

LASER DE CORANTE COM CAVIDADE INSTÁVEL EM RING  
BOMBÉADO POR UM LASER DE NITROGÊNIO

Sérgio Ribeiro Teixeira

Tese apresentada ao Instituto de Física  
"Gleb Wataghin" como pré-requisito par-  
cial para obtenção do grau de mestre em  
ciências.

Outubro, 1979

A

ReJane

## AGRADECIMENTOS

Agradeço ao Prof. Omar Teschke pela sua excelente orientação e amizade que muito contribuíram para a realização deste trabalho.

Sou grato ao Prof. Alvin Kiel pelas boas discussões, e apoio no decorrer deste trabalho.

A José Cícero Martins Brandão e a todo pessoal da seção de vidraria pelo apoio técnico prestado.

A Rosa Couto e Palmeira pela ajuda na revisão e preparação final do texto.

A todos os demais amigos e colegas que direta ou indiretamente contribuíram para que este trabalho chegasse ao fim.

Agradeço a CAPES pelo suporte financeiro que tornou possível a realização desta tese.

## RESUMO

Projetamos, construímos e analisamos uma nova opção no projeto de um laser de corante bombeado com um laser de nitrogênio. Trata-se de um laser com cavidade instável em ring. Eficiências de 40% foram medidas, com potências de saída de 160 kW para 500 kW de potência de bombeamento. Um modelo teórico foi desenvolvido para esta configuração. Este modelo foi baseado nas características geométricas da cavidade e nas propriedades dos corantes e, está em ótima concordância com os resultados experimentais obtidos.

## ABSTRACT

We design, build and analyse a new concept in the design of nitrogen pumped dye laser. It is a dye laser with unstable cavity in a ring geometry. Efficiencies up to 40% are measured when pumped with a 500 kW nitrogen laser. A new theoretical model is presented for this configuration in which only one travelling wave is present inside the cavity. The results are in good agreement with the experimental measured values.

## INDICE

INTRODUÇÃO -	1
CAPÍTULO I - Cavidades Óticas	
I-1 - Cavidades óticas ressonantes	3
I-2 - Comportamento dos modos numa cavidade	5
I-3 - Cavidades instáveis tipo confocal	12
CAPÍTULO II - Corantes Orgânicos	
II-1 - Corantes orgânicos	15
CAPÍTULO III - Lasers de Corante	
III-1 - Lasers de corante	24
III-2 - Configurações comumente utilizadas	26
CAPÍTULO IV - Cavidade Instável em Ring	
IV-1 - Cavidades instáveis para lasers de corante bombeados com laser de nitrogênio	36
IV-2 - Cavidade em ring instável	37
CAPÍTULO V - Aberrações e Astigmatismo	
V-1 - Astigmatismo	43
V-2 - Aberração introduzida por um espelho curvo em incidência oblíqua	44
V-3 - Astigmatismo introduzido por uma célula em ângulo de Brewster	45
V-4 - Compensação do astigmatismo	47
CAPÍTULO VI - Modelo Teórico e Resultados	
VI-1 - Considerações gerais	50
VI-2 - Propriedades geométricas da cavidade	52
VI-3 - Equações de transporte para fótons	55
VI-4 - Equações de balanço	56

VI-5 - Aproximação para soluções das equações do laser	57
VI-6 - Absorção do laser de nitrogênio pelo corante	59
VI-7 - Resultados	61
VI-8 - Característica do feixe de saída	66
CONCLUSÕES -	71
REFERÊNCIAS -	72

# INTRODUÇÃO



Lasers de corante se caracterizam pela possibilidade de sintonização numa faixa bastante larga do espectro.

Um ano depois da observação da ação de laser em corantes orgânicos por Sorokin e Lankard<sup>(38)</sup> e, independentemente por Shaefer, Schimidt e Volze<sup>(39)</sup>, Soffer e McFarland<sup>(40)</sup> mostraram que ao contrário dos lasers até então conhecidos, os de corante poderiam ser sintonizados continuamente numa banda larga do espectro visível. Desde então, o número de contribuições no campo de lasers de corante aumentou consideravelmente. Hoje, com estes lasers, podemos cobrir uma faixa do espectro que vai do ultravioleta próximo ao infravermelho longínquo (de 3000 Å a 9000 Å).

A largura de banda típica em que um laser de corante pode ser sintonizado varia entre  $50 \text{ cm}^{-1}$  e  $1000 \text{ cm}^{-1}$ . Um laser a gas, por exemplo, pode ser sintonizado dentro de uma faixa espectral de  $0.1 \text{ cm}^{-1}$ . Daí porque muitos pesquisadores<sup>(19,25,26,27)</sup> tem se dedicado aos estudos de novas formas e configurações para a obtenção de lasers de corante mais eficientes.

Siegman<sup>(6)</sup>, em 1965, propôs a utilização de cavidades óticas instáveis para sistemas de alto ganho como uma maneira de se extrair o máximo de energia armazenada no laser e de se obter um controle efetivo dos modos transversais que oscilam na cavidade. Estas cavidades introduzem altas perdas, desacoplando energia do sistema. Apenas sistemas de alto ganho (maior que 50% por passagem, como é o caso de corantes) podem utilizar cavidades instáveis. As perdas introduzidas pela cavidade são determinantes na seleção dos modos transversais, acarretando sua rápida formação, o que se torna vantajoso para lasers que operam com pulsos de curta duração.

Aliando as características de cavidades instáveis a dos corantes, é possível obter-se lasers de alta eficiência com feixes de saída bem colimados, de grande coerência e qualidade.

Neste trabalho apresentamos uma nova opção para lasers de corante. Construímos e operamos um laser de corante com cavidade instável em ring bombeado com um laser de nitrogênio.

No primeiro capítulo, abordamos, numa breve revisão, os problemas gerais de cavidades óticas estáveis e instáveis apresentando suas características. No segundo capítulo, apresentamos as propriedades físicas e fotofísicas dos corantes orgânicos. No terceiro capítulo, analisamos de uma maneira geral, algumas configurações de lasers de corante com ênfase nos bombeados por lasers de nitrogênio. O funcionamento e características gerais da cavidade instável em ring são apresentados no quarto capítulo. As aberrações e astigmatismo do feixe de laser introduzidos pelos espelhos e célula de corante são apresentados no quinto capítulo, onde derivamos uma expressão para o cálculo dos parâmetros relevantes para supressão destes problemas. O modelo teórico que foi desenvolvido especialmente para cavidade em ring, onde não é possível se assumir uma intensidade de laser uniforme dentro deste sistema, é apresentado no sexto capítulo. Este modelo é baseado nas características essenciais da cavidade, i.é., suas propriedades geométricas. Juntamente com o modelo apresentamos alguns resultados experimentais que julgamos de maior importância para caracterização deste trabalho. Por fim apresentamos nossas conclusões e sugestões para estudos futuros.

# CAPITULO I

## CAVIDADES ÓTICAS

## I.1 - CAVIDADES ÓTICAS RESSONANTES

Cavidades óticas ressonantes, como ilustra a figura (I-1.1), são formadas por dois espelhos planos ou curvos colocados a uma distância  $L$  um do outro.

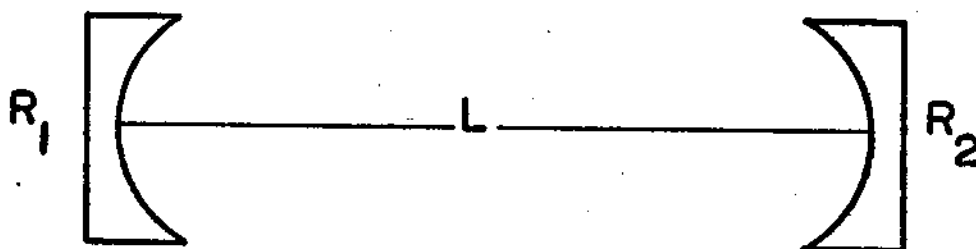


Fig.(I-1.1) - Cavidade ótica ressonante tipo Fabry-Perot com espelhos esféricos

Estas cavidades são de importância fundamental na construção de lasers e tem sido exaustivamente estudadas nos últimos anos (1,2,3).

As características fundamentais de uma cavidade ótica, em que as dimensões dos espelhos são suficientemente grandes quando comparadas com as áreas dos feixes que se propagam entre um e outro espelho, dependerão essencialmente dos raios de curvatura destes espelhos e da distância  $L$  de separação entre os mesmos. Neste caso negligenciamos efeitos de perda tais como, absorção ou espalhamento dos feixes pelo meio ativo do laser.

Uma cavidade ótica ressonante é equivalente a um sistema periódico de lentes dentro do qual o feixe de luz tem sua trajetória

tória repetida num percurso compreendido entre a propagação por três lentes. Na cavidade ótica isto corresponde a viagem de ida e volta ao mesmo espelho<sup>(1)</sup>. Desta maneira, toda análise do comportamento de feixes gaussianos numa cavidade ótica pode ser feita através do sistema periódico de lentes como ilustra a figura (I-1.2).

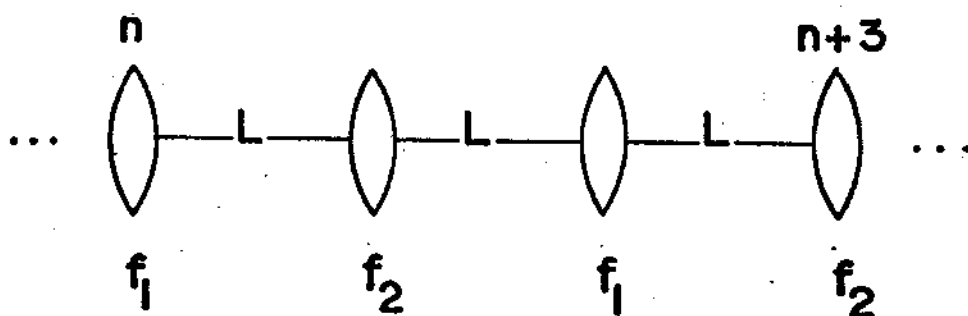


Fig.(I-1.2) - Guia de onda de lentes - sistema equivalente à cavidade ótica

Se  $f_1 = R_1/2$  e  $f_2 = R_2/2$  são respectivamente os focos das lentes da figura (I-1.2) e  $L$  a separação entre elas, a condição para que exista solução estável, i.é., para que os modos permaneçam confinados no guia de onda de lentes, é dada pela condição<sup>(1)</sup>

$$0 \leq g_1 g_2 \leq 1 \quad (\text{I-1.1})$$

onde  $g_1 = 1 - (L/R_1)$  e  $g_2 = 1 - (L/R_2)$ .

Os parâmetros  $g_1$  e  $g_2$  sintetizam as propriedades geométricas da cavidade ótica quanto a existência de soluções estáveis para modos gaussianos no seu interior. Cada cavidade pode ser representada por um ponto no plano  $(g_1, g_2)$  como mostra figura (I-1.3).

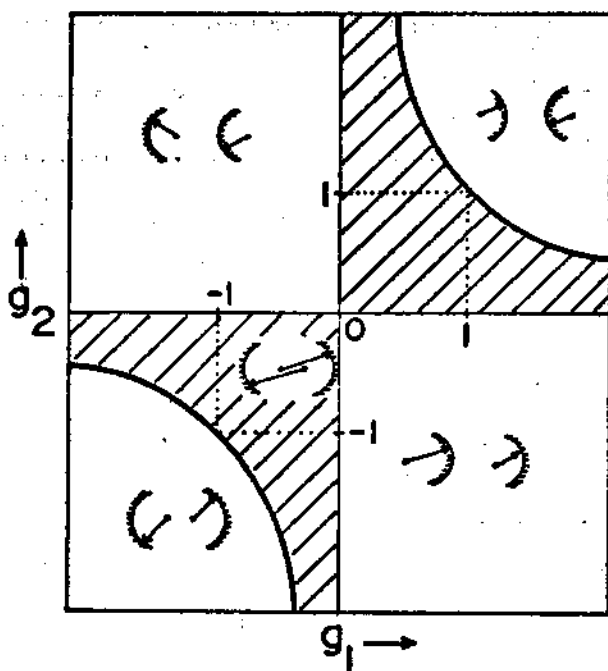


Fig.(I-1.3) - Diagrama de estabilidade

O diagrama apresentado na figura (I-1.3) está dividido em duas regiões, a região de estabilidade, representada pela área achuriada da figura, e a região de instabilidade. Notamos da equação (I-1.1) que os limites da região de estabilidade são ramos de hipérbole.

Nas cavidades óticas estáveis, o deslocamento transversal da trajetória dos raios luminosos pode variar com a distância, mas os feixes permanecerão confinados na cavidade. Por outro lado, em cavidades que se situam fora da região de estabilidade, o deslocamento transversal dos feixes é divergente e as perdas por difração assim como as dimensões dos espelhos se tornam importantes.

## I.2 - COMPORTAMENTO DOS MODOS NUMA CAVIDADE

A análise dos modos em cavidades óticas é um problema

complexo, porém algumas simplificações são possíveis, ficando o problema matematicamente tratável, possibilitando a obtenção de alguns resultados físicos. As simplificações envolvem essencialmente a natureza quase ótica do problema e são especificamente: 1) as dimensões da cavidade são grandes comparadas com o comprimento de onda da radiação, 2) os campos dentro da cavidade são essencialmente campos eletromagnéticos transversais (TEM). Com estas suposições e levando em conta os efeitos do tamanho dos espelhos, o problema torna-se similar ao problema de difração por múltiplas aberturas<sup>(1)</sup>, veja fig. (I-2.1). Assim podemos utilizar a equação integral de Fresnel-Kirchhoff, a qual relaciona a amplitude da onda complexa nos dois espelhos e é dada por<sup>(4)</sup>

$$U'(x,y) = \iint k(x,y : x',y') U(x',y') dx' dy' \quad (I-2.1)$$

onde  $U(x',y')$  é a amplitude de onda complexa no plano de entrada do sistema  $(x',y')$ ,  $k(x,y : x',y')$  é o Kernel da equação integral que propaga a amplitude de onda complexa do plano de entrada ao plano de saída  $(x,y)$  do sistema e  $U'(x,y)$  é a amplitude de onda complexa no plano de saída do sistema, veja figura (I-2.1).

Se  $U(x,y)$  for um modo transversal de cavidade, depois de múltiplas reflexões nos espelhos,  $U'(x,y)$  será igual a  $U(x,y)$  a menos de um fator constante  $\gamma$ . Neste caso podemos escrever a equação (I-2.1) como

$$\gamma U(x,y) = \iint k(x,y : x',y') U(x,y) dx' dy' \quad (I-2.2)$$

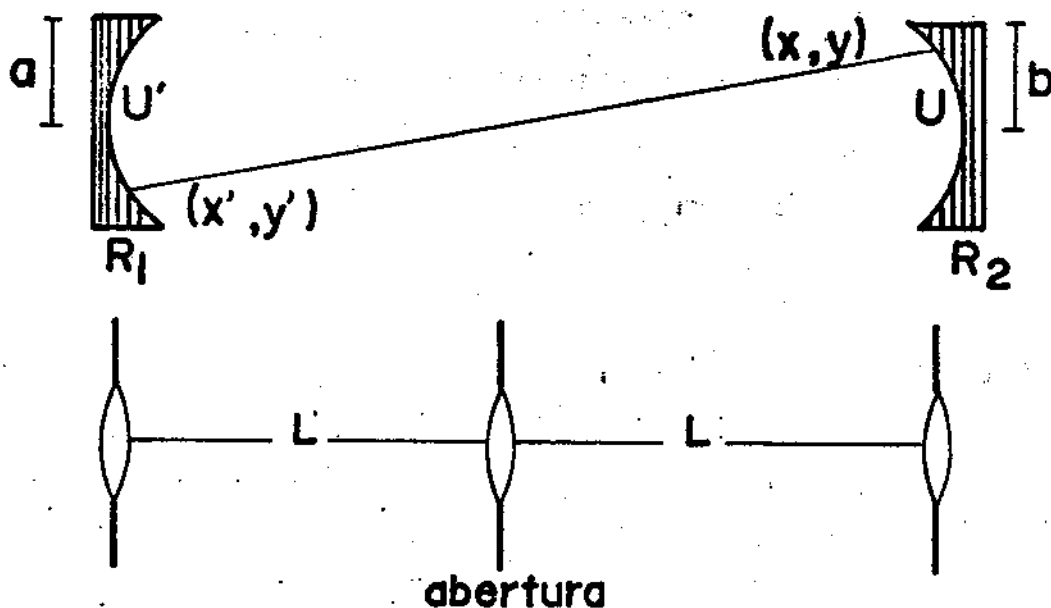


Fig.(I-2.1)-cavidade ótica mostrando plano de entrada e de saída e sistema equivalente de múltiplas aberturas

Esta é a equação de autovalores para o problema. Na realidade existem certos conjuntos de soluções  $U_{nm}(x,y)$  associados com autovalores  $\gamma_{nm}$  que satisfazem a equação (I-2.2). Os autovalores  $\gamma_{nm}$  levam em conta as perdas de energia dos modos na cavidade,  $|\gamma_{nm}|^2 < 1$ , e seus deslocamentos de fase. Especificamente, a transmissão de potência na cavidade ótica é dada por  $|\gamma_{nm}|^2$ , e a potência perdida por passagem para um dado modo pode ser escrita como (6)

$$L_{nm} = 1 - |\gamma_{nm}|^2 \quad (I-2.3)$$

Quando a distância entre os espelhos é grande comparada com suas dimensões e quando estes espelhos possuírem raios de curvatura muito grandes comparados a distância de separação  $L$ , as



coordenadas cartesianas do vetor campo elétrico serão essencialmente desacopladas, assim que podemos escrever equações separadas para cada componente. Estas equações produzirão soluções para os modos da cavidade que serão uniformemente polarizadas em uma direção. Outras polarizações podem ser obtidas por superposição linear destas soluções.

Fox e Li<sup>(7)</sup> propuseram uma solução numérica, onde a função  $U_n(x,y)$  é escolhida arbitrariamente, como por exemplo a iluminação uniforme de um espelho, e a nova função obtida  $U_{n+1}(x,y)$  é utilizada para um novo cálculo num processo iterativo. O processo continua até que  $U_{n+1}$  converge, i.é.,  $|U_{n+1}/U_n| = |\gamma|$ . Na figura (I-2.2) mostramos o resultado obtido por Fox e Li<sup>(7)</sup> para a flutuação do campo, i.é.,  $|U_{n+1}/U_n|$  calculada no centro de espelho, e graficada em função do número de iterações.

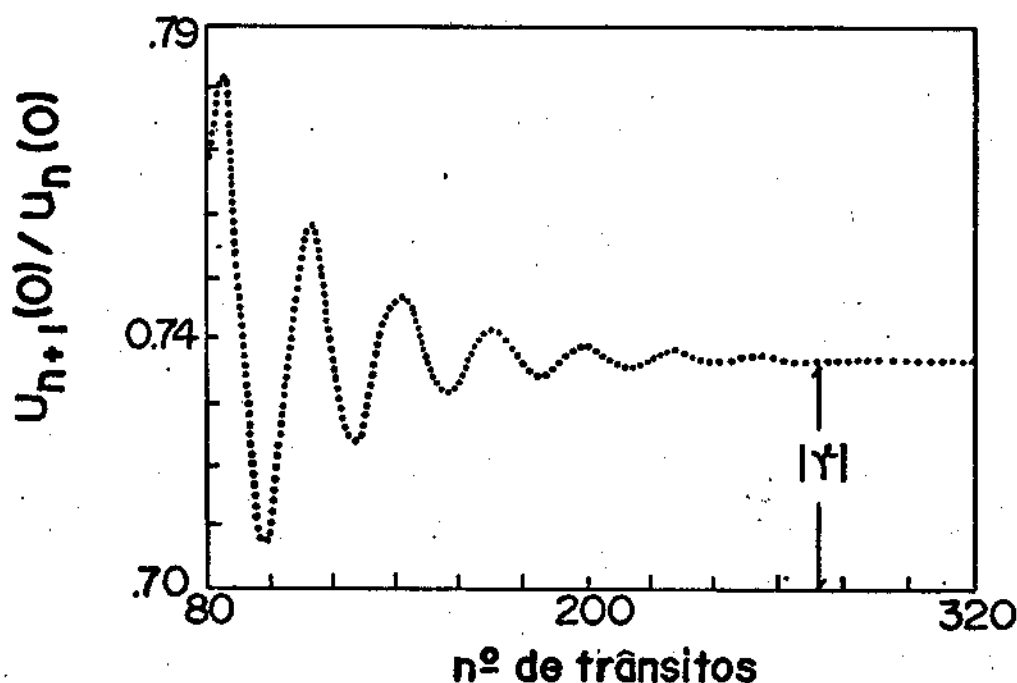


Fig. (I-2.2) - Flutuação da amplitude do campo com função do número de transitos.

Note-se que depois de um número muito grande de iterações  $|U_{n+1}|$  converge para um valor  $|U_n|$ , a menos de uma constante multiplicativa  $|\gamma|$ . Este grande número de trânsitos para formação de um modo transversal é uma característica de cavidades estáveis com poucas perdas. A formação de um modo transversal em cavidades instáveis implica num número de trânsitos muito menor, como foi provado na ref. (21).

Embora para alguns casos, o problema de se encontrar as auto-funções da equação (I-2.2) seja simples<sup>(2)</sup>, na região de instabilidade, o Kernel da equação integral torna-se muito difícil de tratar matematicamente, e os cálculos para estes casos ficam muito trabalhosos. Porém, é possível obter-se informações importantes por intermédio de aproximações baseadas na ótica geométrica<sup>(5,6,8,20)</sup>. Estas aproximações conseguem explicar o comportamento das cavidades instáveis, com ênfase nas suas características físicas essenciais, conseguindo resultados em boa concordância com os experimentos. A aproximação mais simples foi formulada por Siegman<sup>(6)</sup> para estudar o comportamento das perdas de uma cavidade instável em função do número de Fresnel. Estas perdas significam a quantidade de energia acoplada para fora da cavidade quando o tamanho dos espelhos ou sua distância de separação variam para um mesmo comprimento de onda, i.é., uma variação do número de Fresnel  $N_F = a^2/L\lambda$  onde  $L$  é o comprimento da cavidade,  $a$  é o semi-diâmetro dos espelhos e  $\lambda$  o comprimento de onda que oscila na cavidade. A análise é baseada na formação de imagens da ótica-geométrica<sup>(9)</sup> para uma cavidade do tipo mostrado na figura (I-2.3).

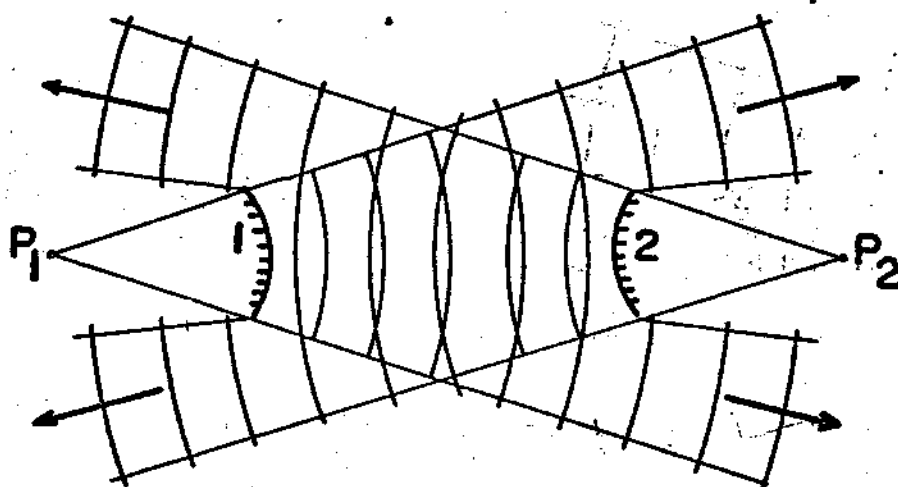


Fig. (I-2.3) - Cavidade instável com espelhos convexos

Para esta geometria o fator de transmissão de energia para espelhos circulares é dado por<sup>(6)</sup>

$$\Gamma = \frac{r_1^2 r_2^2}{(r_1 + 1)^2 (r_2 + 1)^2} \quad (\text{I-2.4})$$

onde  $r_1$  e  $r_2$  são as curvaturas dos espelhos 1 e 2 respectivamente, figura (I-2.3), e a energia perdida por passagem é dada por<sup>(6)</sup>

$$\mathcal{L} = 1 - \Gamma \quad (\text{I-2.5})$$

Os resultados obtidos para perdas em função do número de Fresnel para aproximação de Siegman<sup>(6)</sup> e Fox e Li<sup>(7)</sup> são mostrados na figura (I-2.4) abaixo.

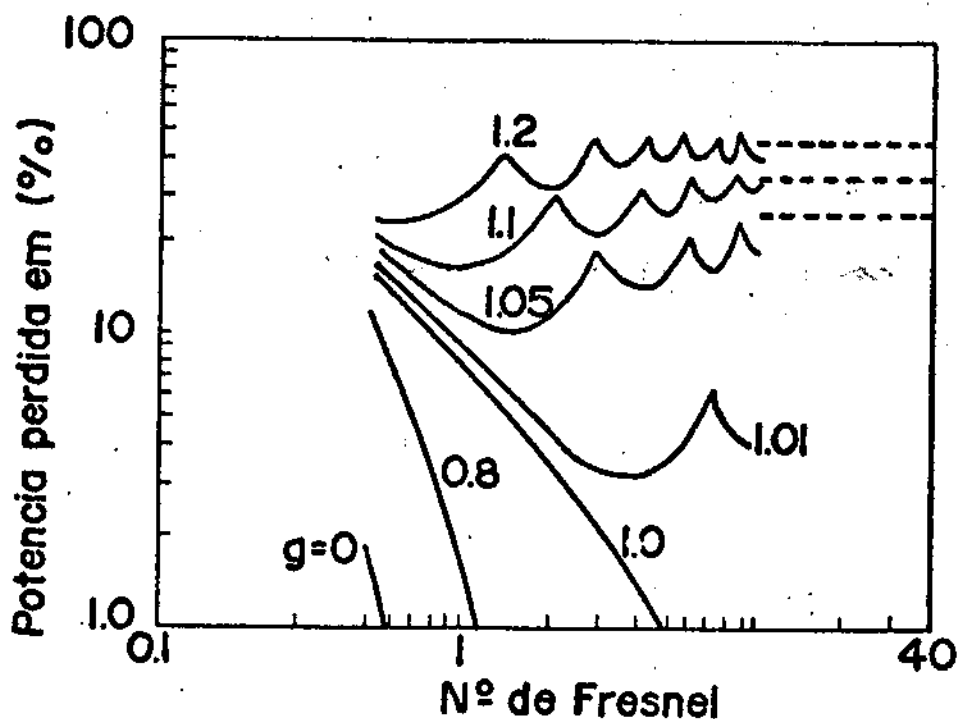


Fig.(I-2.4) - Perdas por difração em função do número de Fresnel para aproximação de Siegman e Fox e Li.

Na figura (I-2.4) acima as curvas cheias representam o resultado obtido por Fox e Li<sup>(7)</sup> para cavidades com diferentes parâmetros  $g = g_1 g_2$ , e as linhas tracejadas são referentes a aproximação feita por Siegman<sup>(6)</sup>.

Para cavidades estáveis, quando número de Fresnel se aproxima da unidade as perdas de energia por difração se aproximam de zero. Na região de instabilidade, estas perdas a medida que  $N_F$  cresce, começam a oscilar periodicamente. Esta oscilação é devida a difração de Fresnel que é levada em conta nesta aproximação. Por outro lado, na aproximação geométrica<sup>(6)</sup>, os efeitos da difração de Fresnel não são levados em conta, e o resultado é aproximadamente

uma média dos resultados obtidos por Fox e Li<sup>(7)</sup>.

### I-3 - CAVIDADES INSTÁVEIS TIPO CONFOCAL

Cavidades óticas instáveis tipo confocal ou telescópicas, como são chamadas, vem sendo empregadas em lasers de  $\text{CO}_2$ <sup>(10)</sup>, Nd:Yag<sup>(11)</sup> e em lasers de corantes bombeados com lâmpada de Flash<sup>(12)</sup>. Estas cavidades dividem-se em duas categorias. Cavidades confocais do ramo positivo e negativo como ilustra a figura (I-3.1).

O modo fundamental numa cavidade instável confocal é uma onda plana que se apresenta na forma de um anel uniformemente iluminado como se pode notar da figura (I-3.1) abaixo.

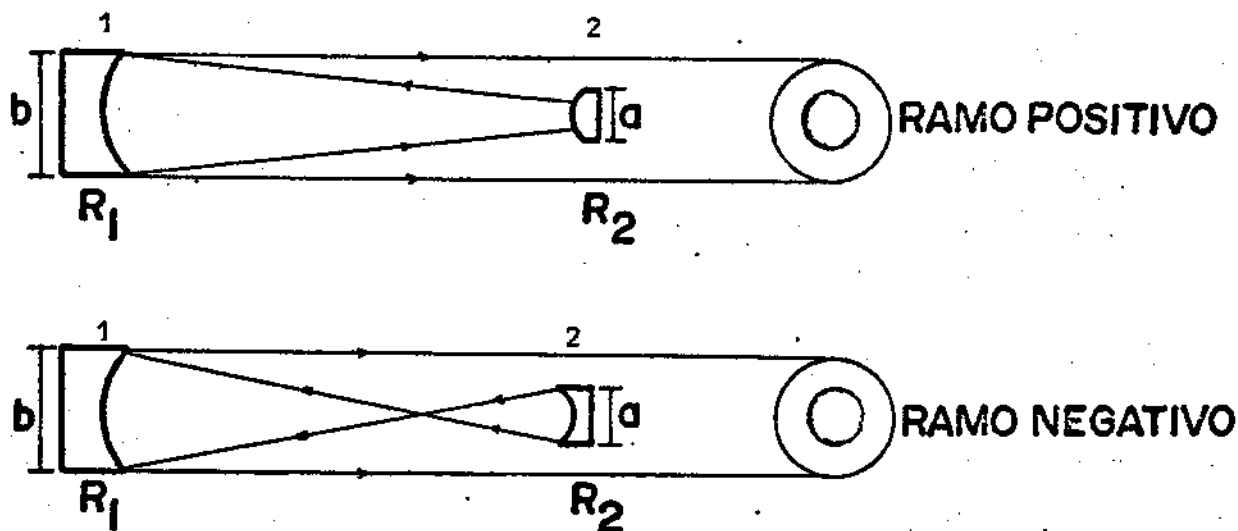


Fig. (I-3.1) - Cavidades Confocais do ramo positivo e negativo

Siegman e Arrathoon<sup>(13)</sup> mostraram que a fração de acoplamento de saída numa cavidade confocal instável é dada por

$$\ell = 1 - \frac{1}{M^2} \quad \text{(I-3.1)}$$

onde  $M$  é a magnificação do sistema telescópico e é definido como a razão entre os raios dos espelhos,  $M = R_1/R_2$  ou, como a razão de seus diâmetros <sup>(14)</sup>,  $M = b/a$ , como é mostrado na figura (I-3.1).

O acoplamento de saída pode oscilar em torno do valor médio devido aos efeitos da difração de Fresnel, veja figura (I-2.4), e um argumento intuitivo pode ser usado para a localização do ponto ótimo de acoplamento quando temos pequenos efeitos de difração.

Desde que a onda que parte do espelho 1, numa cavidade confocal é plana, a aproximação geométrica para o modo de ordem mais baixa assegura que existirá um mínimo para difração de Fresnel no centro do espelho 2 quando o número de Fresnel  $N_F$  for um inteiro par. Isto terá o efeito de reduzir a realimentação para dentro da cavidade, aumentando o acoplamento de saída. Por outro lado, a característica da distribuição de intensidades do primeiro modo de ordem mais alta na cavidade é a de possuir um mínimo no centro do segundo espelho com uma intensidade crescente ao seu redor, e é possível que a operação a números de Fresnel inteiros pares aumente a probabilidade de oscilação de um segundo modo transversal resultando numa baixa estabilidade no acoplamento de saída do laser. Quando a operação for a números de Fresnel inteiros ímpares, o acoplamento de saída possuirá um mínimo resultando num máximo de intensidade no centro do espelho 2 aumentando assim a realimentação para dentro da cavidade. A distribuição de intensidades no segundo espelho ficará muito próxima da distribuição de intensidades características do modo fundamental implicando num crescimento da probabilidade de controle dos modos transversais. Embora, exista um mínimo no acoplamento de saída quando  $N_F$  é um inteiro ímpar, este mínimo não é intolerável para se obter um perfeito acoplamen-

to da saída, veja figura (I-2.4), e nestes casos pode-se conseguir feixes de saída de boa qualidade e de grande estabilidade.

Outros tipos de cavidades com características confo-  
cais, e próprias para aplicação em lasers de corante, vem sendo es-  
tudadas (15,16,17), são as chamadas cavidades instáveis em ring, co-  
mo ilustra a figura (I-3.2).

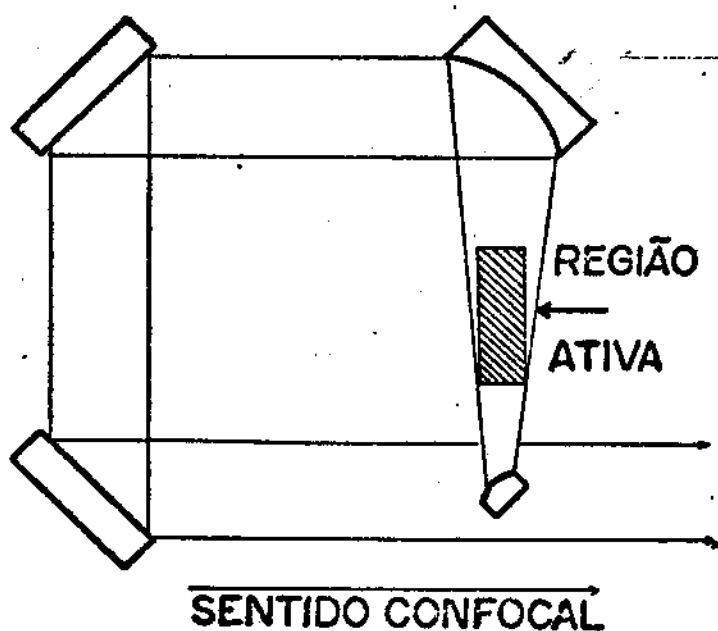


Fig.(I-3.2) - Cavidade em ring instável

Dependendo da localização da região ativa, é possível pelas características geométricas da cavidade, suprimir a oscilação em um dos sentidos, obtendo-se apenas uma onda viajante na direção confocal da cavidade, sem a necessidade de se usar elementos óticos tais como, rotadores de Faraday e outros, para se obter operação unidirecional. A operação unidirecional oferece uma série de vantagens em ring lasers (18,19) como veremos no capítulo IV, e além disto torna a cavidade própria para a obtenção de oscilação em modo axial único.

# CAPITULO II.

## CORANTES ORGÂNICOS



## II.1 - CORANTES ORGÂNICOS

Corantes orgânicos são compostos químicos caracterizados por possuírem uma larga banda de absorção e fluorescência na região de 500 a 4000 nm do espectro eletro-magnético. Estes compostos possuem um sistema de ligação conjugada, ié, ligas simples e duplas alternadas. As ligações simples são formadas por elétrons  $\sigma$ , e as duplas além de possuírem elétrons  $\sigma$  possuem também elétrons  $\pi$ . Uma ilustração destas ligações é mostrada na figura (II-1.1).

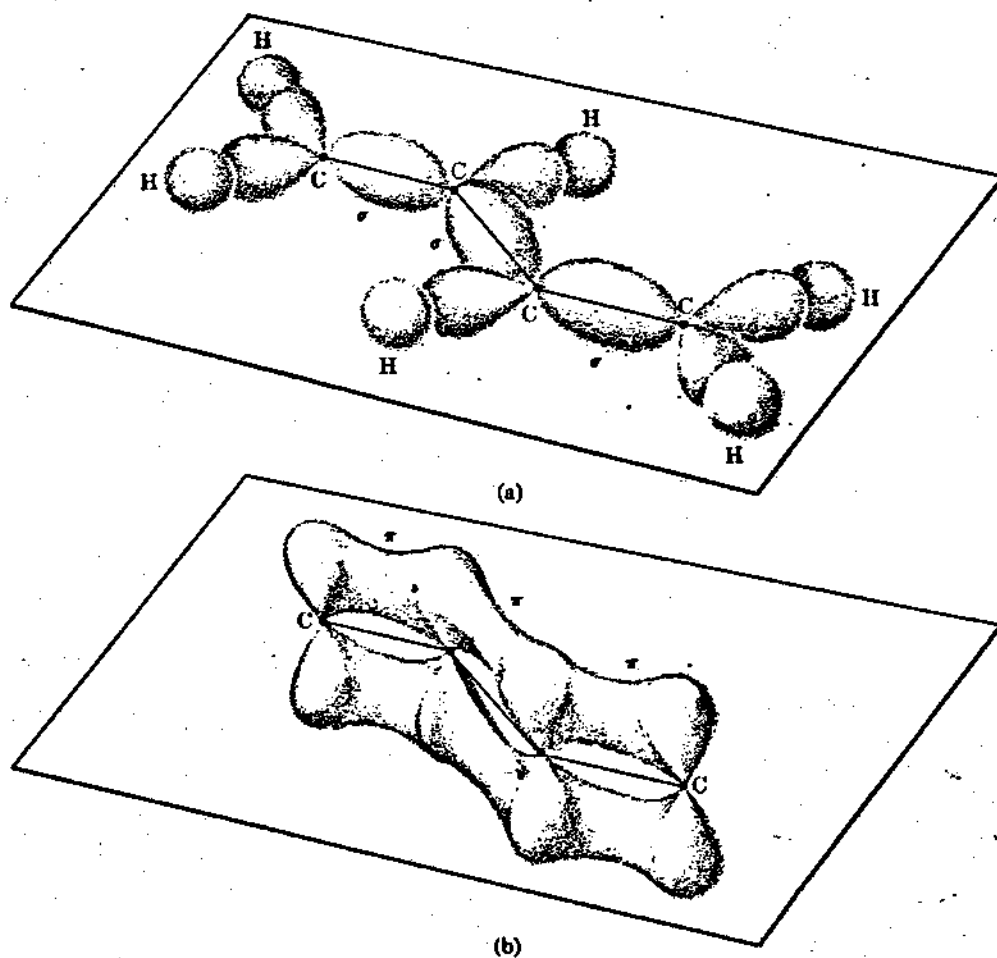


Fig. (II-1.1) - Distribuição eletrônica no butadieno - a) ligações  $\sigma$  localizadas e b) ligações  $\pi$  não localizadas.

A característica dos corantes orgânicos de absorverem e emitirem luz é determinada pela presença da cadeia de átomos com ligas simples e duplas alternadas, chamada de grupo cromóforo. Este grupo é o mesmo para uma mesma família de corantes, veja figura (II-1.2). A distinção entre os corantes de uma mesma família é feita a partir de radicais que se ligam ao grupo cromóforo completando a molécula, e que são diferentes em cada corante da mesma família.

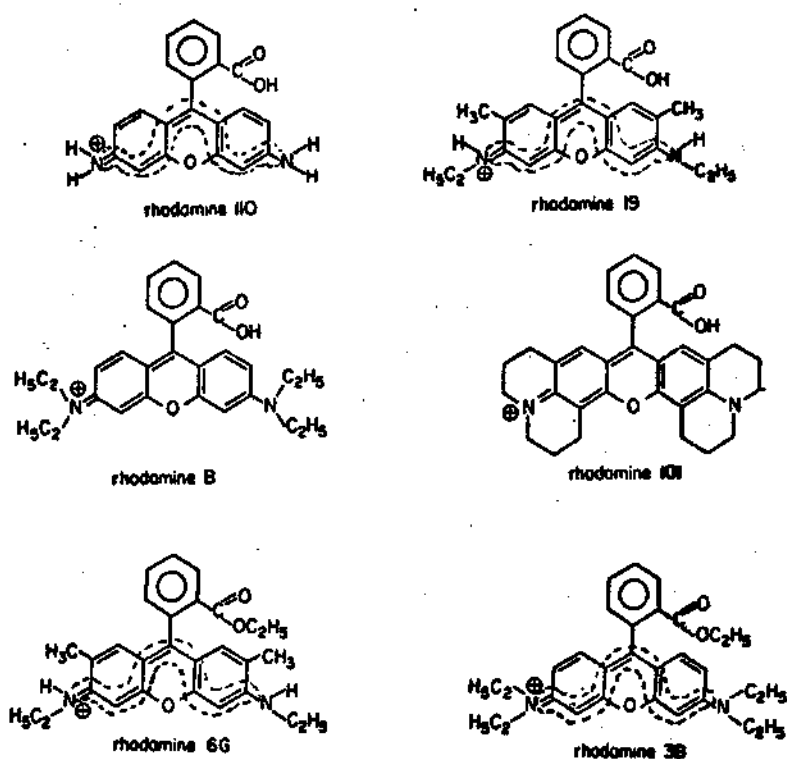


Fig.(II-1.2) - Rhodamínas - mostrando a cadeia formadora do grupo cromóforo, linhas pontilhadas.

Os elétrons  $\pi$ , que se movimentam "quase que livremente" pela cadeia de átomos que formam o grupo cromóforo, são os responsáveis pela absorção e emissão de luz que caracterizam a molécula.

Para um dado comprimento  $L$  da cadeia que forma o grupo cromóforo, o potencial ao qual os elétrons estão vinculados pode

ser aproximado pela seguinte forma, veja figura (II-1.3).

$$V(x) = 0 \quad \text{para} \quad 0 \leq x \leq L \quad (\text{II-1.1})$$

$$V(x) = \infty \quad \text{para} \quad 0 \geq x \geq L$$

Com este modelo simples nós podemos calcular as autofunções  $\psi_n$  para estes elétrons a partir da equação de Schrödinger, ou seja

$$\psi_n(x) = \sqrt{\frac{2}{L}} \text{sen} \left( \frac{n\pi x}{L} \right) \quad \text{p/ } 0 \leq x \leq L \quad (\text{II-1.2})$$

com autovalores

$$E_n = \frac{h^2 n^2}{8mL^2} \quad \text{p/ } n = 1, 2, 3, \dots \quad (\text{II-1.3})$$

onde  $h$  é a constante de Planck,  $n$  o número quântico corresponde ao nível eletrônico de energia,  $m$  é a massa do elétron e  $L$  o comprimento da cadeia do grupo cromóforo.

De acordo com o princípio de exclusão de Pauli podemos colocar dois elétrons com spins anti-paralelos em cada nível de energia. A cadeia de átomos que forma o grupo cromóforo contribui com  $N = 2j$  elétrons onde  $j$  é o número de ligações duplas existentes na mesma.

Assim teremos os  $j$  primeiros níveis de energia completamente preenchidos para a molécula no estado fundamental. Quando excitamos um elétron ao nível superior desocupado, a energia mínima necessária para este processo será dada por

$$\Delta E = E_{n+1} - E_n = \frac{h^2}{8mL^2} \cdot (N+1) \quad (\text{II-1.4})$$

onde  $N$  é o número de elétrons  $\pi$  da molécula.

Esta diferença de energia corresponde a um comprimento de onda

$$\lambda = \frac{8mc}{h} \frac{L^2}{N+1} \quad (\text{II.1-5})$$

Este é o maior comprimento de onda que a molécula pode absorver através de transições eletrônicas.

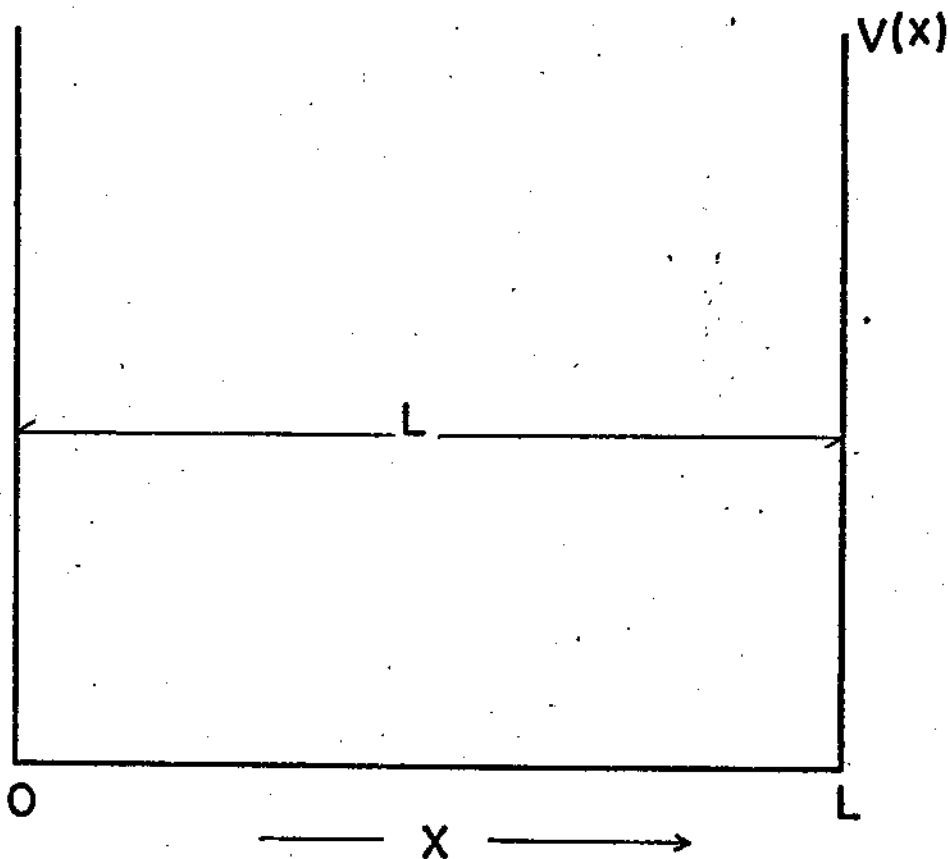


Fig.(II-1-3) - Potencial a que estão vinculados os elétrons no grupo cromóforo - modelo de elétrons livres.

Em primeira aproximação o modelo de elétrons livres indica que a posição da banda de absorção é determinada pelo comprimento  $L$  do grupo cromóforo. Outra conclusão importante deste modelo é a posição relativa dos níveis singlets e triplets da molécula.

No estado fundamental os  $N/2$  níveis eletrônicos da molécula estão preenchidos. Os spins dos elétrons que ocupam o mesmo nível eletrônico são obrigatoriamente anti-paralelos, resultando num spin total  $S = 0$ . Quando um dos elétrons do estado fundamental é promovido ao estado superior desocupado mais próximo poderemos ter spin total resultante  $S = 0$  ou  $S = 1$ . Para  $S = 0$  nós temos os estados singlets e para  $S = 1$  nós temos os estados triplets.

Pela formulação de Dirac do princípio de exclusão de Pauli, a função de onda total, produto da parte espacial e da parte de spin, deve ser antissimétrica com respeito a troca de dois elétrons. Construindo as funções de onda para os estados singlets,  $\psi_s$ , e triplets  $\psi_{T,1}$ ,  $\psi_{T,0}$  e  $\psi_{T,-1}$  obtemos

$$\psi_s = \{\psi_m(1)\psi_n(2) + \psi_n(1)\psi_m(2)\} \{\mathcal{L}(1)\beta(2) - \mathcal{L}(2)\beta(1)\} \quad (\text{II-1.6})$$

$$\psi_{T,1} = \{\psi_m(1)\psi_n(2) - \psi_n(1)\psi_m(2)\} \{\mathcal{L}(1)\mathcal{L}(2)\}$$

$$\psi_{T,0} = \{\psi_m(1)\psi_n(2) - \psi_n(1)\psi_m(2)\} \{\mathcal{L}(1)\beta(2) + \mathcal{L}(2)\beta(1)\} \quad (\text{II-1.7})$$

$$\psi_{T,-1} = \{\psi_m(1)\psi_n(2) - \psi_n(1)\psi_m(2)\} \{\beta(1)\beta(2)\}$$

onde  $\mathcal{L}$  e  $\beta$  são respectivamente os estados de spins  $+1/2$  e  $-1/2$  e 1 e 2 denotam os dois elétrons em questão.

Usando a teoria de perturbação em primeira ordem vemos que a contribuição relativa a repulsão coulombiana é maior no estado singlet que nos estados triplets. Também, a probabilidade de se encontrar um elétron junto do outro é maior no estado singlet que nos estados triplets. Assim os estados singlets possuirão energia maior que os estados triplets.

O esquema de níveis de energia de uma molécula de corante é mostrado na figura (II-1.4).

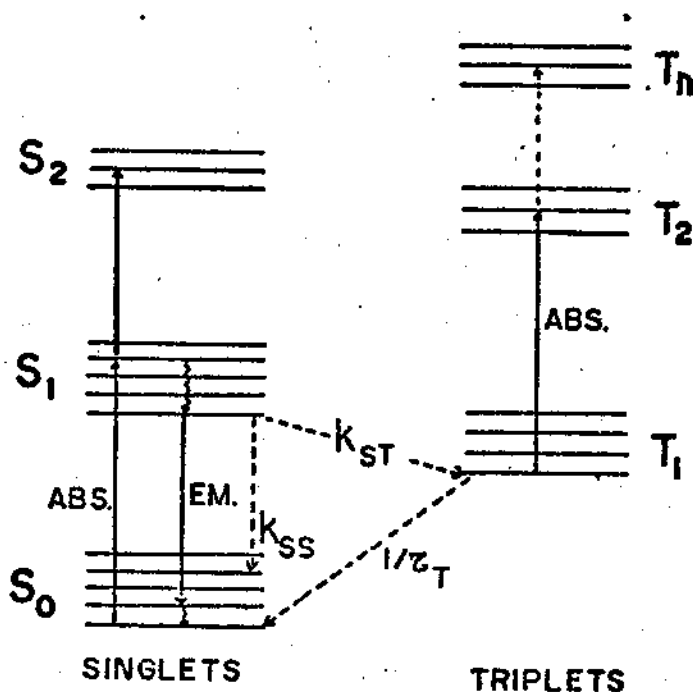


Fig.(II-1.4) - Esquemas de níveis de energia para uma molécula de corante

Na figura (II-1.4) as linhas sólidas representam absorção de luz de  $S_0 \rightarrow S_1$ , chamada banda principal, e de  $S_0 \rightarrow S_2$ . A transição  $T_1 \rightarrow T_2$  também pode existir.  $K_{SS}$  representa a taxa de decaimento não radiativo de  $S_1 \rightarrow S_0$  e  $K_{ST}$  é a taxa de transição não radioativa entre os estados  $S_1$  e  $T_1$ , a chamada conversão interna dos estados  $S_1$  e  $T_1$ .  $\tau$  e  $\tau_T$  representam os tempos de vida do estado singlet e triplet respectivamente.

Um outro resultado do modelo de elétrons livres é o de não serem permitidas transições radioativas entre os estados triplet e singlet pois as partes de spin de suas autofunções são ortogonais. Entretanto se observa uma fraca transição entre  $T_1$  e

$S_0$ , devido a efeitos como acoplamento spin-orbita. Na tabela (II-1.1) abaixo apresentamos os valores das constantes físico-químicas para Rodamina 6G.

Tabela (II-1.1) - Constantes físico-químicas para Rd 6G<sup>(22)</sup>

Símbolo	constante	valor
$\tau$	Tempo de vida de $S_1$	$\approx 3.0$ ns
$\tau_2$	Tempo de vida de $S_2$	$\approx 0.3$ ps
$\tau_T$	Tempo de vida de $T_1$	$\approx 250$ ns
$k_{ST}$	Taxa de converção interna	$\approx 250$ ns <sup>-1</sup>
$\tau_{Th1}$	Relaxação interna de $S_1$	$\approx 0.3$ ps
$\tau_{Th2}$	Relaxação interna de $S_2$	$\approx 0.3$ ps

Cada nível eletrônico na figura (II-1.4) corresponde a uma banda composta de um contínuo de níveis vibracionais e rotacionais da molécula. A energia de absorção mais baixa é devida a absorção do estado fundamental  $S_0$  ao primeiro estado excitado  $S_1$ .

Esta grande absorção usualmente na região visível do espectro é responsável pela propriedade dos corantes em colorir outras substâncias, pois a molécula absorve e emite luz visível. Na figura (II-1.5) abaixo mostramos o espectro de absorção e fluorescência de um dos corantes comumente usados, Rd 6G.

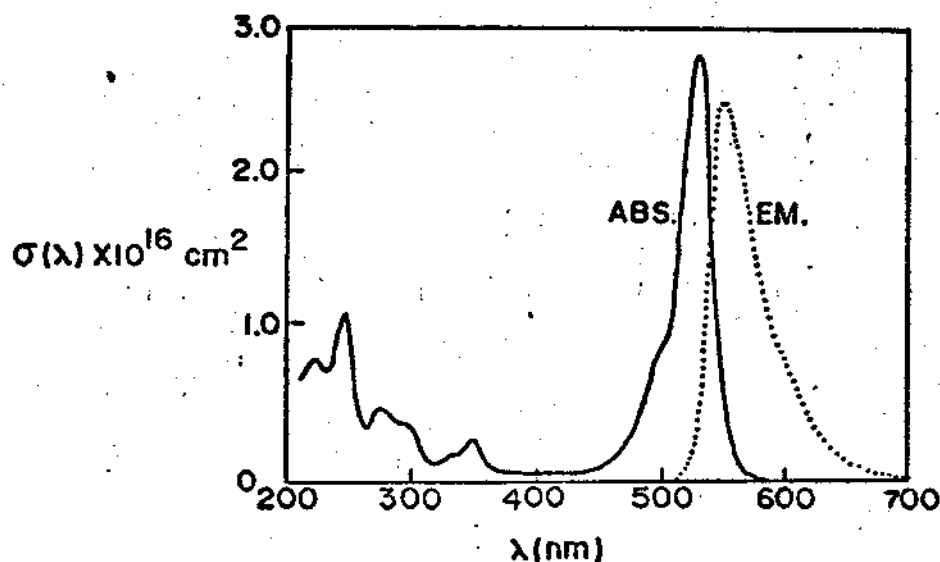


Fig.(II-1.V) - Espectro de absorção e emissão da Rd 6G em etanol

Devemos introduzir neste momento o conceito de eficiência quântica, que é uma medida da razão entre os fótons usados para excitar a solução de corante e os fótons novamente emitidos por ela.

A distribuição espectral da luz emitida espontaneamente é denominada  $E(\lambda)$  e é normalizada de tal forma que  $\int_0^{\infty} E(\lambda) d\lambda = \phi$ , onde  $\phi$  é a eficiência quântica. Outra maneira de definir esta eficiência é utilizar a razão entre os tempos de relaxação totais das moléculas, incluindo todos os processos de decaimento. Se  $\tau_1$  é o tempo de vida total da fluorescência então

$$\tau_1^{-1} = \tau_{1r}^{-1} + K_{SS} + K_{ST} \quad (\text{II-1.8})$$

onde  $\tau_{1r}$  é o tempo de vida radiativo de  $S_1$ . A eficiência quântica está relacionada com este tempo de decaimento por:



$$\phi = \frac{\tau_{1r}^{-1}}{\tau_{1r}^{-1} + K_{SS} + K_{ST}} = \frac{\tau_1}{\tau_{1r}} \quad (\text{II-1.9})$$

Os corantes utilizados como meio ativo para laser devem possuir eficiências quânticas altas ou até mesmo iguais a unidade, afim de minimizar os efeitos de depopulação não radiativa do estado excitado  $S_1$ .

A superposição entre as bandas de absorção (banda principal) e de emissão que vemos na figura (II-1.5) é devida ao deslocamento Stokes da fluorescência, e o grau desta superposição é determinado pela quantidade deste deslocamento. Assim, quanto maior o deslocamento Stokes menor a superposição entre bandas. É possível em alguns casos, através da utilização de solventes mais complexos, remover totalmente os efeitos de superposição entre as bandas de absorção e fluorescência. Com isto a auto absorção do laser pelo meio ativo deixa de existir e a sintonização para comprimentos de onda mais curtos na banda de fluorescência pode ocorrer sem perdas. Shank et al<sup>(28)</sup> usando 4-methyl-umbelliferone em solução ácida, conseguiram uma largura de banda de sintonização de 1800Å, do U.V. próximo ao amarelo.

# CAPITULO III

## LASERS DE CORANTE

### III-1 - LASERS DE CORANTE

A importância dos lasers de corantes vem da grande possibilidade de sintonização, usualmente da ordem de centenas de Angstrons, e do afinamento espectral quando um elemento seletivo de frequências, como uma grade de difração ou um prisma, é inserido na cavidade.

Um laser de corante com uma cavidade formada por espelhos que refletem uma banda larga, normalmente oscila com uma largura espectral da ordem de 50 a 100Å. Quando um elemento seletivo é inserido na cavidade a largura da banda de oscilação pode ser reduzida a pequenas frações de Angstrons sem muita perda de potência. Uma ilustração é mostrada na figura (III-1.1).

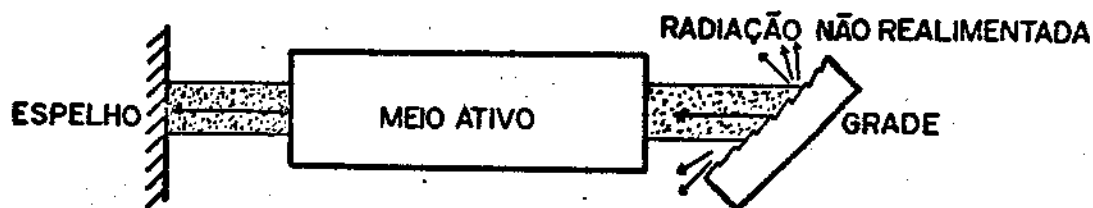


Fig.(III-1.1) - Cavidade com um espelho e uma grade de difração para sintonização do laser

O  $Q$  da cavidade é alto somente para o comprimento de onda que retorna para dentro da cavidade, e muito baixo para os que são dispersados pela grade.

O alargamento homogêneo em lasers de corante é um mecanismo físico, o qual permite que uma grande quantidade de radia

ção seja canalizada numa banda muito estreita de oscilação. Normalmente uma molécula de corante é excitada a um estado superior correspondente a frequência ótica da fonte de bombeamento. A emissão espontânea e estimulada ocorrem num intervalo de comprimento de onda mais longo que o de excitação de acordo com o princípio de Franck-Condon.

Na figura (III-1.2) mostramos um diagrama de níveis energéticos no qual as moléculas são excitadas ao primeiro nível singlet  $S_1$ . Após a excitação ótica, a termalização dos níveis toma lugar, criando um equilíbrio dinâmico no qual ambos estados, excitado e fundamental, estarão separadamente em equilíbrio térmico. Os níveis aqui envolvidos são um contínuo de níveis vibracionais e rotacionais da molécula. A termalização destes níveis, da ordem de pico-segundos, resulta numa distribuição de Boltzman em ambos os estados  $S_1$  e  $S_0$ , separadamente.

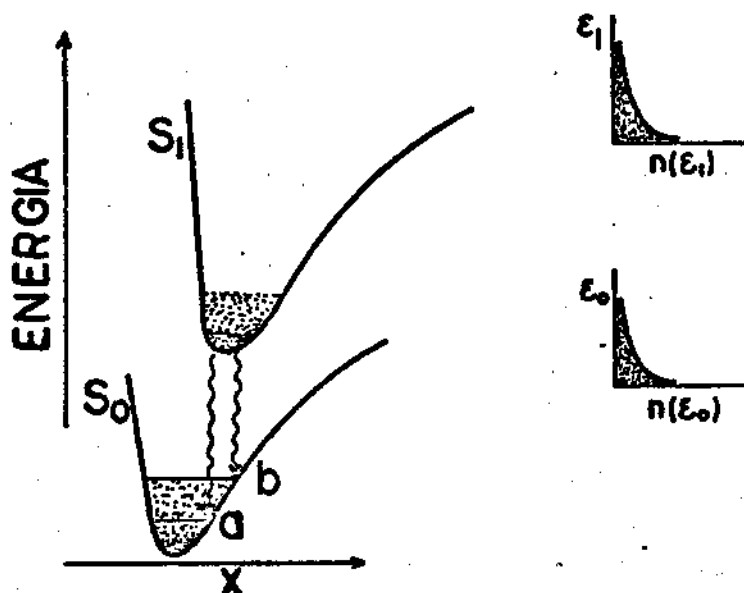


Fig.(III-1.2) - Diagrama de níveis energéticos mostrando o equilíbrio entre os dois estados.

Sob condições de laser, numa cavidade de banda larga, a emissão estimulada pode tomar lugar do fundo da banda do estado

$S_1$  a qualquer nível vibro-rotacional do estado fundamental  $S_0$ . Depois da emissão de um foton, uma rápida termalização no nível  $S_0$  toma lugar ao fundo da banda, deixando novamente o nível terminal desocupado. Se colocarmos um elemento seletor de frequências, tal como uma grade de difração a emissão não poderá ocorrer em um dado nível de  $S_0$ , digamos b, pois o Q da cavidade para esta transição é baixo. Por outro lado, o elemento seletivo, realimenta as transições ao nível a, e conseqüentemente o Q da cavidade para este comprimento de onda se torna alto aumentando a intensidade do campo ótico no meio estimulando mais e mais moléculas a emitirem nesta frequência. Devido a rápida termalização na banda do estado fundamental, todas as moléculas do sistema tem igual probabilidade de decairem ao nível a.

### III-2 - CONFIGURAÇÕES COMUMENTE UTILIZADAS

Devido a possibilidade de se mudar a concentração das moléculas de corante para ajustar as condições de laser no meio ativo, uma grande variedade de arranjos para bombeamento e cavidades óticas são possíveis. A alta densidade de potência ótica conseguida através de lasers, faz destes fontes ideais para o bombeamento ótico de corantes. A coerência espacial da fonte laser permite um controle mais preciso sobre a geometria do bombeamento ótico, ao contrário do que é possível com a utilização de uma fonte incoerente tal como uma lâmpada de Flash.

Para lasers de corante contínuos, intensidades de  $10^4$  W/cm<sup>2</sup> são necessárias. Nenhuma lâmpada pode ser operada com esta intensidade neste regime. Um laser de 1W pode ser focalizado facilmente para atingir o valor de potência desejado. Um arranjo proposto por Khon et al<sup>(29)</sup> para a operação em regime contínuo é mostrado na

figura (III-2.1).

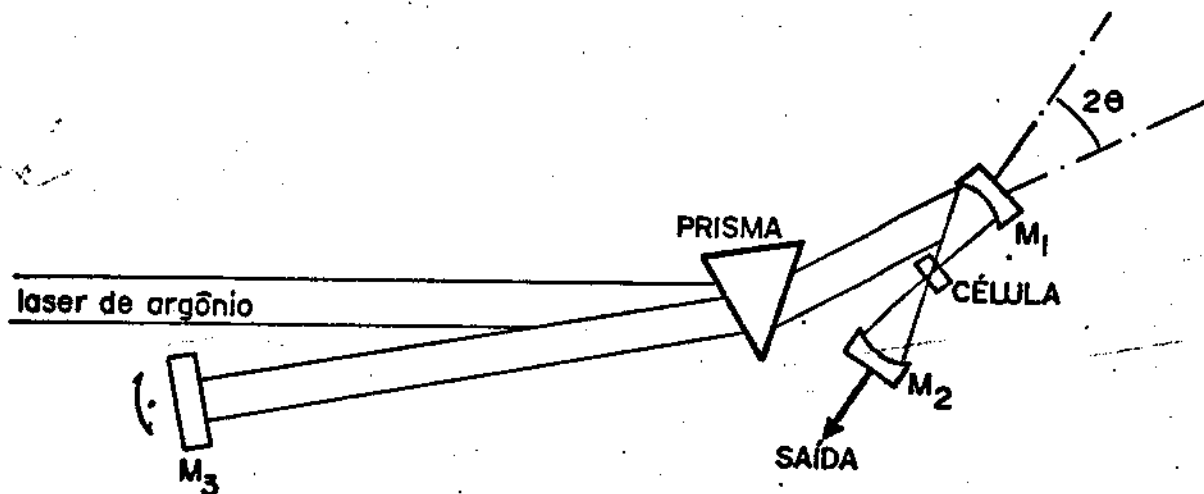


Fig.(III-2.1) - Laser de corante bombeado com um laser de Ar<sup>+</sup>

Num laser de corante contínuo ou mesmo pulsado, onde os pulsos são longos frente a  $\tau$ , pode ocorrer uma paralização do processo de inversão de população. Isto é atribuído a população do estado metaestável  $T_1$ . Este estado é populado por conversão interna via  $S_1$ . Como podemos ter absorção do laser entre os estados triplets, toda emissão superradiante pode ser absorvida pela transição  $T_1 \rightarrow T_2$  e a ação de laser deixa de existir. Este problema foi eliminado com a adição ao solvente de uma substância chamada "quencher" que provoca um decaimento rápido de  $T_1$  a  $S_0$ , e pela circulação, também rápida, do corante afim de evitar problemas térmicos. O "jet-stream", como é chamado, consiste de uma pequena fenda na qual o corante é obrigado a passar formando uma lâmina líquida de alta velocidade e boa qualidade ótica na qual um laser de argônio é focalizado para produzir a excitação do corante.

O bombeamento ótico com lâmpadas de Flash é feito geralmente utilizando-se cavidades elípticas onde em um dos focos está colocada a lâmpada e no outro a célula por onde flui o corante. A lâm

pada de flash, além de apresentar problemas de aquecimento do corante com a conseqüente mudança do índice de refração e instabilidade na frequência, apresenta um espectro muito rico no ultravioleta. Certas frequências nesta faixa do espectro são nocivas ao corante e podem dissociá-lo diminuindo o rendimento do laser. O uso de filtros entre a lâmpada e a célula pode minimizar este problema.

Uma cavidade típica é mostrada na figura (III-2.2).

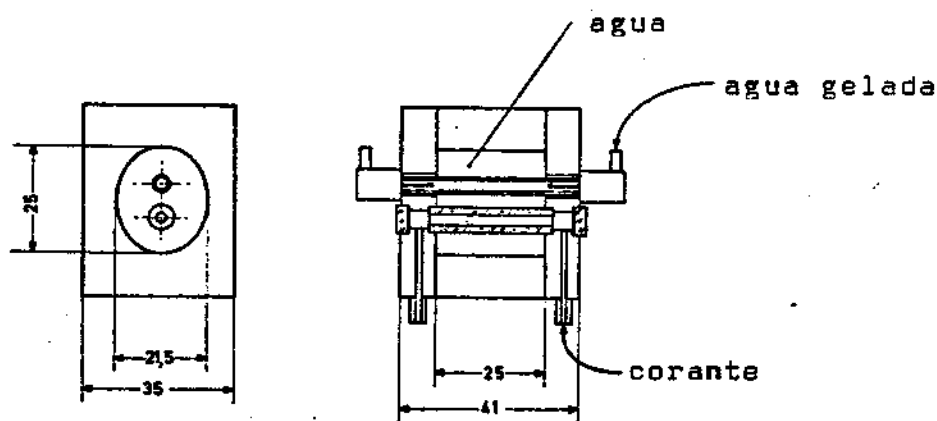


Fig.(III-2.2) - Cavidade elíptica para bombeamento por lâmpada de flash.

Geralmente a duração do pulso de uma lâmpada de Flash é da ordem ou maior que o tempo de conversão interna de  $S_1 \rightarrow T_1$  no corante. O uso de lâmpadas de Flash torna imprescindível o cuidado com a conversão interna entre os estados  $S_1$  e  $T_1$ .

Outros tipos de bombeamento, tais como, lâmpadas elípticas são usadas neste tipo de lasers.

O uso de um laser de nitrogênio pulsado para excitação de lasers de corante oferece a vantagem da ampla escolha de corantes capazes de produzir laser na faixa de 350 nm até 800 nm. A possibilidade de altas repetições e larguras de pulso que variam

de 15 ns a 0.5 ns<sup>(23)</sup> fazem dos lasers de nitrogênio excelentes fontes para excitação de corantes, e estas por sua vez, são excelentes ferramentas para o emprego em espectroscopia atômica e molecular.

O tipo de laser de nitrogênio mais utilizado é o modo de descarga transversal ou (TEA) que permite a obtenção de um feixe com seção reta retangular.

A configuração mais utilizada dos lasers de corante excitados com laser de nitrogênio é a configuração de Hänsch<sup>(24)</sup>.

Esta configuração proporcionou uma largura de banda de oscilação de 0.004 Å. Uma ilustração desta configuração é mostrada na figura (III-2.3).

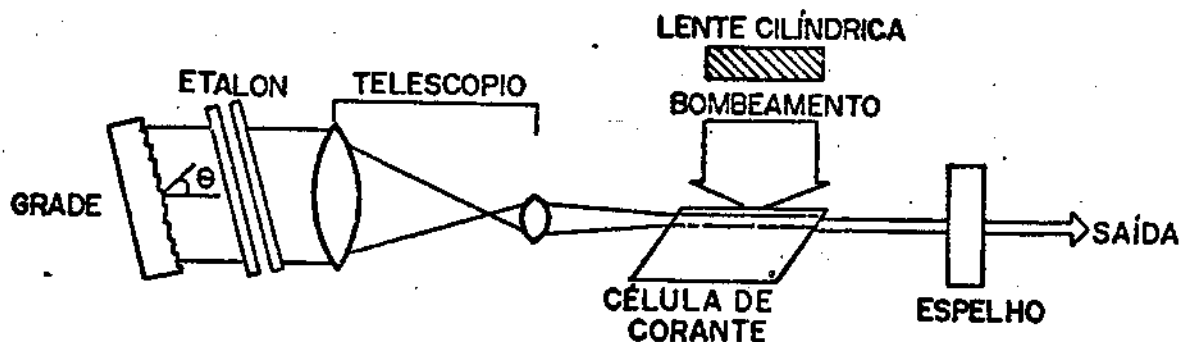


Fig. (III-2.3) - Laser de Hänsch

Uma lente cilíndrica é utilizada para focalizar o feixe do laser de nitrogênio numa linha muito estreita junto a parede interna da célula de tal forma que a ação de laser se produz ao longo desta linha, figura (III-2.3).

O feixe de laser é expandido por um telescópio antes



de atingir a grade de difração. Um etalon, colocado entre a grade e o telescópio, é utilizado para estreitar mais ainda a banda de oscilação do laser.

Um dos problemas apresentados por este tipo de laser é o do alinhamento, que é dificultado pelo telescópio. Ainda a utilização de um etalon de alta finesse faz com que ocorra uma grande perda em potência na saída do laser.

Outros pesquisadores tem apresentado novas configurações para os lasers de corante bombeados com lasers de nitrogênio (25,26,27).

Uma das configurações é a apresentada por Eesley e Levenson (25) na qual o telescópio é substituído por um espelho convexo e outro côncavo como mostra a figura (III-2.4).

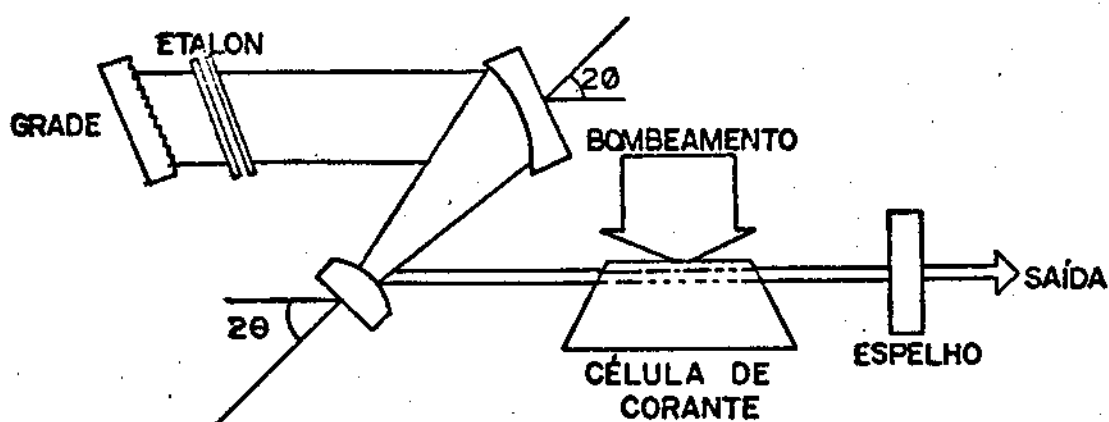


Fig.(III-2.4) - Laser de Eesley e Levenson

As dificuldades apresentadas por este laser são devidas ao alinhamento e astigmatismo provocado pelos espelhos que são colocados em incidência oblíqua, figura (III-2.4), entretanto, a lar

gura de linha obtida foi de  $0.01\text{\AA}$ , embora a eficiência tenha sido baixa.

A utilização de elementos seletivos tais como prismas e grades em "grazing angle" (26,27) provou ser muito eficiente como expansores do feixe de laser. As configurações mostradas na figura (III-2.5) foram introduzidas primeiro por Hanna e Kärkkäinen (26), usando um prisma como expensor do feixe, e depois por Shoshan et al (27), usando uma grade de difração como expensor.

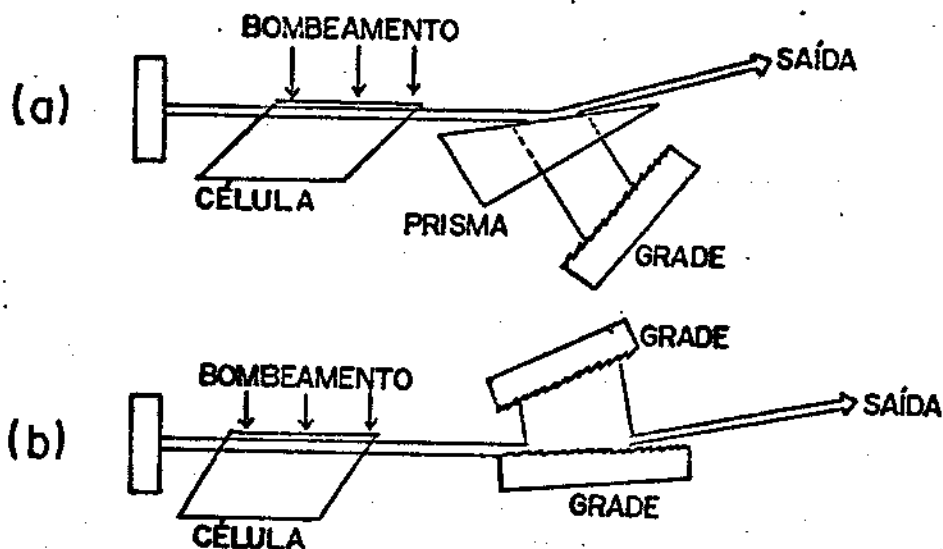


Fig. (III-2.5) - a) configuração de Hanna e Kärkkäinen  
b) configuração de Shoshan et al

No uso de um prisma como expensor do feixe, a saída do

laser é obtida pela reflexão na superfície dielétrica como mostra a figura (III-3.5a). A magnificação do feixe produzida pelo prisma é dada por

$$M = \left[ \frac{n^2 - \text{sen}^2 \theta_1}{n^2 - n^2 \text{sen}^2 \theta_1} \right]^{1/2} \quad (\text{III-2.1})$$

onde  $n$  é o índice de refração do prisma e  $\theta_1$ ,  $\theta_2$  são os ângulos de incidência e refração respectivamente como indica a figura (III-2.6).

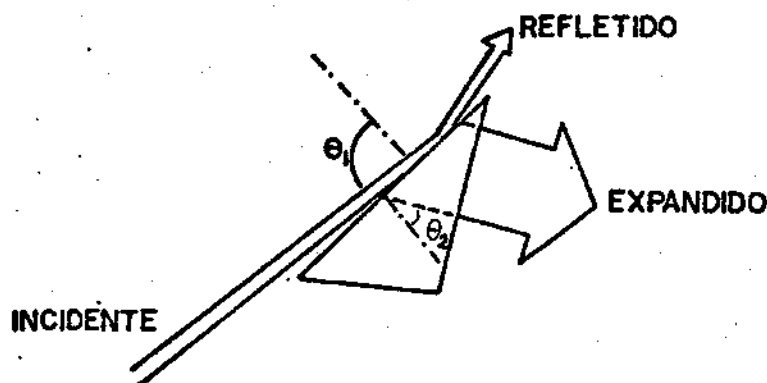


Fig.(III-2.6) - Expansão do feixe por um prisma

O feixe que sai do prisma possui uma divergência angular  $\frac{d\theta}{M}$ , se  $d\theta$  é a divergência do feixe incidente.

A dispersão angular de uma grade de difração é dada por

$$d\theta/d\lambda = 2(\text{tg } \theta)/\lambda \quad (\text{III-2.2})$$

onde  $d\theta$  é a divergência angular do feixe incidente e  $\lambda$  o seu comprimento de onda. Quando o feixe expandido pelo prisma tem uma divergência angular, a meio ângulo, igual a  $2\lambda/(\pi D \cos\theta)$  onde  $D$  é o diâ

metro da grade, a equação (III-2.2) transforma-se em

$$d\lambda \approx 2 \frac{\lambda^2}{\pi D \sin \theta} \quad (\text{III-2.3})$$

Este tipo de laser pode produzir facilmente larguras de banda de oscilação da ordem de  $0.01\text{\AA}$ , mas devido a realimentação para dentro da cavidade ser muito fraca, ié, baixa intensidade, a eficiência em conversão de potência deste laser é da ordem de 7.5%. Um outro problema apresentado por este tipo de cavidade é que, para um funcionamento perfeito em "grazing angle", o prisma deve ser desenhado de tal forma que o feixe expandido tenha incidência normal a segunda face, afim de prevenir reflexões indesejáveis que contribuiriam negativamente para realimentação, veja figura (III-2.6). Uma das vantagens desta cavidade é que seu comprimento pode ser mantido muito pequeno, conseguindo-se assim um número muito restrito de modos axiais na sua operação.

Quando se usa uma grade de difração como expensor do feixe, o mecanismo para o acoplamento de saída é similar ao do prisma. Utiliza-se a reflexão de ordem zero para o acoplamento, como ilustra a figura (III-2.5b).

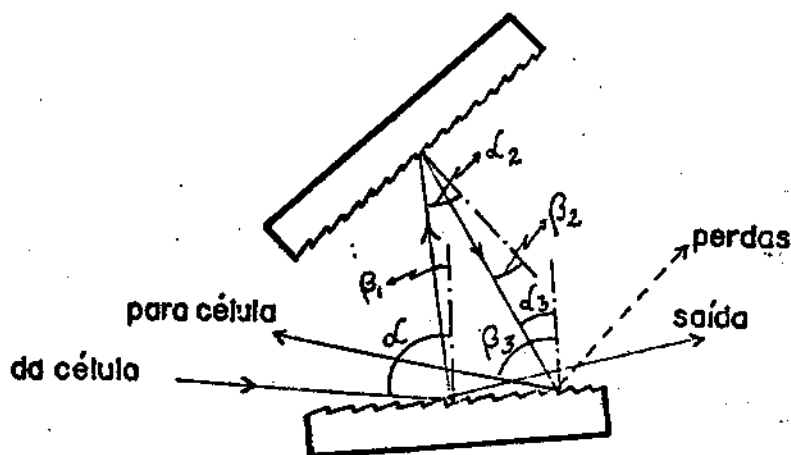


Fig.(III-2.7) - Expansão do feixe por uma grade

Os ângulos  $\alpha$  e  $\beta$  mostrados na figura (III-2.7) estão relacionados com a fórmula da grade pela equação

$$\text{sen } \alpha + \text{sen } \beta = m \lambda / a \quad (\text{III-2.4})$$

onde  $a$  é a distância entre as ranhuras,  $\lambda$  o comprimento de onda e  $m$  a ordem de difração. Neste caso definimos a magnificação como

$$M = \cos \beta / \cos \alpha \quad (\text{III-2.5})$$

A magnificação é conseguida fazendo o ângulo  $\alpha$  tender a  $90^\circ$ . O ângulo  $\beta$  pela equação (III-2.4) diminuirá bastante, produzindo a magnificação desejada. Um feixe monocromático, com uma divergência  $\delta\alpha$ , é difratado com uma pequena divergência  $\delta\beta$  dada por

$$\delta\beta = - \cos\alpha / \cos\beta = - \frac{\delta\alpha}{M} \quad (\text{III-2.6})$$

A expansão e redução na divergência do feixe ocorre somente numa dimensão. Isto é suficiente para estreitar a linha do laser desde que a expansão seja no plano de incidência da grade. Como se pode ver da figura (III-2.7), o feixe que emerge da célula de corrente é difratado três vezes antes de retornar a célula. Assim a dispersão angular total obtida é

$$\frac{d\beta_3}{d\lambda} = M \left( \frac{m_1}{a_1 \cos\beta_1} + \frac{m_2}{a_2 \cos\beta_2} + \frac{m_1}{a_1 \cos\beta_3} \right)$$

ou

$$\frac{d\beta_3}{d\lambda} = M \left( \frac{2m_1}{a_1 \cos\beta_1} + \frac{m_2}{a_2 \cos\beta_2} \right) \quad (\text{III-2.8})$$

onde  $a_1$  e  $a_2$  são os espaçamentos das ranhuras das grades  $G_1$  e  $G_2$  respectivamente e  $m_1$  e  $m_2$  são as correspondentes ordens de difração. A largura de banda numa passagem é dada por

$$\delta\nu = \frac{2\delta\gamma}{M\lambda^2(2m_1/a_1 \cos\beta_1 + m_2/a_2 \cos\beta_2)} \quad \text{(III-2.9)}$$

onde  $\delta\gamma$  é a metade do ângulo de divergência do feixe que emerge da célula. Novamente nesta configuração podemos obter largura de linha de  $0.01\text{\AA}$ , mas como a realimentação é de pouca intensidade a potência de saída cai bastante, obtendo-se 10% de eficiência.

# CAPITULO IV

## CAVIDADE INSTÁVEL EM RING

#### IV-1 - CAVIDADES INSTÁVEIS PARA LASERS DE CORANTE BOMBEADOS COM LASER DE NITROGÊNIO

Em fotoquímica ou em experiências que requerem pulsos de alta intensidade, corantes bombeados com lasers de nitrogênio são ferramentas importantes devido a sua simplicidade e confiabilidade. Um esquema comum para construção destes lasers é um sistema de oscilador e amplificadores como foi proposto por Curry et al<sup>(30)</sup>, e que pode produzir altas potências de saída com uma banda de oscilação bastante estreita, da ordem de  $0.01\text{\AA}$ . Entretanto, quando usamos altas intensidades de bombeamento, da ordem de centenas de kW, a possibilidade de se usar uma cavidade instável torna-se atrativa devido a possibilidade de se obter feixes saída bem colimados, de alta intensidade e boa qualidade.<sup>(13)</sup>

Geralmente em cavidades estáveis, o diâmetro do modo de ordem mais baixa é da ordem de  $(\lambda L)^{1/2}$ , o qual é menor que o diâmetro dos espelhos. Se o diâmetro da região ativa for  $2a$ , então a razão entre as áreas do meio ativo e do modo gaussiano de ordem mais baixa é da mesma ordem que o número de Fresnel ( $N_F = a^2/L\lambda$ ) que caracteriza esta região. Quando este número for maior que a unidade, o modo de ordem mais baixa extrairá uma fração  $1/N_F$  da energia armazenada no meio ativo. Assim, para uma extração completa desta energia é imprescindível a oscilação em modos de mais alta ordem.

Quando utilizamos altas intensidades de bombeamento, é possível aumentar o volume da região ativa aumentando o número de moléculas a serem excitadas, e com isto possibilitando maior armazenamento de energia no meio. Este aumento de volume do meio ativo, ocasiona um aumento no número de Fresnel desta região. Isto requer um aumento no volume dos modos para uma perfeita extração da energia armazenada no laser.



Uma das características de uma cavidade instável é a de possuir grandes volumes para o modo transversal de ordem mais baixa. Esta característica faz com que, para altas intensidades de bombeamento em lasers de corante, o uso de cavidades instáveis seja conveniente.

Outra vantagem para o uso de cavidades instáveis vem da possibilidade de se obter um controle efetivo sobre os modos transversais, resultando somente, na oscilação do modo de ordem mais baixa da cavidade [15,16]. Isto assegura que toda energia do laser estará contida neste modo, acarretando sua rápida formação, i.é., um número de trânsitos muito menor do que o necessário para formação de um modo em cavidades estáveis, veja figura (I-2.2) e ref. (21). Esta rápida formação do modo na cavidade é conveniente quando operamos com pulsos de curta duração.

#### IV-2 - CAVIDADE EM RING INSTÁVEL

A cavidade instável mais simples e de maior tolerância no alinhamento é a cavidade confocal de ramo negativo. Esta cavidade pode produzir feixes de alta coerência espacial e de grande qualidade para inúmeras experiências.

Uma das características mais importantes de lasers de corante, é a possibilidade de serem sintonizáveis numa banda bastante larga, da ordem de  $500\text{Å}$ . Para sintonização nós utilizamos elementos seletivos tais como grades de difração ou prismas. O emprego de uma grade de difração requer que o feixe seja expandido e colimado possibilitando a utilização de uma grande área na superfície da grade, aumentando consideravelmente sua resolução em frequência.

Aliando estas necessidades às vantagens oferecidas por uma cavidade ótica instável tipo confocal de ramo negativo, optamos por uma cavidade tal como mostra a figura (IV-2.1).

Para conseguirmos um feixe expandido e bem colimado com uma saída em forma de um anel uniformemente iluminado, a opção mais simples foi a utilização de uma configuração em ring.

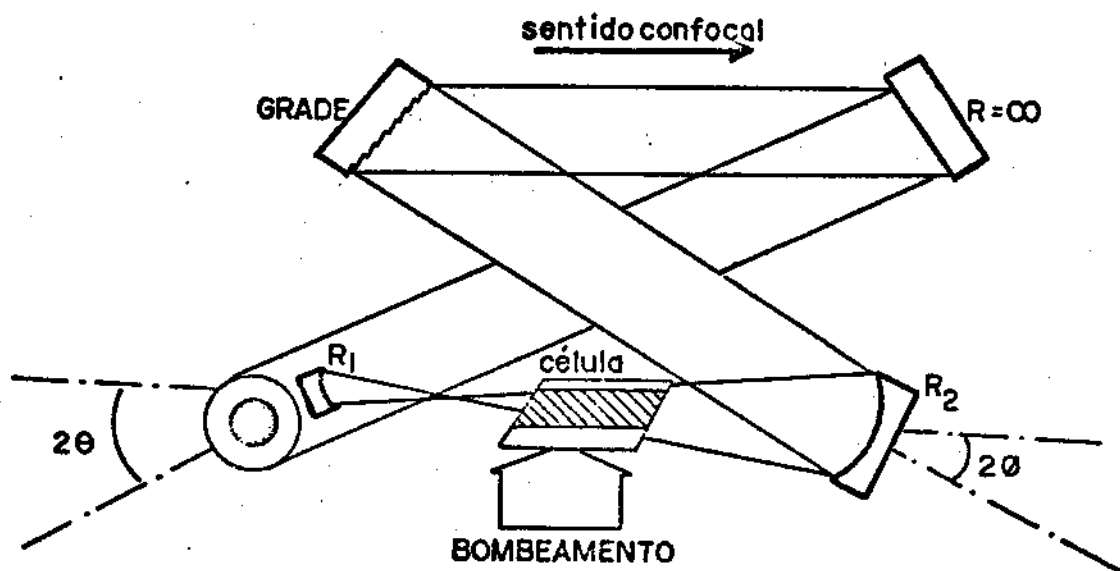


Fig.(IV-2.1) - Cavidade em ring instável tipo confocal de ramo negativo.

A cavidade mostrada na figura (IV-2.1) é composta por dois espelhos curvos de raio  $R_1$  e  $R_2$  respectivamente, por uma grade de difração e um espelho plano. Os espelhos curvos formam um expansor do feixe. Este feixe é difratado a um dado comprimento de onda pela grade de difração indo refletir no espelho plano e depois voltando ao espelho de raio  $R_1$  fechando o percurso. Uma fração  $1/M^2$  retorna à cavidade para realimentação. A fração acoplada para fora da cavidade é  $(1-1/M^2)$ .  $M$  é a magnificação do feixe definida como a razão entre os raios dos espelhos, i.é.,  $M = R_2/R_1$ . O feixe de saída tem a forma de um anel uniformemente iluminado e de fase constante.

Devido a parte confocal da cavidade formada pelos espelhos  $R_1$  e  $R_2$  a cavidade pode ser classificada como uma cavidade confocal de ramo negativo como mostra a figura (IV-2.2).

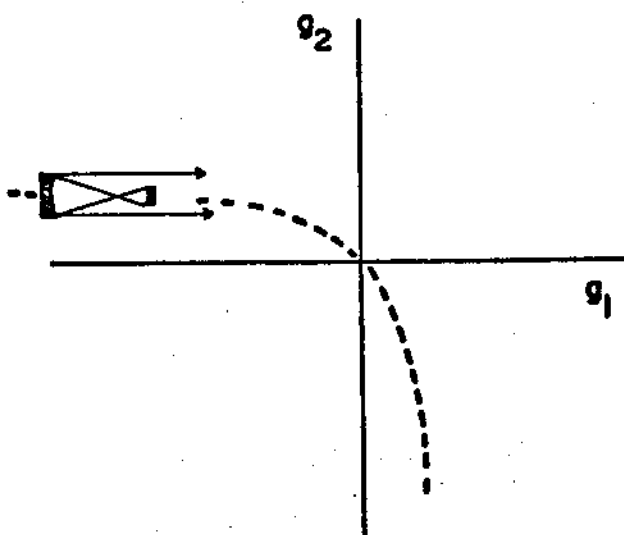


Fig.(IV-2.2) - Cavidade equivalente e localização no plano  $g_1$  e  $g_2$  para espelhos com  $R_1 = 10$  cm e  $R_2 = 20$  cm

Se necessitermos reduzir ainda mais a banda de excitação do laser, poderemos substituir o espelho plano por outra grade de difração.

A célula de corante foi posicionada dentro do expensor de feixe, de tal maneira que o modo de oscilação ocupasse o máximo volume da região ativa, obtendo-se o máximo de superposição entre o feixe de bombeamento e o feixe de laser. Para assegurar que toda luz fosse coletada pelo espelho de raio maior encontramos experimentalmente, que o melhor posicionamento da célula fosse próxima ao espelho de raio  $R_2$ . Com a célula colocada dentro do expensor do feixe, a cavidade tornou-se confocal em apenas uma direção como indica a figura (IV-2.1).

Geralmente em cavidades ring existem duas ondas que viajam em sentidos opostos. Estas ondas podem se superpor e formar uma onda estacionária dentro do ring, como acontece com cavidades convencionais formadas por dois espelhos. Com esta onda estacionária surge o problema de inhomogeneidades espaciais <sup>(19)</sup>

Para entendermos fisicamente este fenômeno, imaginemos uma cavidade linear com dois espelhos planos como mostra a figura (IV-2.3a).

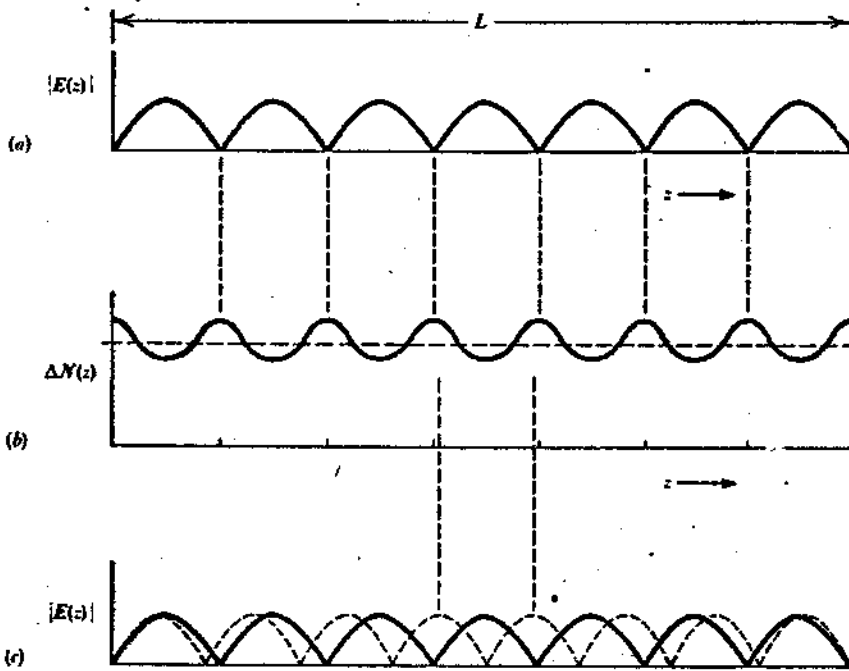


Fig.(IV-2.3) - a) distribuição de intensidade de campo ao longo da cavidade para uma onda estacionária; b) diferença de inversão de população devido a distribuição de campos inhomogênea; c) oscilação do segundo modo axial.

Se assumirmos que o laser é uniformemente bombeado e que a inversão de população também é uniforme ao longo do meio ativo, então os efeitos de saturação neste meio, supondo que só um modo axial está oscilando, serão de saturar a diferença de população somente nos picos do campo E, veja figuras (IV-2.2a) e (IV-2.3b), e não onde a intensidade do campo se anula. O resultado é uma distribuição parcialmente saturada ao longo do meio ativo como é mostrado na figura (IV-2.3b).

Quando a taxa de bombeamento cresce, a quantidade de população invertida para os picos de E é mantida no limiar da saturação, mas onde o campo é nulo, a inversão de população cresce com o crescimento da taxa de bombeamento, desde que não existe saturação nestas regiões. Neste caso um modo axial de ordem mais baixa ou mais alta tenderá a oscilar. Isto resulta numa defasagem de meio comprimento de onda entre os dois modos na região central do meio ativo, como ilustra a figura (IV-2.3c). Desta maneira, mesmo que a transição laser seja completamente homogênea ela pode atuar como inhomogênea e permitir a oscilação de multimodo.

Em cavidades ring com operação unidirecional, não existe uma onda estacionária e conseqüentemente não existem pontos nulos desta onda, não havendo portanto inhomogeneidade espacial e, conseqüentemente a oscilação em modo único fica mais fácil de ser obtida.

O fato da cavidade da figura (IV-2.1) ser confocal em apenas uma direção assegura a operação unidirecional sem a necessidade de se usar elementos óticos adicionais para que isto aconteça. Como os volumes de modos diferem para os dois sentidos, horário e anti-horário, como pode ser verificado da figura (IV-2.1), a oscilação unidirecional no sentido horário foi conseguida para esta cavidade. A razão entre intensidades foi medida ser da ordem de 113/1, veja esquema na figura (IV-2.4).

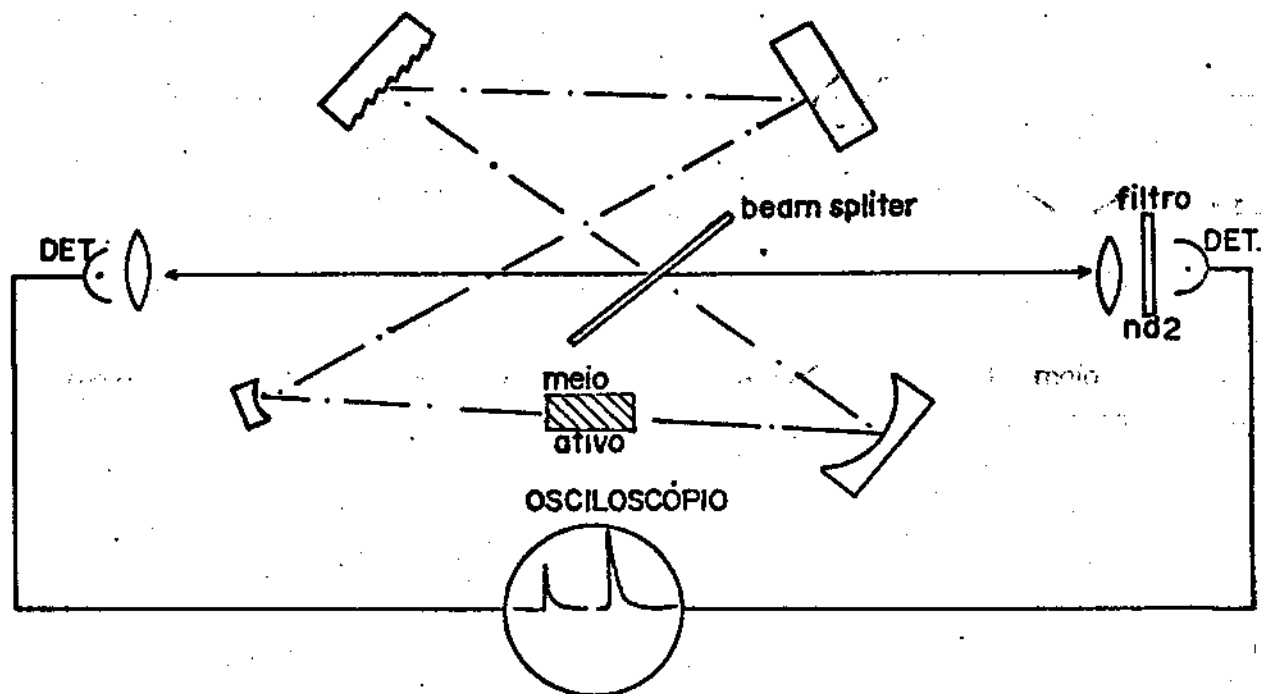


Fig.(IV-2.4) - Esquema experimental usado para medir as intensidades relativas das ondas que viajam em sentidos opostos.

# CAPITULO V

## ABERRAÇÕES E ASTIGMATISMO

## V-1 - ASTIGMATISMO

A utilização de espelhos curvos em incidência oblíqua, veja figura (IV-2.1), e o emprego de uma célula em ângulo de Brewster, resultam numa aberração do feixe de saída do laser, referida usualmente como astigmatismo<sup>(31,32)</sup>, que passaremos a descrever neste capítulo.

Kogelnik e Li<sup>(1)</sup> formularam uma análise do comportamento de feixes gaussianos produzidos por cavidades óticas com espelhos esféricos levando em conta os efeitos produzidos nestes feixes por elementos óticos colocados dentro e fora da cavidade. Porém, esta análise restringiu-se a elementos que possuíam simetria axial.

Usualmente, lasers operam com elementos tais como, células colocadas em ângulo de Brewster, prismas ou mesmo espelhos curvos utilizados em incidência oblíqua como no caso presente, veja figura (IV-2.1). A assimetria destes elementos produz uma aberração no feixe de saída do laser.

O primeiro estudo sobre o comportamento de feixes astigmáticos foi feito por Collins<sup>(32)</sup> quando estudava uma cavidade em ring estável. Este estudo mostrou que o tamanho do feixe e seu foco, num ring laser com espelhos esféricos, são diferentes no plano do ring e para um plano perpendicular a este e normal a direção de propagação do feixe. Rigrod<sup>(33)</sup>, usando a matriz ABCD (lei ABCD) mostrou que é possível separar o problema em duas partes, descrevendo-o através de duas matrizes, uma representando os deslocamentos do feixe no plano do ring e outra descrevendo os deslocamentos para um plano perpendicular ao plano do ring e normal a direção de propagação do feixe. A justificativa para se usar a separação de variáveis vem do fato de que a equação integral de Fresnel-Kirchhoff pode ser separada nas suas coordenadas, ver cap. I. Assim podemos tratar o



problema para os dois planos separadamente, ié, o plano xz, o plano do ringe e yz plano perpendicular ao primeiro e normal a direção de propagação do feixe, veja figura (IV-2.1).

## V-2 - ABERRAÇÃO INTRODUZIDA POR UM ESPELHO CURVO EM INCIDÊNCIA OBLÍQUA

Um espelho curvo usado em incidência oblíqua focaliza a luz em diferentes posições no plano xz e no plano yz, onde z é a direção de propagação do feixe refletido como é mostrado na figura (V-2.1).

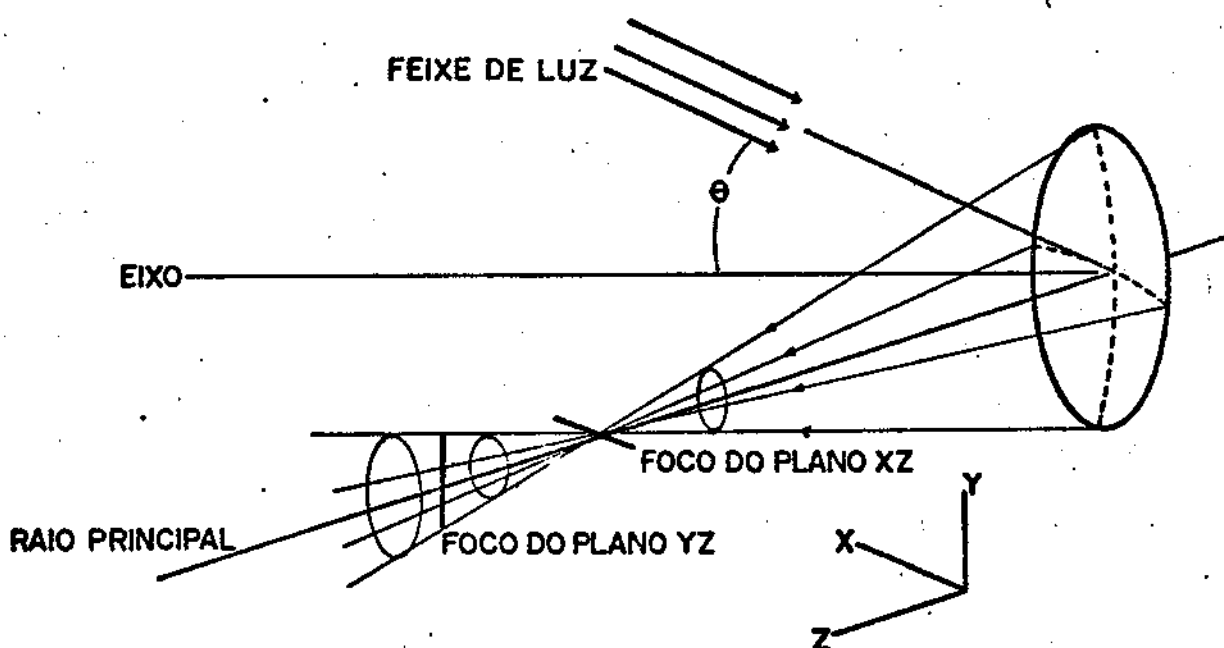


Fig.(V-2.1) - Espelho curvo usado em incidência oblíqua

Na figura (V-2.1)  $f_x$  é a distância focal no plano xz e  $f_y$  é a distância focal no plano yz. Se  $\theta$  for o ângulo de incidência do feixe de luz no espelho, então  $f_x$  e  $f_y$  serão dados respectivamente por <sup>(14)</sup>

$$f_x = \frac{R}{2 \cos \theta}$$

(V-2.1)

$$f_y = \frac{R}{2} \cos \theta$$

### V-3 - ASTIGMATISMO PRODUZIDO POR UMA CÉLULA EM ÂNGULO DE BREWSTER

Considerando a figura (V-3.1) e usando a matriz ABCD podemos calcular a distância percorrida pelo feixe de luz nos respectivos planos xz e yz ao passar por um meio de espessura  $t$  e de índice de refração  $\mu$  cuja normal a superfície do meio está deslocada de um ângulo  $\theta$  em relação a direção de propagação do feixe. Estas matrizes serão escritas respectivamente como

$$\begin{bmatrix} 1 & d_x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & t/(\mu^2 - \sin^2 \theta)^{1/2} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (V-3.1)$$

para o plano xz e

$$\begin{bmatrix} 1 & d_y \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & t\mu^2(1 - \sin^2 \theta)/(\mu^2 - \sin^2 \theta)^{1/2} \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (V-3.2)$$

para o plano yz.

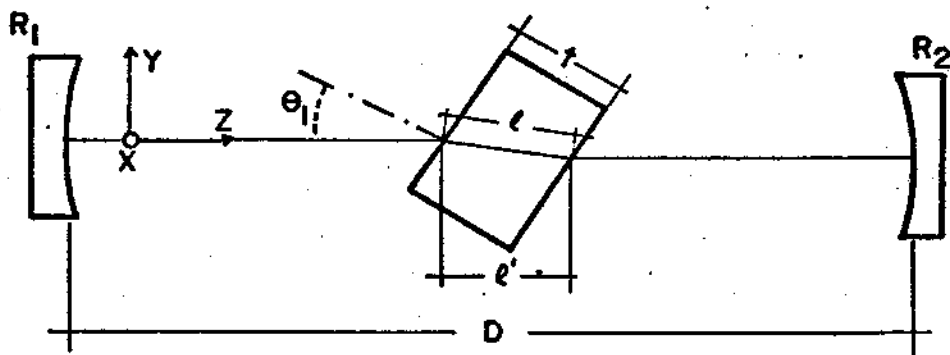


Fig.(V-3.1) - Célula colocada em ângulo dentro da cavidade

Se  $\theta$  for o ângulo de Brewster as matrizes (V-3.1) e (V-3.2) ficam reduzidas a

$$\begin{bmatrix} 1 & d_x \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & t/\mu(\text{tg}^{-1}\mu) \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$$

(V-3.3)

$$\begin{bmatrix} 1 & d_y \\ 0 & 1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & t/\mu^3 \text{sen}(\text{tg}^{-1}\mu) \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$$

De (V-3.3) obtemos então

$$d_x = t \sqrt{\mu^2 + 1} / \mu^2$$

$$d_y = t \sqrt{\mu^2 + 1} / \mu^4$$

(V-3.4)

Se D for a distância entre os espelhos curvos na cavidade da figura (V-3.1a) as distâncias percorridas pelo feixe nos planos xz e yz serão dadas respectivamente por

$$D_x = D - L_x$$

$$D_y = D - L_y$$

(V-3.5)

onde  $L_x$  e  $L_y$  são as mudanças de caminho nos planos xz e yz respectivamente e são dados por

$$L_x = l' - d_x$$

$$L_y = l' - d_y$$

(V-3.6)

onde  $l'$  é, como definido na figura (V-3.1), dado por

$$l' = 2 t \left( \frac{1}{\mu^2 + 1} \right)^{1/2}$$

(V-3.7)

#### V-4 - COMPENSAÇÃO DO ASTIGMATISMO

É possível que os efeitos de aberração e astigmatismo sejam compensados. Kogelnik et al<sup>(34)</sup> mostraram que esta compensação pode ser conseguida.

Da cavidade da figura (IV-2.1), vemos que os elementos que introduzem aberrações e astigmatismo são os espelhos curvos em incidência oblíqua e a célula de corante em ângulo de Brewster. Usando as equações (V-2.1) para  $f_x$  e  $f_y$  e as equações (V-3.5) para  $D_x$  e  $D_y$  podemos calcular as distâncias percorridas pelo feixe para ir do espelho  $R_1$  ao espelho  $R_2$ . Note-se que para esta configuração, a distância  $D$  entre os espelhos é diferente para os planos  $xz$  e  $yz$ .

Se  $\theta$  e  $\phi$  forem os ângulos de incidência do feixe nos espelhos  $R_1$  e  $R_2$  respectivamente, temos para a distância percorrida pelo feixe no plano  $xz$

$$D_{xz} = f_{1x} + f_{2x} - L_x \quad (V-4.1)$$

e para distância percorrida no plano  $yz$

$$D_{yz} = f_{1y} + f_{2y} - L_y \quad (V-4.2)$$

Para a compensação ser possível, veja ref. (34), as distâncias percorridas nos dois planos devem ser iguais, ié,  $D_{yz} = D_{xz}$ , e, das equações (V-2.1), (V-3.4) e (V-4.1, V-4.2) obtemos

$$\cos\theta = \frac{[(f_{2x} - f_{2y}) - (d_x - d_y)]}{R_1} + \frac{\{[(f_{2x} - f_{2y}) - (d_x - d_y)]^2 + R_1^2\}^{1/2}}{R_1} \quad (V-4.3)$$

onde  $f_{1x} = R_1/2\cos\theta$ ,  $f_{2x} = R_2/2\cos\phi$ ,  $f_{1y} = (R_1/2)\cos\theta$  e  $f_{2y} = (R_2/2)\cos\phi$ .

Através desta equação podemos encontrar  $\theta$  para um dado ângulo  $\phi$  para que haja compensação do astigmatismo e das aberrações.

Quando  $\mu = 1$ , ié, não existe a célula, a equação (V-4.3) recai na equação derivada por Eesley e Levenson<sup>(25)</sup>, uma vez que  $d_x = d_y$ . Por outro lado, quando  $\theta$  for igual a zero temos que  $f_{1x} = f_{1y} = R_1/2$



# CAPITULO VI

## MODELO TEÓRICO E RESULTADOS

## VI-1 - CONSIDERAÇÕES GERAIS

O laser apresentado na figura (IV-2.1) é bombeado por um laser de nitrogênio da Molectron modelo U.V. 1000, operado a 25KV com uma pressão de 45 torr, podendo-se atingir potências da ordem de 500 KW.

A célula de corante é bombeada transversalmente e o laser de nitrogênio é focalizado através de uma lente cilíndrica, como ilustra a figura (VI-1.1), conseguindo-se uma penetração de 0.1 cm. aproximadamente.

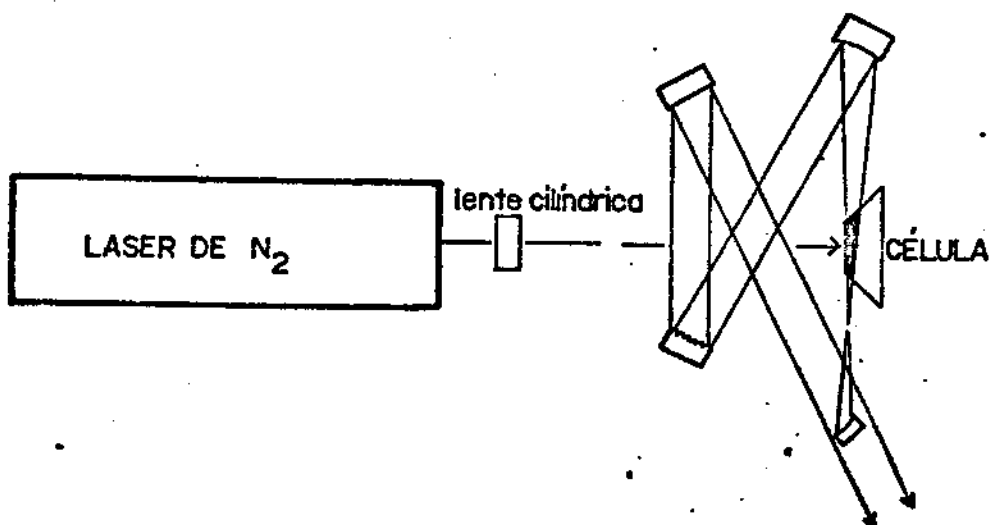


Fig.(VI-1.1) - Esquema de bombeamento do laser

O feixe do laser de corante se propaga em apenas um sentido como indica a figura (VI-1.1).

O diagrama de níveis de energia da molécula de corante é mostrado na figura (II-1.4) com a designação costumeira dos estados singlete e triplets. Como já discutimos as propriedades fotofísicas dos corantes, no capítulo II, nenhuma descrição detalhada será da



da na presente seção. O corante será considerado como um meio homogêneo, pois a relaxação vibro-rotacional é muito rápida, da ordem de  $10^{-13}$  s. Consequentemente a população de cada nível será considerada como um todo. A emissão e absorção de uma dada banda a outra não levará em conta o comprimento de onda da radiação. Uma variação no comprimento de onda, muda apenas a magnitude da interação, a qual é descrita pela dependência em frequência das respectivas seções de choque. As seções de choque de absorção dos ftons de bombeamento e do laser de corante, bem como a seção de choque de emissão da molécula serão dados respectivamente por  $\sigma_{ap}^0$ ,  $\sigma_{al}^0$  e  $\sigma_e$ . Estas quantidades foram medidas e são conhecidas para muitos corantes.

O laser de corante será considerado essencialmente monocromático.

A absorção de um foton do laser de bombeamento toma lugar do estado fundamental, singlet  $S_0$ , ao segundo estado excitado, singlet  $S_2$ . Como o tempo de vida do estado  $S_2$  é muito rápido comparado com o tempo de vida de  $S_1$ ,  $10^{-13}$  s, contra  $10^{-9}$  s respectivamente, assumiremos que quando a molécula absorve um foton do laser de nitrogênio,  $\lambda = 3371\text{Å}$ , o nível de laser  $S_1$  é automaticamente populado.

Em operação unidirecional, o ring laser, apresenta uma propriedade importante devido ao fato que para os mesmos parâmetros de cavidade, o feixe de laser sofre apenas metade das perdas residuais que sofreria um feixe de laser numa cavidade convencional (16,19). Este fato é significativo para baixas potências de bombeamento em lasers que operam em regime contínuo ou lasers com altas perdas residuais na cavidade como as que usam um número muito grande de elementos seletivos.

O modelo básico de um laser de corante é bem conhecido, (35,36,37) entretanto os cálculos assumem uma intensidade uniforme ao longo do meio ativo, a qual é uma suposição razoável para la-

sers que operem com ondas estacionárias. (35)

No caso presente, porém, existe uma onda não estacionária viajando na cavidade, assim que a suposição de uma intensidade de laser uniforme ao longo do meio ativo não é correta.

A geometria na qual a teoria é baseada é mostrada na figura (VI-1.2).

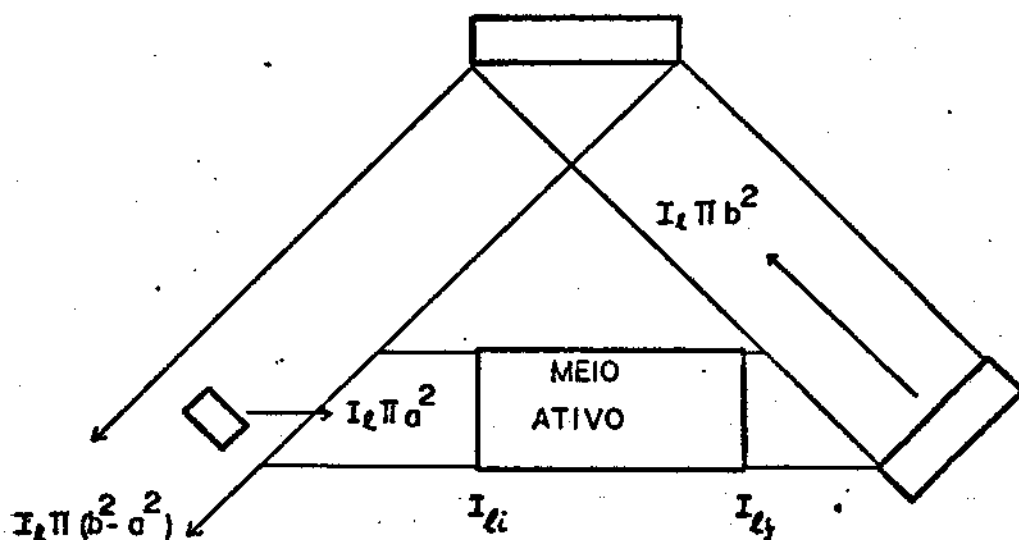


Fig.(VI-1.2) - Cavidade simplificada, base para o modelo teórico.

## VI-2 - PROPRIEDADES GEOMÉTRICAS DA CAVIDADE

Considerando a figura (VI-1.2), a cavidade em que o modelo é baseado é assimétrica com um acoplamento de saída feito através do espelho menor de semi-diâmetro  $a$ . As perdas residuais na cavidade são denotadas por  $\ell$  e incluem perdas por difração em qualquer dos espelhos, espalhamento do laser na solução de corante, etc.

Da figura (VI-1.2) podemos relacionar as intensidades -

inicial,  $I_{\ell i}$ , e final,  $I_{\ell f}$ , do laser de corante como

$$I_{\ell f} - I_{\ell i} = I_{\ell f} - I_{\ell \text{refl}} \quad (\text{VI-2.1})$$

onde  $I_{\ell \text{refl}}$  significa a intensidade refletida pelo espelho de diâmetro menor, a qual retorna à cavidade.

Como o meio possui ganho podemos escrever que

$$I_{\ell f} = I_{\ell \text{refl}} G \quad (\text{VI-2.2})$$

onde  $G$  denota o ganho total do sistema. Assim podemos escrever a equação (VI-2.1) como

$$I_{\ell f} - I_{\ell \text{refl}} = I_{\ell \text{refl}} (G-1) \quad (\text{VI-2.3})$$

Por conservação de energia temos, veja figura (VI-1.2)

$$P_f = P_{\text{saída}} + P_{\text{refl}} \quad (\text{VI-2.4})$$

onde  $P_f$  denota a potência final do laser dentro da cavidade,  $P_{\text{saída}}$  é a potência do laser acoplada para fora da cavidade e  $P_{\text{refl}}$  é a potência refletida pelo espelho de raio  $a$ . Neste caso consideramos o meio sem perdas residuais.

Podemos relacionar as potências,  $P_f$ ,  $P_{\text{saída}}$  e  $P_{\text{refl}}$ , (medidas em ftons por segundo) com as intensidades de laser como segue.

$$P_f = I_{\ell} \pi b^2$$

$$P_{\text{refl}} = I_{\ell} \pi a^2 \quad (\text{VI-2.4})$$

$$P_{\text{saída}} = I_{\ell} \pi b^2 - I_{\ell} \pi a^2$$

onde  $I_\ell$  representa uma intensidade de laser arbitrária. Da equação (VI-2.1) temos

$$I_\ell \pi a^2 G = I_\ell \pi b^2 \quad I_\ell \pi a^2 \quad (\text{VI-2.5})$$

Definindo  $M$ , a magnificação como  $M = b/a$ , podemos escrever  $G$ , o ganho total, como

$$G = M^2 \quad (\text{VI-2.6})$$

Quando incluímos perdas residuais no sistema, podemos escrever (VI-2.4) sob a forma

$$P_f = P_{\text{saída}} + P_{\text{refl}} + P_{\text{perdas}} \quad (\text{VI-2.7})$$

com  $P_{\text{perdas}} = P_f \ell$ , onde  $\ell$  representa as perdas residuais do sistema. Então das equações (VI-2.2), (VI-2.4) e (VI-2.7) obtemos

$$I_\ell \pi a^2 (1 - \ell) G = I_\ell \pi b^2 \quad (\text{VI-2.8})$$

e teremos para o ganho total, incluindo as perdas residuais a seguinte expressão

$$G = \frac{M^2}{(1 - \ell)} \quad (\text{VI-2.9})$$

Note-se que para  $\ell = 0$ , i.é., o meio não possui perdas a equação (VI-2.9) recai na equação (VI-2.6). Se  $\ell = 1$ , i.é., as perdas são 100%,  $G = \infty$  como era de se esperar, pois se as perdas são totais  $G$  deverá ser muito grande para obtermos ação de laser.

## VI-3 - EQUAÇÕES DE TRANSPORTE PARA FOTONS

As quantidades  $I_p$  e  $I_l$  são respectivamente as intensidades dos feixes de bombeamento e do laser de corante medidas em  $\text{photons/cm}^2\text{s}$ .

Podemos escrever a equação de transporte para os fotons de bombeamento como <sup>(35)</sup>

$$\frac{1}{c} \frac{dI_p}{dt} + \frac{dI_p}{dy} = -I_p \sigma_{ap}^0 N_0 \quad (\text{VI-3.1})$$

O termo do lado direito representa a absorção do laser de bombeamento pelo estado fundamental, onde  $N_0$  é o número de moléculas que estão neste estado. Similarmente, a equação de transporte para o feixe do laser de corante é dada por

$$\frac{1}{c} \frac{dI_l}{dt} + \frac{dI_l}{dx} = I_l [\sigma_e N_1 - \sigma_{al}^1 N_1 - \sigma_{al}^0 N_0 - \sigma_{al}^t N_t] \quad (\text{VI-3.2})$$

onde o primeiro termo no lado direito representa a emissão estimulada, o segundo termo é a absorção do laser de corante pela molécula no estado excitado, o terceiro termo representa a absorção do laser de corante pela molécula no estado fundamental e o quarto termo leva em conta a absorção do laser de corante pela molécula no estado triplet  $T_1$ .

Para lasers de corante bombeados com lasers de nitrogênio a equação (VI-3.2) pode ser simplificada consideravelmente.

A largura do pulso de bombeamento é da ordem de 10 ns, e como o tempo para conversão interna, transição de  $S_1 \rightarrow T_1$  é da ordem de 250 ns, e o tempo de vida médio do estado de laser  $S_1$  é da ordem de 3 ns, não teremos população significativa nos estados triplets, assim que o último termo do lado direito da equação (VI-3.2) é essen-

cialmente nulo. Desta maneira a equação (VI-3.2) fica transformada em

$$\frac{1}{c} \frac{dI_{\ell}}{dt} + \frac{dI_{\ell}}{dx} = I_{\ell} [\sigma_{ef} N_1 - \sigma_{al}^0 N_0] \quad (\text{VI-3.3})$$

onde  $\sigma_{ef} = \sigma_e - \sigma_{al}^1$ .

#### VI-4 - EQUAÇÕES DE BALANÇO

A equação de balanço para densidade de população  $N_1$  do primeiro estado excitado, singlet  $S_1$  é dada por

$$\frac{dN_1}{dt} = \sigma_{ap}^0 N_0 I_p - \frac{N_1}{\tau} - N_1 \sigma_{ef} I_{\ell} + N_0 \sigma_{al}^0 I_{\ell} \quad (\text{VI-4.1}).$$

onde os termos do lado direito representam respectivamente, absorção da intensidade do laser de bombeamento pelas moléculas no estado fundamental, decaimento espontâneo de  $S_1 \rightarrow S_0$ , decaimento estimulado de  $S_1 \rightarrow S_0$  e absorção do laser de  $S_1 \rightarrow S_2$ , e o último termo representa a absorção do laser de corante pelas moléculas no estado fundamental.

Como não temos população significativa nos estados triplets, a equação de balanço para  $T_1$  pode ser desconsiderada. Podemos escrever ainda que

$$N_{TOT} = N_1 + N_0 \quad (\text{VI-4.2})$$

onde  $N_{TOT}$  é o número de moléculas de corante por unidade de volume na solução,  $N_1$  o número de moléculas por unidade de volume em  $S_1$  e  $N_0$  o número de moléculas por unidade de volume em  $S_0$ .

As equações (VI-3.1), (VI-3.3), (VI-4.1) e (VI-4.2) constituem as equações básicas que descrevem o comportamento do meio atí

vo do laser de corante. Estas equações são válidas para lasers de bombeamento que possuem pulsos curtos, porém, estes devem ter larguras de pulso maiores que o tempo de vida da fluorescência como veremos nas próximas seções.

#### VI-5 - APROXIMAÇÃO PARA SOLUÇÕES DAS EQUAÇÕES DO LASER

Vamos considerar que enquanto existir bombeamento existirá ação de laser, com  $\tau_{\text{laser}} > \tau_{\text{vida média}}$ .

Com estas suposições podemos aproximar as equações considerando um regime estacionário. Nestas condições todas as derivadas temporais se anulam e as equações (VI-3.1), (VI-3.2) e (VI-4.1) ficam

$$\frac{dI_p}{dy} = - I_p \sigma_{ap}^0 N_0 \quad (\text{VI-5.1})$$

$$\frac{dI_l}{dx} = I_l (\sigma_{ef} N_1 - \sigma_{al}^0 N_0) \quad (\text{VI-5.2})$$

$$N_0 (\sigma_{ap}^0 + \sigma_{al}^0 I_l) = N_1 (1/\tau + \sigma_{ef} I_l) \quad (\text{VI-5.3})$$

Tomando as equações (VI-4.2) e (VI-5.3) obtemos que

$$N_0 = N_{\text{TOT}} \left[ \frac{(1/\tau + \sigma_{ef} I_l)}{(1/\tau + \sigma_{ef} I_l) + (\sigma_{ap}^0 I_p + \sigma_{al}^0 I_l)} \right] \quad (\text{VI-5.4})$$

$$N_1 = N_{\text{TOT}} \left[ \frac{(\sigma_{ap}^0 + \sigma_{al}^0 I_l)}{(1/\tau + \sigma_{ef} I_l) + (\sigma_{ap}^0 I_p + \sigma_{al}^0 I_l)} \right] \quad (\text{VI-5.5})$$

Substituindo os valores das equações (VI-5.4) e (VI-5.5) na equação (VI-5.2) Obtemos

$$\frac{dI_{\ell}}{I_{\ell}} = dx \left[ \frac{\sigma_{ef}^{\circ} \sigma_{ap}^{\circ} I_p N_{TOT} - \sigma_{al}^{\circ} N_{TOT} / \tau}{(1/\tau + \sigma_{ef}^{\circ} I_{\ell}) + (\sigma_{ap}^{\circ} I_p + \sigma_{al}^{\circ} I_{\ell})} \right] \quad (VI-5.6)$$

Integrando de ambos os lados a equação (VI-5.6) entre os limites  $(I_{\ell i}, I_{\ell f})$  para  $I_{\ell}$  e  $(0, \ell)$  para  $x$ , veja figura (VI-5.1), obtemos

$$\ln G = \frac{(\ell \sigma_{ap}^{\circ} I_p N_{TOT}) - (\sigma_{al}^{\circ} I_S \ell N_{TOT}) - (1 + \sigma_{al}^{\circ} / \sigma_{ef}^{\circ}) I_{\ell ref} (G-1)}{((\sigma_{ap}^{\circ} / \sigma_{ef}^{\circ}) I_p + I_S)} \quad (VI-5.7)$$

onde  $G = I_{\ell i} / I_{\ell f}$  e  $I_S = 1 / \tau \sigma_{ef}^{\circ}$

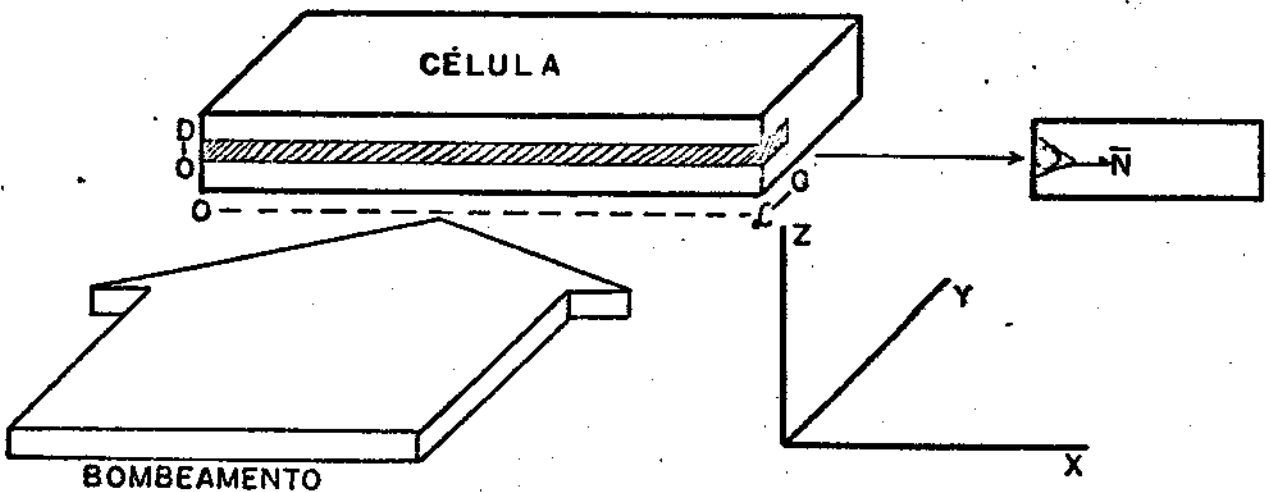


Fig.(VI-5.1) - Esquema da região bombeada mostrando seus limites

Na figura (VI-5.2) abaixo mostramos o comportamento do ganho total  $G$  como função de  $I_p$  para diferentes valores de  $I_{\ell}$ . Note-



-se que o ganho satura a um valor mais baixo quando  $I_\ell$  está próximo do valor  $I_s$ , intensidade de saturação.

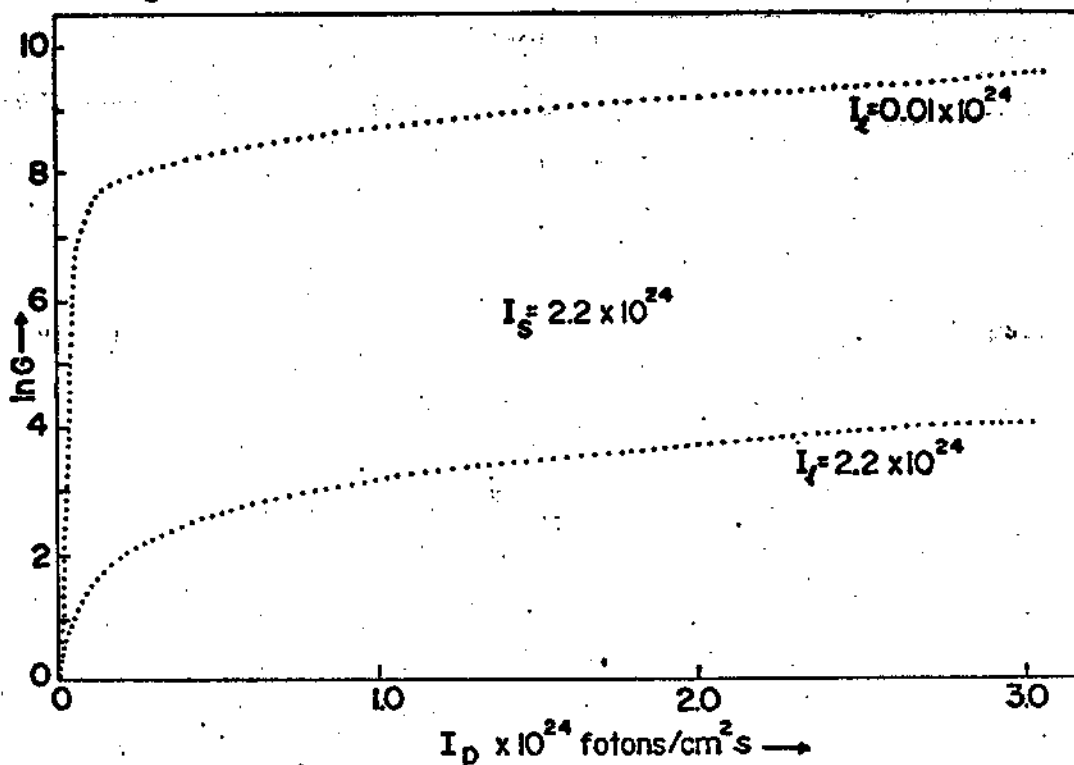


Fig.(VI-5.2) - Ganho total  $G$  como função de  $I_p$  para dois valores de  $I_\ell$

#### VI-6 - ABSORÇÃO DO LASER DE NITROGÊNIO PELO CORANTE

Considerando a figura (VI-5.1) acima, vemos que na equação (VI-5.7) a única variável que depende da direção  $y$ , direção de penetração é  $I_p$ . Utilizando a equação (VI-4.1) e resolvendo obtemos

$$I_p(y) = I_{p0} e^{-\sigma_{ap}^0 \int_0^y N_0 dy'} \quad (\text{VI-6.1})$$

Como  $N_0$  não varia significativamente na direção de integração podemos substituir a integral do expoente em (VI-6.1) por  $\bar{N}_0 y$ , onde  $\bar{N}_0$  é a média espacial de moléculas do corante no estado fundamental e é definida por

$$\bar{N}_0 = \frac{1}{y} \int_0^y N_0 dy' \quad (\text{VI-6.2})$$

Retomando a equação (VI-4.2) podemos escrever ainda que

$$\bar{N}_{TOT} = \bar{N}_1 + \bar{N}_0 = N_T \quad (VI-6.3)$$

onde as barras significam médias espaciais de população em cada estado.

Sabemos que o ganho total no laser é dado por, veja ref.

(36)

$$G = \exp(\sigma_{ef} \ell \bar{N}_1) \quad (VI-6.4)$$

ou ainda, utilizando as equações (VI-2.9) e (VI-6.3) obtemos

$$\frac{M^2}{(1-\ell)} = \exp \left[ \sigma_{ef} \ell (\bar{N}_T - \bar{N}_0) \right] \quad (VI-6.5)$$

Depois de alguma manipulação algébrica obtemos

$$-\bar{N}_0 \sigma_{ap}^0 y = \left\{ -\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ef}} y \left[ \ln \left( \frac{1-\ell}{M^2} \right) \cdot \exp(\sigma_{ef} \ell N_T) \right] \right\} \quad (VI-6.6)$$

Se tomarmos a exponencial em ambos os lados na equação (VI-6.6) e compararmos com a equação (VI-6.1) obtemos

$$I_p(y) = I_{p0} \exp \left\{ -\frac{\sigma_{ap}^0}{\sigma_{ef}} y \left[ \ln \left( \frac{1-\ell}{M^2} \right) \cdot \exp(\sigma_{ef} \ell N_T) \right] \right\} \quad (VI-6.7)$$

O termo entre chaves no expoente representa a percentagem do feixe de bombeamento transmitida através do corante.

Retomando as equações (VI-2.1), (VI-2.3) e (VI-6.7), substituindo em (VI-5.7) e integrando em relação a z e y nos limites indicados na figura (VI-5.1) obtemos

$$CD I_{lrefl} = \frac{(1-l)}{M^2-1+l} \left\{ \frac{I_{po} a D l - I_s (CD \ln(\frac{M^2}{1-l}) + l \sigma_a^0 N_T CD)}{(1 + \frac{\sigma_{al}^0}{\sigma_{ef}^0})} \right\} \quad (VI-6.8)$$

onde  $a$ , o parâmetro que representa a percentagem de fons de bombeamento absorvidos pelo corante, é dado por

$$a = \{1 - \exp(-C(\sigma_{ef}^0 N_T + (\sigma_{ap}^0 / \sigma_{ef}^0) l) \ln(\frac{1-l}{M^2}))\}^{-1} \quad (VI-6.9)$$

o primeiro termo da exponencial leva em conta a absorção da intensidade de bombeamento pelas moléculas do corante e o segundo termo leva em conta as perdas do meio, ié, quanto maior as perdas mais moléculas devem emitir para compensá-las.

## VI-7 - RESULTADOS

Das equações (VI-2.4) obtemos a seguinte relação entre  $I_{refl}$  e  $I_{saída}$ .

$$I_{saída} = (M^2-1) I_{refl} \quad (VI-7.1)$$

Substituindo este valor na equação (VI-6.8) e observando que as intensidades multiplicadas pelas áreas representam potências, medidas em fons/s, obtemos

$$P_{saída} = \frac{(1-l)(M^2-1)\sigma_{ef}^0}{(M^2-1+l)(\sigma_{ef}^0 + \sigma_{al}^0)} \{P_{po} a - P_s (\ln(\frac{M^2}{1-l}) + l \sigma_{al}^0 N_T)\} \quad (VI-7.2)$$

onde  $P_{po}$  representa a absorção da potência de bombeamento pelo estado fundamental e  $P_S (\ln G + \ell \sigma_{al}^0 N_T)$  representa a potência de limiar da ação de laser. As potências  $P_{saída}$ ,  $P_{po}$  e  $P_S$  são medidas em ftons/s. Para obtermos potências reais em Watts devemos encontrar um fator de correção. Multiplicando-se ambos os lados de (VI-7.2) por  $h \nu_L$ , onde  $h \nu_L$  é a energia dos ftons do laser de corante, e, multiplicando e dividindo o termo do lado direito de (VI-7.2) por  $h \nu_p$ , a energia dos ftons de bombeamento, obtemos

$$P_{saída} = \frac{(1-\ell)(M^2-1)\sigma_{ef} \lambda_p}{(M^2-1+\ell)(\sigma_{al}^0 + \sigma_{ef}) \lambda_L} \{P_{po} - P_S (\ln(\frac{M^2}{1-\ell}) + \ell \sigma_{al}^0 N_T)\} \quad (VI-7.3)$$

onde  $\lambda_L$  e  $\lambda_p$  são os comprimentos de onda do laser de corante e laser de bombeamento respectivamente. A expressão (VI-7.2) agora, contém as potências  $P_{saída}$ ,  $P_{po}$  e  $P_S$  medidas em Watts.

A eficiência do laser  $\eta$  é dada por

$$\eta = \frac{(1-\ell)(M^2-1) \sigma_{ef} \lambda_p}{(M^2-1+\ell) (\sigma_{ef} + \sigma_{al}^0) \lambda_L} \quad (VI-7.4)$$

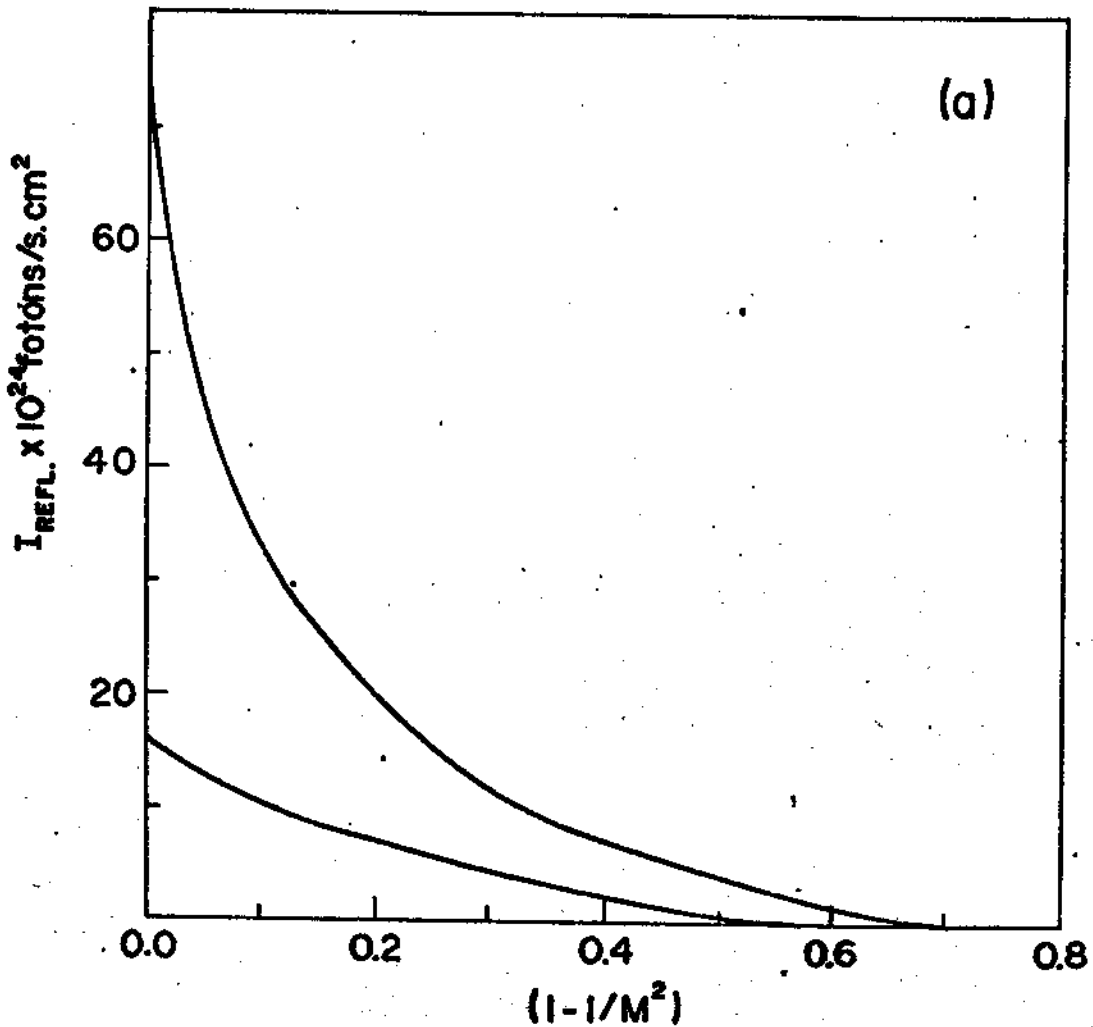
Quando não tivermos perdas residuais na cavidade, ié,  $\ell = 0$ , vemos que  $\eta$  cresce, limitado apenas pela reabsorção do laser pelas moléculas que estão no estado fundamental e excitado,  $\sigma_{ef}/(\sigma_{ef} + \sigma_{al}^0)$ , e pelo fator de correção  $\lambda_p/\lambda_L$ . Por outro lado, se  $\ell = 1$ , ié, as perdas residuais forem totais, 100%,  $\eta$  cai a zero e consquentemente  $P_{saída}$  se anula. Se  $M = 1$ , ié, não existe acoplamento de saída,  $\eta = 0$  novamente e, obtemos  $P_{saída}$  nulo como era de se esperar.

Podemos escrever então (VI-7.4) como

$$P_{saída} = \eta \{P_p - P_L\} \quad (VI-7.5)$$

onde  $P_p = P_{po}$  e  $P_L = P_S (\ln G + \ln \frac{0}{a} N_T)$ . Esta equação é bem conhecida e está de acordo com as equações derivadas por Teschke et al. (35) para lasers contínuos e de pulsos longos.

Retomando a equação (VI-6.8) podemos ver que a medida que aumentamos o valor de  $M$  para valores constantes de  $I_{po}$  e  $I_{refl}$ , a intensidade interna de laser, cai. Isto porque, quanto mais energia acoplamos para fora do laser menos intensidade de realimentação obtemos. Isto sugere que a intensidade de saída do laser deve possuir um ponto ótimo em função da magnificação, ié, o acoplamento de saída deve ter um pico para um dado valor da transmissão  $(1 - (1/M^2))$ , quando são mantidos constantes  $\lambda$ ,  $I_{po}$ ,  $I_S$ . Estes comportamentos são mostrados na figura (VI-7.1). Estes resultados são similares aos apresentados pela referência (35) para laser contínuos e de pulsos longos.



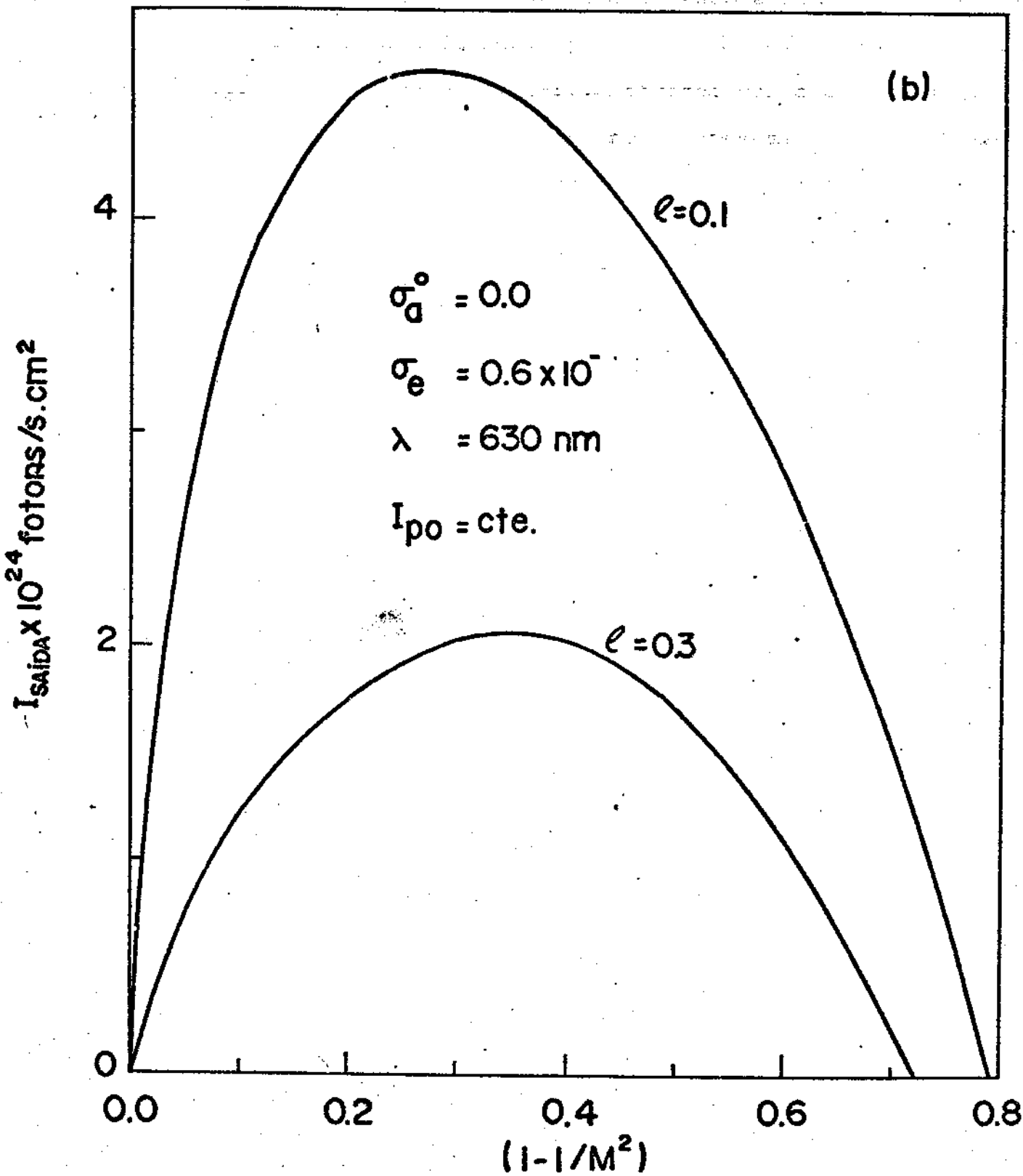


Fig.(VI-7.1)-a)Comportamento da intensidade interna do laser em função do acoplamento de saída, b) comportamento da intensidade de saída em função da transmissão  $(1 - (1/M^2))$

Para nosso laser uma magnificação de 3 foi obtida.

Os resultados da potência de saída contra potência de bombeamento são mostrados na figura (VI-7.2). As curvas cheias representam os resultados teóricos obtidos através da equação (VI-7.3). Para  $\lambda_g = 594\text{nm}$ ,  $\ell$  foi ajustado para um valor próximo de 30% afim de concordar com os resultados experimentais representados pelos pontos.

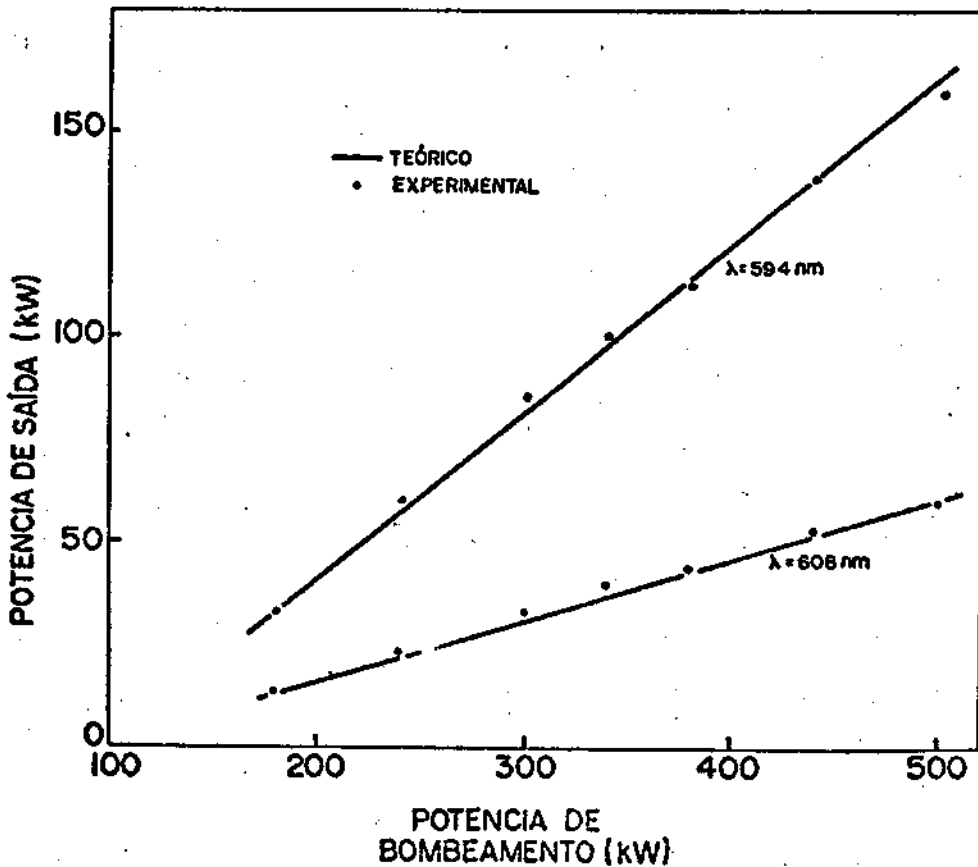


Fig.(VI-7.2) - Potência de saída contra potência de bombeamento para  $\lambda_g = 608\text{nm}$  e  $\lambda_g = 594\text{ nm}$ .

Potências da ordem de 160 kW foram obtidas para potências de bombeamento da ordem de 500 kW, mostrando uma eficiência do laser de 40%.

Embora o valor real de  $\ell$  seja grande, este valor está em boa concordância com o esperado pois os espelhos utilizados para o laser possuem perdas grandes para estes comprimentos de onda. Para comprimentos de onda da ordem de 608 nm, as perdas residuais cres

ceram bastante, além disto,  $\sigma_e(\lambda)$  cai bastante para este comprimento de onda e, conseqüentemente a eficiência do laser cai para um valor de 15% apenas.

Abaixo mostramos, figura (VI-7.3), as linhas do laser obtidas para os dois extremos de sintonização conseguidos, 570 nm e 619 nm.

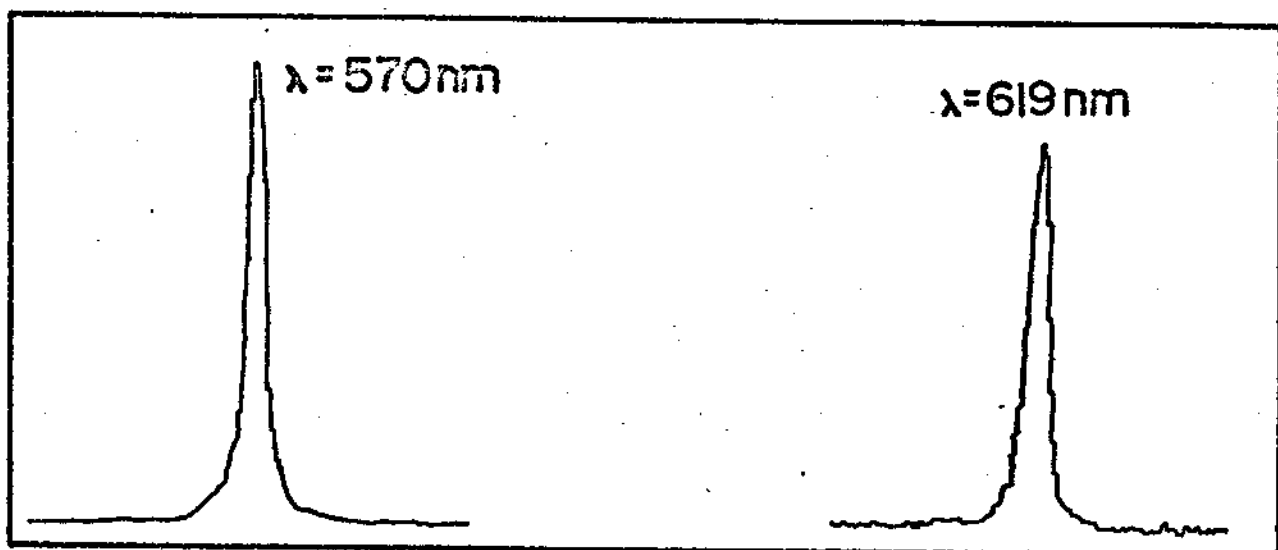


Fig.(VI-7.3) - Linhas do laser para dois extremos de sintonização

As medidas da figura (VI-7.3) foram obtidas jogando o feixe de laser num monocromador e utilizando como detetor um O.M.A., "optical multichannel analyser" fabricação P.A.R.

#### VI-8 - CARACTERÍSTICA DO FEIXE DE SAÍDA

O feixe de saída do laser tem a forma de um anel uniformemente iluminado e de fase constante, veja figura (V-4.1b).

Com o O.M.A. como detetor foi possível medir a distribuição de intensidades para o feixe no "far field", com o esquema expe-



rimental mostrado na figura (VI-8.1):

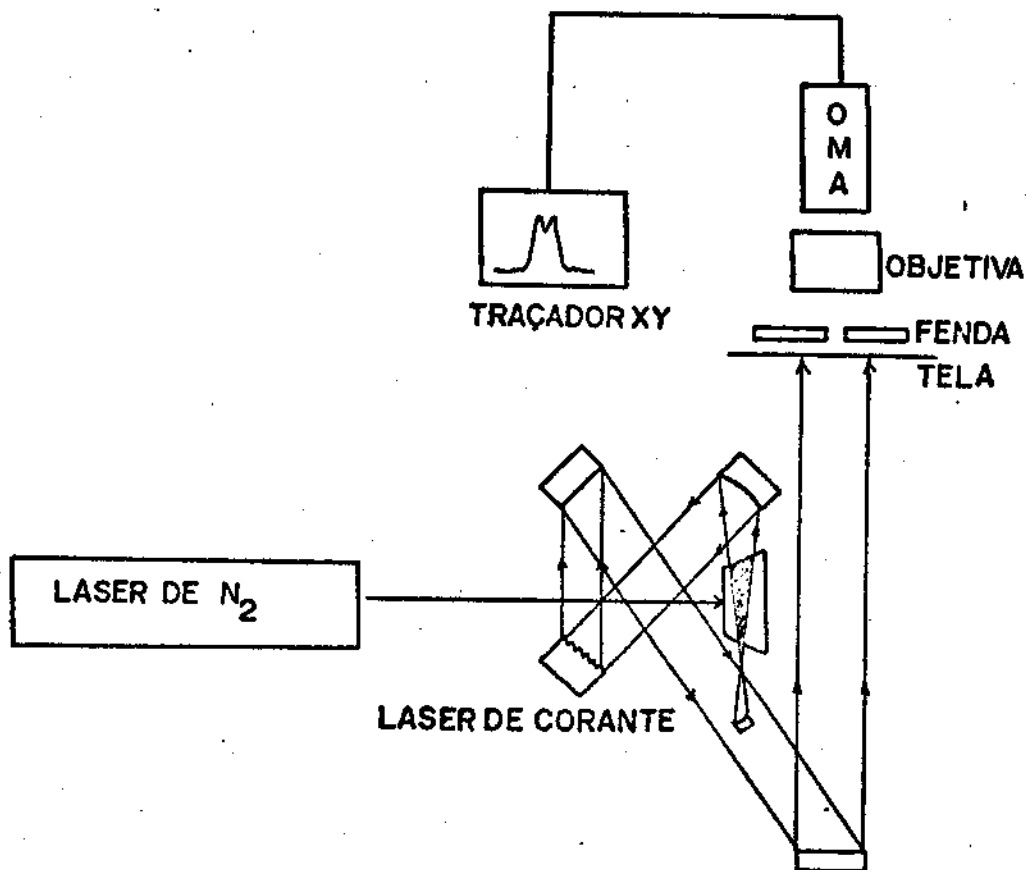


Fig.(VI-8.1) - Esquema da medida para distribuição de intensidades do feixe de laser

O resultado desta medida é mostrado na figura (VI-8.2) abaixo.

O resultado ilustrado na figura (VI-8.2) mostra uma distribuição gaussiana de intensidade ao redor do espelho, provando que somente o modo transversal fundamental está oscilando.

Não foi notada nenhuma outra distribuição de intensidades além da mostrada na figura (VI-8.2) mesmo quando o laser foi tirado um pouco fora do alinhamento. Os picos menores que aparecem na figura (VI-8.2) são devidos a difração de Fresnel, segunda e terceira zonas.

Verificamos que o número de zonas era bastante elevado, indicando que estávamos trabalhando com  $N_F \approx 30$ . Entretanto, devido as

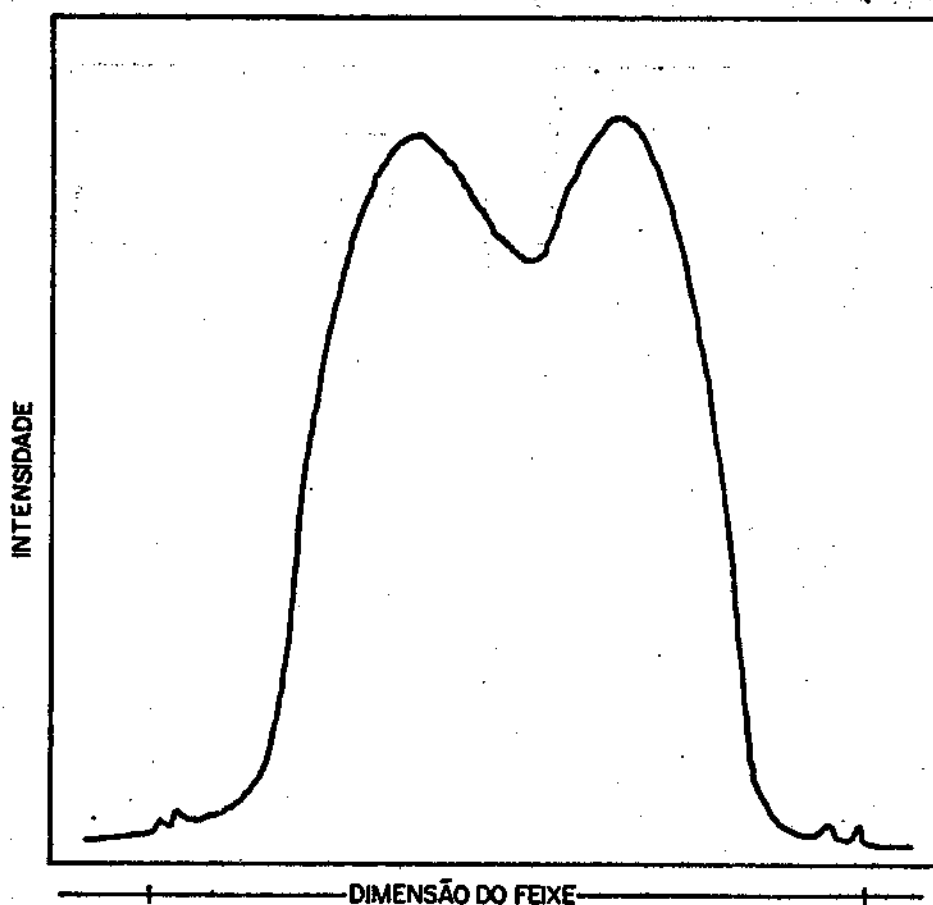


Fig.(VI-8.2) - Distribuição de intensidades do feixe no "far-field".

limitações de nosso arranjo experimental as demais zonas foram cortadas pela presença da fenda na entrada do equipamento de medida. Na figura (VI-8.3) mostramos uma fotografia do feixe no "far-field". A divergência medida foi da ordem de 2mrad. Notamos ainda que existe um pequeno nível de luz na sombra correspondente ao espelho na figura (VI-8.3), indicando que o feixe tenderá a se fechar quando estiver distante do plano de saída do laser. Isto explica porque o furo central na figura (VI-8.2) não possui um nível de intensidade nulo no centro.

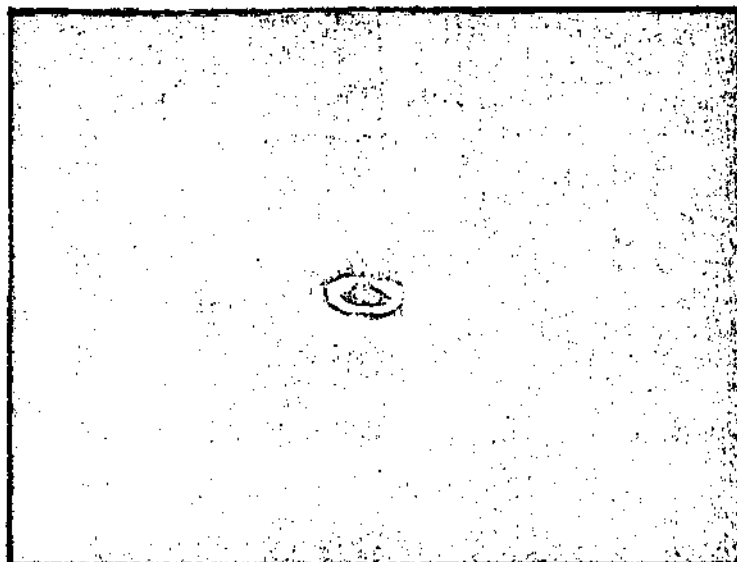


Fig.(VI-8.3) - Feixe no "far-field"

Em inúmeras experiências utilizando lasers, necessitamos de uma distribuição de intensidade do feixe que se aproxime de uma distribuição gaussiana. Quando focalizamos o feixe do laser, o resultado obtido é similar a transformada de Fourier de uma função semelhante a mostrada na figura (VI-8.2). A distribuição de intensidade do feixe para este procedimento é mostrada na figura (VI-8.4). Desta maneira este tipo de laser poderá ser utilizado para inúmeras experiências que requeiram pulsos de curta duração, da ordem de 3 ns como medimos, e de alta intensidade.

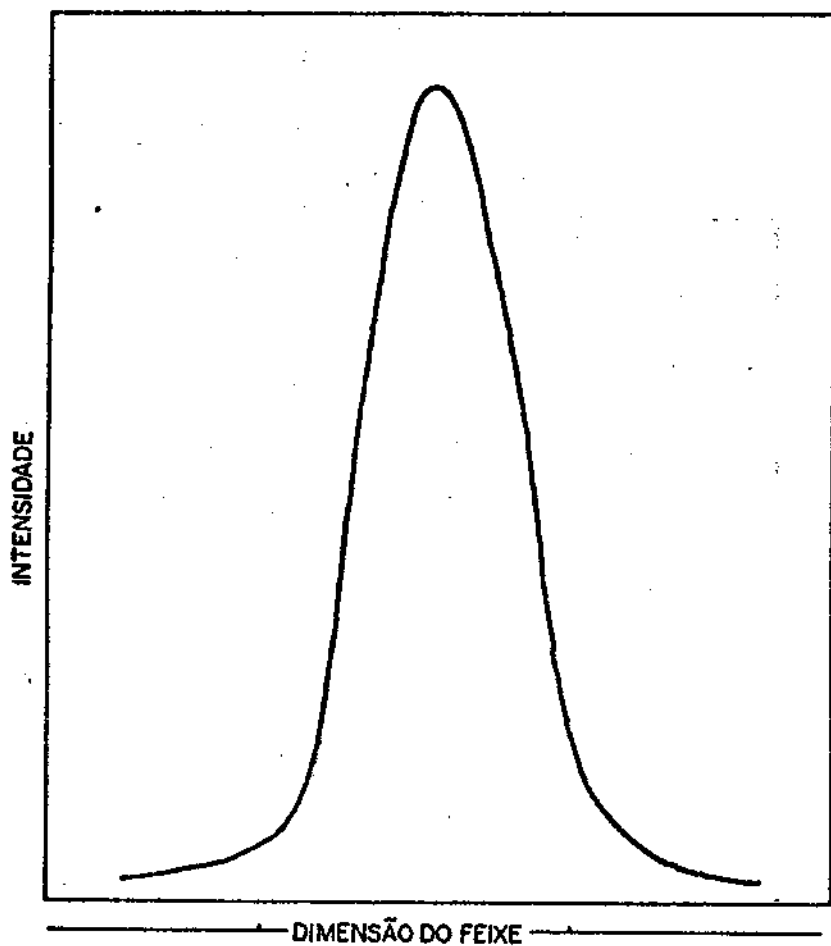


Fig.(VI-8.4) - Feixe do laser focalizado

# CONCLUSÕES

Construímos e caracterizamos um laser de corante com cavidade instável em ring bombeado com um laser de nitrogênio.

Mostramos que é possível se obter um feixe de boa qualidade, colimado, com divergência da ordem de 2 mrad, e pulsos de 160 kW de potência na saída deste laser, para concentrações de corante na solução, de  $10^{-4}$  molar.

Não foi nosso interesse neste trabalho reduzir a largura de linha do laser, porém este procedimento é possível usando-se alguns elementos óticos como etalons. Por comparação com a largura de banda de oscilação de um laser de He Ne, medimos a largura de banda de oscilação do laser de corante, cujo valor foi aproximadamente de 1 Å. Para esta largura de banda de oscilação, etalons podem ser usados sem muita dificuldades para reduzir a largura de linha do laser.

Para o feixe de laser a operação unidirecional da cavidade em ring é importante pois o feixe sofre somente metade das perdas que sofreria numa cavidade convencional.

A teoria desenvolvida para esta configuração, baseada nas características geométricas da cavidade, explica muito bem os resultados experimentais obtidos.

Esperamos que com a utilização de espelhos mais adequados possamos reduzir drasticamente as perdas residuais na cavidade, e com isso, aumentar a eficiência deste laser, com a obtenção de potências de saída mais elevadas.

Pretendemos estender os estudos com mais detalhe, para o entendimento dos fenômenos de inhomogeneidade espaciais e estudar a performance do laser colocando um amplificador acoplado na saída. Desta maneira esperamos obter potências de saída da ordem de 300 kW.

Tentaremos também obter larguras de banda de oscilação mais estreitas para a utilização deste laser em espectroscopia.

## REFERENCIAS

1. KOGELNIK, H. e LI, T. - Proc. of IEEE, 54, (1966) 1312.
2. BOYD, G D e GORDON, J.P. Bell System Tech. J. - 40, (1961) 489.
3. FOX, A.G. e LI, T. - Bell Syst. Tech. J., 40, (1961) 453.
4. FOWLES, G.R. - "Introduction to Modern Optics", 2º ed., Holt, Rinehart and Winston eds, (1975).
5. BARONE, S.R. - Applied Optics, 6, (1967), 861.
6. SIEGMAN, A.E. - Proc. of IEEE, 53, (1965) 277.
7. FOX, A.G. e LI, T. - in "Quantum Electronics III", 2, P. Grivet and N. Bloembergen eds, Columbia U.P., N.Y..
8. EWANIZKY, T.F. - Applied Optics, 18, (1979) 724.
9. KOGELNIK, H. - Bell Syst. Tech. J., 43, (1964) 455.
10. KRUPKE, W.F. e SOOY W. - IEEE J. of Quantum Electr., 15, (1969) 575.
11. EWANIZKY, T.F. e CRAIG, J.M. - Applied Optics, 15, (1976) 1465.
12. EWANIZKY, T.F. - Applied Phys. Letters, 25, (1974) 295.
13. SIEGMAN, A.E. e ARRATHOON, R. - IEEE J. Quantum Electr., 13, (1967) 156.
14. JENKINS, F.A. e WHITE, H.E. - "Fundamentals of Optics", 3º ed., McGraw-Hill Book Co. Inc., eds, (1957).
15. SIEGMAN, A.E. - Applied Optics, 13, (1974) 353.
16. ANNAN'EV, Yu.A., SVENTSITSKAYA, N.A. e SHERSTOBITOV, V.E. - Soviet Phys. JETP, 28, (1969) 69.
17. FREIBERG, R.J., CHENUSKY, P.P. e BUCZEK, C.J. - Applied Optics, 12 (1973) 1140.
18. GREEN, J.M., HOHIMER, J.P., TITTEL, F.K. - Optics Commun., 7, (1973) 349.
19. SCHRÖDER, H.W., STEIN, L., FRÖLICH, D., FUGGER, B. e WELLING, H. - Applied Phys. 14, (1977) 377.

20. BERGSTEIN, L. - Applied Optics, 7, (1968) 495.
21. ANNAN'EV, Yu.A. - Sov. J. Quantum Electron, 5, (1975) 615.
22. TESCHKE, O. - "Dye Laser Mechanisms" - Ph.D. Thesis, University of California, Berkeley, (1975).
23. CUBEDU, R. e DESILVESTRI, S. - Optical and Quantum Electron, 10, (1979) 276.
24. HÄNSCH, T.W. - Applied Optics, 11, (1972) 895.
25. EESLEY, G.L. e LEVENSON, M.D. - IEEE J. Quantum Electron, 12, (1976) 441.
26. HANNA, D.C., KÄRKKÄINEN, P.A. e WYATT - Optics and Quantum Electron, 7, (1975) 115.
27. SHOSHAN, I. e OPPENHEIN, U.P. - Optics Commun., 25, (1978) 375.
28. SHANK, C.V., DIENES, A. e SILVAST, W.T. - Applied Phys. Lett., 17, (1970) 307.
29. KHON, R.L., SHANK, C.V., IPPEN, E.P. e DIENES, A. - Optics Comm., 3, (1971) 177.
30. CURRY, S.M., CUBEDU, R., HÄNSCH, T.W. - Applied Phys., 1, (1973) 153.
31. HANNA, D.C. - IEEE J. Quantum Electron, 5, (1969) 483.
32. COLLINS, S.A. - Applied Optics, 5, (1964) 1263.
33. RIGROD, W.W. - Bell Syst. Tech. J. 44, (1965) 908.
34. KOGELNIK, H., IPPEN, E.P., DIENES A. - IEEE J. Quantum Electron, 8, (1972) 373.
35. TESCHKE, O., DIENES, A., WHINNERY, J.R. - IEEE J. Quantum Electron, 12, (1976) 383.
36. SHANK, C.V., Rev. of Modern Phys., 47, (1975) 649.
37. HEUDORFER, W., MAROWSKY, G. - Appl. Phys., 17, (1978) 181.
38. SOROKIN, P.P. e LANKARD, J.R. - IBM, J. Rev. and Dev., 10, (1966) 162.



39. SHÄFER, F.P., SCHMIOT, W. e VOEZE, J. - Applied Phys. Letters, 9, (1966) 306.
40. SOFFER, B.H. e McFARLAND, B.B. - Applied Phys. Letters, 10, (1967) 286.