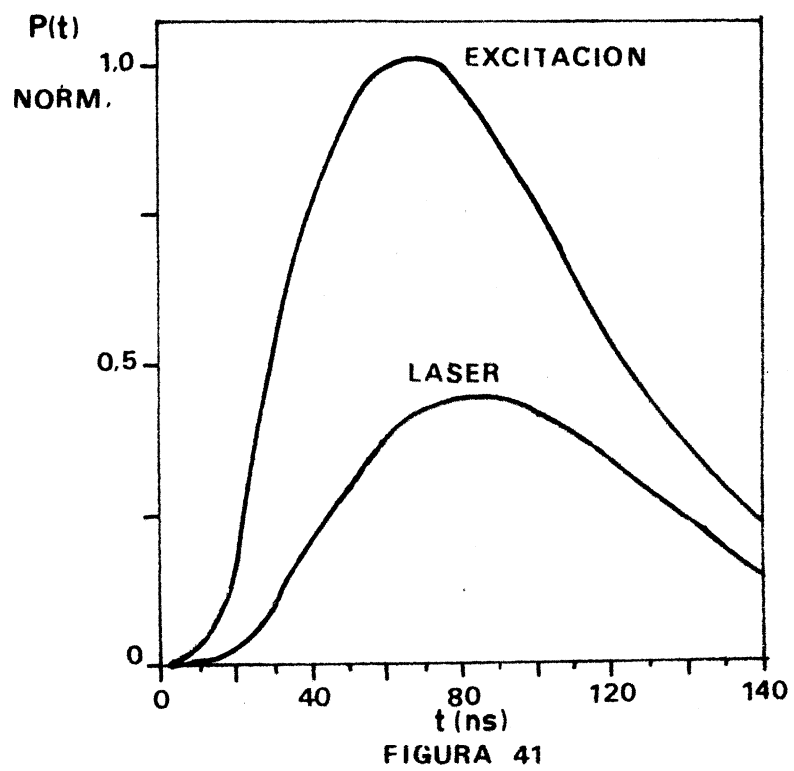


FIGURA 41

CAPITULO V
DISCUSION FINAL
Y
CONCLUSIONES

CAPITULO V

DISCUSION FINAL Y CONCLUSIONES

V - 1 Introducción

En este capítulo se detallan las principales características de la emisión de los láseres de colorantes pulsados, las causas que lo producen y las posibilidades del método utilizado para reducir el ancho de banda.

Finalmente se mencionan algunas de las posibles aplicaciones de estos sistemas.

V - 2 Características de la emisión pulsada de los láseres de colorantes.

En los capítulos anteriores se han descrito las características principales de los láseres de colorantes operando en forma pulsada. Las referencias presentadas en el Capítulo II (Sección 7) ilustran sobre los distintos esquemas convencionales utilizados para lograr emisión sintonizada con un reducido ancho espectral, utilizando elementos dispersivos como redes de difracción, prismas, etalones, etc. Sin embargo, las eficiencias logradas respecto a emisiones de banda ancha son menores, a veces varios órdenes de magnitud de diferencia. Se puede concluir, en definitiva que grandes potencias y anchos de líneas estrechos son requerimientos contradictorios, debido a la inevitable fuente de pérdida introducida con cada

elemento de sintonía y debido a que en condiciones de fuerte excitación muchos modos oscilan sobre el umbral.

En la labor realizada y aquí descripta, la utilización de un tipo particular de excitación (longitudinal) de una celda de pequeño espesor y en una cavidad de gran longitud, trae aparejado una ampliación de dichos efectos. Las propiedades espectrales de los láseres de colorantes dependen apreciablemente de la competición entre los modos. Esta está restringido por mecanismos que favorecen su coexistencia. En este caso ésto es debido a que la proporción de la producción de emisión estimulada es comparable a la espontánea, cuando el sistema se aproxima a la zona del umbral, provocando una marcada influencia de esta última. Los resultados presentados en el Capítulo IV (Sección 3) así lo demuestran. También es posible observar la limitación del efecto de los elementos de sintonía. A pesar de ello, es ilustrativo indicar la eficiente condensación espectral, dado que prácticamente toda la energía es canalizada en un intervalo diez veces menor.

La eficiencia de conversión lograda para prácticamente todo el rango de potencias de excitación utilizadas (>40%) y el pequeño umbral que posee (~ 3 W), son importantes características del sistema.

Por medio de un análisis realizado en forma numérica de la dinámica de las densidades de flujo espectral y de las poblaciones de los estados moleculares, fue ilustrada la propiedad básica de la emisión de los láseres de colorantes pulsados operando sobre el um-

bral, su evolución espectro-temporal.

Además del efecto de la emisión espontánea de producir una emisión de aproximadamente 50 nm (en el caso sin elementos de sintonía), la característica más notable observada en dicho análisis es el corrimiento espectral. Estos corrimientos que ya han sido reportados experimentalmente (55), dependen fundamentalmente del solapamiento del espectro de absorción respecto del de emisión. Colorantes con un gran corrimiento Stokes, donde éste no existe, deberían mostrar sólo un pequeño desplazamiento de la radiación. En estos casos, la ganancia podría ser más sensible a efectos de tripletes (provocando un desplazamiento hacia el azul). La influencia relativa de ambas absorciones, son las que en definitiva, regulan la dinámica del proceso en longitudes de onda.

La eficiente condensación espectral observada cuando se utilizan elementos de sintonía puede ser entendida con el siguiente razonamiento. Al superar el umbral el ancho espectral de la emisión es mucho menor que cuando dicho elemento es utilizado en un sólo paso y su centro está comprendido en zonas cercanas al máximo donde la transmisión es cercana a la unidad, despreciando las pérdidas propias de dicho elemento. Así, las pérdidas del elemento de sintonía son prácticamente independientes de la longitud de onda y son nulas en nuestro caso.

El estudio realizado concuerda, además, con la evolución

temporal de la emisión integrada en longitudes de onda, mostrando una saturación respecto de la excitación desde el umbral.

El material aquí analizado dará lugar aún a posteriores estudios sobre parámetros que no hemos tomado en cuenta hasta el momento, como cambios de concentraciones, reflectividad de los espejos, etc.

V - 3 "Locking" en frecuencia mediante doble excitación.

Los resultados experimentales y numéricos presentados en las Secciones IV-5 y IV-6 , respectivamente, demuestran las bondades del método, en cuanto a la eficiente contracción de la emisión en un rango limitado por el espectro de la emisión láser continua del colorante.

Relacionándolo con el caso de "inyección", posee la desventaja que tanto la radiación oscilante (continua) como la amplificada (pulsada) se encuentran en la misma cavidad con elementos de sintonía que introducen pequeñas pérdidas adicionales. La utilización, además, de un divisor de haz introduce una pérdida de aproximadamente el 50%, tanto a la excitación continua como a la pulsada. En el otro caso, las pérdidas generalmente afectan a la radiación "inyectada" dado que ésta se realiza en muchos casos a través del espejo delantero. En determinadas ocasiones también se introducen elementos de sintonía (tipo etalón Fabry-Perot) a fin de reducir el rango de modos operando, de manera de aumentar la eficiencia.

Las potencias que se pueden lograr con este sistema están limitadas a la respuesta del medio dado que a grandes excitaciones, éste se blanquea y la radiación excedente es transmitida (la longitud de la celda está limitada por la excitación eficaz del continuo). Sin embargo, en el caso de "inyección" estas limitaciones también existen determinadas también por la intensidad de radiación disponible para introducir en el sistema. Si ésta es baja, gran parte de la emisión se producirá en un ancho espectro.

Posibles correcciones en el esquema utilizado, pueden otorgarle ventajas. Dado que la emisión del colorante no depende de la polaridad de la excitación y su radiación posee polarización propia debida a la cavidad, es posible eliminar las pérdidas producidas por el divisor del haz utilizando dos láseres con distintas polarizaciones y elementos que las distingan en la reflexión o en la transmisión, empleando, por ejemplo, un cubo polarizador divisor de haz o un espejo dicróico.

Logrado esto, dos importantes razones otorgan a este sistema ciertas ventajas. Una de ellas es que en esquemas como el de la Ref. 19 entran en juego cuatro láseres incluyendo dos de colorantes (uno que provee la relación a inyectar y otro que es utilizado como amplificador). Esta reducción simplifica el sistema, tanto en costo como en dificultades experimentales.

Otra ventaja es que la emisión pulsada obtenida es independiente en longitudes de onda de la radiación adicionada. O sea, da-

do que la "inyección" es indirecta en este caso, la selección se logra con los elementos de sintonía de la cavidad. La eficiencia obtenida es la misma que la obtenida en operación pulsada y sólo está limitada a que la base continua supere el umbral. Este último requisito es equivalente al caso de inyección en el sentido que es necesario contar con un láser "funcionando".

En conclusión, con la adición de una excitación continua o cuasi-continua que produzca oscilaciones en un rango de frecuencias reducidas, la que se puede ajustar con los elementos de sintonía colocados en la cavidad, es posible lograr emisión pulsada, cuya potencia pueda superar el KW en el mismo rango de frecuencias. La sintonía de ésta, queda limitada por las mismas cotas que la continua y la eficiencia por la del común láser de colorante pulsado con los mismos elementos de sintonía.

Aún resta investigar la respuesta del sistema a excitaciones mayores o de distinta duración. Un interesante caso planteado es utilizar pulsos de ps, obtenidos por técnicas de "mode-locking", provenientes de un láser como el de Xe o utilizar el mismo esquema que en este trabajo mezclando en el medio activo una solución diluida de un absorbente saturable, obteniéndose pulsos cortos, de potencia y ancho espectral reducido, de innumerables aplicaciones principalmente en química y biología.

V - 4 Aplicaciones

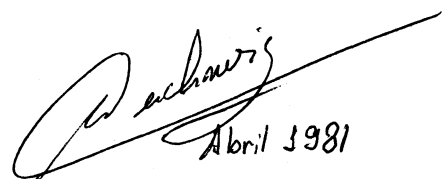
Desde la invención del láser, muchas aplicaciones han sido

propuestas, creando nuevos campos (óptica no lineal, física de pulsos ultracortos, holografía, etc.), y revitalizando campos clásicos como la óptica, espectroscopía y metrología. La eliminación de la restricción de trabajar a frecuencias fijas resultó en un posterior impulso de la actividad.

En el estudio realizado no se han tomado en cuenta las posibles aplicaciones particulares de los sistemas utilizados, dado que los casos en que pueden ser de utilidad constituyen un número muy grande. Los láseres de colorante ofrecen ventajas obvias sobre fuentes de haz convencionales y monocromadores para el estudio de espectros de absorción óptica, debido a sus cualidades de intensidad, haz dirigido, ancho de banda estrecha y sintonizable. Su intensa radiación puede ser también aplicada para excitar estados energéticos seleccionados de átomos, iones, moléculas o sólidos, o ser una fuente invaluable en técnicas de espectroscopía no lineal. Diversas investigaciones en fotoquímica, biología a aún en medicina han sido influenciadas positivamente por su utilización.

Es imposible enumerar o aún listar en un espacio limitado y no es de significación en este trabajo, todas sus posibles aplicaciones. Estas pueden ser halladas en libros de la especialidad o en el Journal of Current Laser Abstracts, desde 1964.

En la referencia 10, Capítulo 6, es posible hallar un resumen de sus usos en distintas áreas desde sus comienzos hasta 1977.


Abril 1981

REFERENCIAS

- 1) A.P. Ivanov, *Opt. Spectrosc.* 8, 183 (1960)
- 2) E.G. Brock, P. Szavinsky, E. Hormats, H.C. Nedderman, D. Stirpe and F. Unterleitner, *J. Chem. Phys.* 35, 759 (1961)
- 3) S.G. Rautian and I.I. Sobel'Man, *Opt. Spectrosc.* 10, 65 (1961)
- 4) D.L. Stockman, W.R. Mallory and K.F. Tittle, *Procc. IEEE* 52, 318 (1964)
- 5) P.P. Sorokin and J.R. Lankard, *IBM J. Res Develop.* 10, 65 (1961)
- 6) F.P. Schafer, W. Schmidt and J. Volze, *Appl. Phys. Letters*, 9, 306 (1966)
- 7) Soffer y McFarland, *Appl. Phys. Letters*, 10, 266 (1967)
- 8) B.B. Snavely, F.P. Schafer, *Phys. Letters*, 28 A, 728 (1965)
- 9) O.G. Peterson, S.A. Tuccio, B.B. Snavely, *Appl. Phys. Letters*, 17, 245 (1970)
- 10) F.P. Schafer Ed. *Dye Lasers*, 2a. Ed. Pub. Springer-Verlag, Berlín (1977)
- 11) C.V.Shank and E.P. Ippen *Appl. Phys. Letters* 24, 373 (1974)
- 12) H. Kuhn, *Progress in the Chemistry of Organic Natural Products* Ed. por D.L. Zechmeister, 16, 17 (Spinger-Viena 1958-59, también en Ref. 10, p. 9.
- 13) O. Teschke, Andrew Dienes and John R. Whinnery - *IEEE J. Quantum Electron.* QE 12, 383 (1976)
- 14) J.B. Birks *Photophysics of Aromatics Molecules* Pub. Wiley-Interscience, London (1970)

- 15) J.B. Birks Ed. Organic Molecular Photophysics Pub. Wiley & Sons, London (1979)
- 16) J.B. Atkinson and Frank P. Pace, IEEE J. Quantum Electron., QE 9, 569 (1973)
- 17) Pierre Juramy, Pierre Flamant and Ives H. Meyer, IEEE J. Quantum Electron., QE 13, 855 (1977)
- 18) Q.H.F. Vrethen Opt. Commun. 3, 144 (1971)
- 19) E.R. Corney, D.W. Fahey and L.D. Scheerer, IEEE J. Quantum Electron. QE 16, 9 (1980)
- 20) H.L. Stover and W.H. Steier, Appl. Phys. Letters, 8, 91 (1966)
- 21) L.E. Erikson y A. Szabo, Appl. Phys. Letters, 18, 406 (1972)
- 22) Tatsuo Okada, Mitsuo Maeda and Yasushi Miyasoe, IEEE J. Quantum Electron, QE 15, 616, (1979)
- 23) Pierre Flamant and Gérard Mégie, IEEE J. Quantum Electron., QE 16, 653 (1980)
- 24) J. Pinard and S. Liberman, Opt. Commun., 20, 344 (1977)
- 25) H. Kogelnik and C.U. Shank, Appl. Phys. Letters, 18, 152 (1971)
- 26) P.P. Sorokin, J.R. Lankard, E.C. Hammond and V.L. Moruzzi, IBM J. Res. Develop. 11, 130 (1967)
- 27) P.P. Sorokin, J.R. Lankard, V.L. Moruzzi y E.C. Hammond, J. Chem. Phys. 48, 4726 (1968)
- 27-a) O.G. Peterson, J.P. Webb and W.C. Mc Colgin, J. Appl. Phys. 42, 1917 (1971)
- 28) W.W. Rigrod, J. Appl. Phys., 36, 2487 (1965)
- 29) T.W. Hansch, Appl. Opt., 11, 895 (1972)

- 30) Chinlon Lin, *J. Appl. Phys.*, 46, 4076 (1975)
- 31) R. Konig, G. Minkwitz and B Christor, *Opt. Commun.*, 32, 301 (1980)
- 32) A. Corney, J. Manners and C.E. Webb, *Opt. Commun.*, 31, 354 (1979)
- 33) V.I. Tomin, A.J. Alcock, W.J. Sarjeant and K.E. Leopold, *Opt. Commun.*, 28, 336 (1979)
- 34) O. Teschke and S. Ribeiro Teixeira, *Opt. Commun.*, 32, 287 (1980)
- 35) S.G. Dinev, I.G. Kaprinkov, K.A. Stankov and C. Radzewicz, *Opt. Commun.*, 32, 313 (1980)
- 36) P. Burlamacchi and F.H. Ranea Sandoval, *Opt. Commun.*, 31, 185 (1979)
- 37) L.O. Hocker, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 13, 548 (1977)
- 38) T.W. Hansh, A.L. Schawlow and P. Toschek, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 9, 553 (1973)
- 39) H.W. Kogelnik, E.P. Ippen, A. Dienes and C.V. Shank, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 8, 373 (1972)
- 40) L.D. Schearer, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 11, 935 (1975)
- 41) M.D. Levenson and G.L. Eesley, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 12, 259 (1976)
- 42) J.B. Marling, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 11, 822 (1975)
- 43) D.W. Fahey and L.D. Schearer, *IEEE J. Quantum Electron.*, QE 14, (1978)
- 44) M. Gallardo, R. Duchowicz, J.O. Tocho, H.F. Ranea Sandoval and M. Garavaglia, *IEEE J. Quantum Electron.* QE 15, 541 (1979)
- 45) E. Gallego Lluesma , Tesis Doctoral, Facultad de Ciencias Exactas Univ. Nac. de La Plata (1972)

- 46) A.A. Tagliaferri, Tesis Doctoral, Facultad de Ciencias Exactas, Univ. Nac. de La Plata (1972)
- 47) J.G. Reyna Almandos, Tesis Doctoral, Facultad de Ciencias Exactas, Univ. Nac. de La Plata (1980)
- 48) Aristotle Papayoanou, Rudolf G. Buser and Irwin M. Gumeiner, IEEE J. Quantum Electron., QE 9, 580 (1973)
- 49) R. Pappalardo, IEEE, J. Quantum Electron, QE 10, 897 (1974)
- 50) C.C. Davis and T.A. King, IEEE J. Quantum Electron., QE 8, 755 (1972)
- 51) Wataru Sasaki and Shazo Saito, Appl. Opt. 19, 5 (1980)
- 52) Clinton D. Harper and Martin Gundersen, Rev. Sci. Inst., 45, 400 (1974)
- 53) W.W. Simmons and R.S. Witte, IEEE J. Quantum Electron., QE 8, 724 (1972)
- 54) Manual del Láser de Colorante (Spectra Physics, Modelo 375)
- 55) M. Bass and J.I. Steingeld, IEEE J. Quantum Electron., QE 4, 53 (1968)
- 56) S.A. Tuccio and F.C. Strome, Jr., Appl. Opt. 11, 64 (1972)