

# CONSTRUCCION DE UN LASER DE COLORANTES DE PULSOS LARGOS BOMBEADO POR LAMPARA FLASH

D.Krygier, A.Hnilo, F.P.Diodati

Centro de Investigaciones en Láseres y Aplicaciones CEILAP (CITEFA-CONICET)  
Zufriategui 4380 - Villa Martelli (1603) - Buenos Aires - Argentina  
e-mail: dkrygier@citefa.gov.ar, ahnilo@citefa.gov.ar, pdiodati@citefa.gov.ar

En este trabajo se describe el diseño, la construcción y caracterización de un láser de colorantes de pulsos largos bombeado por lámpara flash. Se logró emisión láser con un pulso de bombeo de 27 $\mu$ s de duración, utilizando un reflector para la cavidad de bombeo hecho con papel aluminio. Se obtuvieron inicialmente pulsos de 2,7 $\mu$ s en 604nm con un ancho de línea de 2nm. El agregado de CicloOctaTetraeno (COT) a la solución para actuar como *quencher*, a fin de desactivar el nivel triplete de la molécula de colorante, redujo el efecto de terminación temprana del láser, elevando la energía a 15 $\mu$ J por pulso con una duración de 6 $\mu$ s. Mediciones posteriores efectuadas después de introducir mejoras en la cavidad óptica llevaron la energía a 55 $\mu$ J por pulso.

In the present work we describe the design build up and characterization of a Long Pulse Flashlamp Pumped Dye Laser. We have got laser emission when using an exciting pulse 27 $\mu$ s long and using a reflector made of Al-foil. Early laser emission was obtained at 604nm with 2nm linewidth and 2,7 $\mu$ s (FWHM) pulses. The addition of CycloOctaTetraeno (COT) to the dye solution, a quencher to deactivate the triplet state of the dye molecule, reduced the early termination effect of the laser extending the pulse duration to 6 $\mu$ s and increasing its energy to 15 $\mu$ J. In subsequent measurements with an enhanced laser cavity the energy grew up to 55 $\mu$ J per pulse.

## Antecedentes

Los Láseres de Colorantes (LDC) bombeados por Lámpara Flash (LF) resultan aptos para el tratamiento de lesiones en la piel del tipo *angioma plano*<sup>(1)</sup>. La emisión del láser se sintoniza en 577nm, que corresponde a uno de los picos de absorción de la hemoglobina, logrando que la radiación sea absorbida preferentemente en el tejido enfermo. La duración recomendada para el pulso en este caso es de ~5 $\mu$ s. Para suministrar la energía necesaria con un pulso muy corto, resultaría una potencia excesiva que haría estallar las células absorbentes causando daños en la periferia. En cambio un pulso muy largo impediría alcanzar la temperatura de *termólisis* a la cual muere la célula enferma, o bien habría disipación de calor hacia el tejido sano circundante, con el consiguiente daño.

Esta circunstancia motivó la decisión de encarar la construcción de un LDC excitado por LF en nuestro laboratorio. Existen antecedentes de otros intentos en el país de hacer funcionar esta clase de dispositivos, pero que no lograron el éxito esperado. En este caso se alcanzó la meta propuesta constituyendo así el primer prototipo de laboratorio que funciona en el país.

## El LDC bombeado por LF

Es bien sabido que la utilización de un colorante orgánico como medio activo permite obtener radiación láser, con características que lo convierten en una herramienta única y versátil. Esto se debe en gran medida al ancho de la transición de fluorescencia y la gran variedad de colorantes orgánicos capaces de emitir en diferentes regiones del espectro, lo cual permite sintonizar al LDC en un amplio rango de frecuencias que se extiende desde el IR hasta el UV cubriendo todo el espectro visible. Asimismo el disponer del colorante en fase líquida permite, mediante circulación de la solución, enfriar la

cavidad y conseguir una excelente calidad óptica, eliminando a la vez cualquier daño eventual producido por un exceso de radiación. La ganancia del medio se escala fácilmente ajustando la concentración de la solución.

El proceso de amplificación de radiación a partir de emisión estimulada, corresponde en este caso a la desexcitación radiativa desde el nivel más bajo de la banda  $S_1$ , que actúa como el nivel superior láser, hacia los distintos subniveles del estado fundamental  $S_1^{(0)} \rightarrow S_0^{(n)}$ . Existe un proceso de decaimiento no radiativo que compete con la transición de fluorescencia, denominado *cruzamiento intersistema*<sup>(2)</sup> en el cual la molécula decae hacia un nivel metaestable  $T_1$ , nivel triplete, antes de retornar a  $S_0$ . Esto ocurre en tiempos de aproximadamente  $K_{S_1-T}^{-1} \sim 50$ ns. El poblamiento del triplete tiene una influencia decisiva en el funcionamiento de los LDC bombeados por LF. Cuando la excitación del LDC se realiza con otro láser se emplean pulsos gigantes de corta duración,  $T \sim 1$ ns, en cambio las LF producen bombeos mucho más largos,  $T \sim 1$  $\mu$ s, dando lugar a un poblamiento significativo del nivel triplete ya que  $T_{\text{bombeo}} > K_{S_1-T}^{-1}$ .

El efecto del triplete resulta desventajoso por varios motivos, y puede inhibir por completo la acción láser. Por empezar la transición  $S_1 \rightarrow T_1$  compete con la emisión estimulada disminuyendo la eficiencia cuántica de fluorescencia. Además, el tiempo de vida del triplete es comparativamente largo,  $T_{ph} \sim 1$  $\mu$ s, demorando el retorno de la molécula al estado fundamental y disminuyendo en definitiva la concentración de medio activo. Finalmente el espectro de absorción triplete-triplete  $T_1 \rightarrow T_n$  se superpone en muchos casos con la emisión de fluorescencia, representando una pérdida adicional para la cavidad.

Para superar estos efectos adversos a fin de alcanzar el umbral láser se debe acortar el pulso de bombeo así como también agregar un *quencher* a la solución, cuya función es acelerar la desactivación del triplete acortando el tiempo de transición hacia el estado fundamental.

### Dispositivo Experimental

El láser se construyó a partir de una fuente de alta tensión que opera con  $V_{max}=2kV$ , con una frecuencia de repetición de disparo ajustable entre 8spp (segundos entre pulsos consecutivos) y 20pps (pulsos por segundo), aunque las frecuencias más empleadas fueron 1pps y 2pps. La fuente posee un sistema de encendido paralelo para la LF. El circuito de conformación de pulso funciona esencialmente como un circuito RLC, con un capacitor de  $30\mu F$  para almacenar la energía, un inductor que conforma el pulso de corriente, y la lámpara flash conectada en serie. La primera cavidad de bombeo incluía una LF de Xe lineal de 3" de largo (modelo ILC4F3) refrigerada por aire, montada en forma paralela a la celda de colorantes. Ambas se acoplan ópticamente por medio de una envoltura de papel de Al<sup>(5)</sup> que actúa como reflector.

La cavidad óptica tiene una configuración plano-plano con 2 espejos de alta reflectividad en el visible separados a 20cm. La transmitancia del espejo de salida ( $T=99\%$ ) está centrada en la  $\lambda_{emisión}$  del colorante.

Se preparó una solución  $1,2 \cdot 10^{-4}M$  de Rodamina590 clorada (R6G) disuelta en etanol. La R6G posee una banda de fluorescencia centrada en 590nm con un ancho espectral de 80nm.

Se construyó una celda de colorante cilíndrica de 3mm de diámetro interno, con ventanas pegadas rigidamente en los extremos para reducir el riesgo de deformación mecánica de las ventanas. El caudal de circulación del colorante dentro de la celda fue de  $\sim 2l/min$ .

### Obtención de la emisión láser

La elección de los parámetros del circuito de descarga estuvo dirigida a obtener un pulso de bombeo de corta duración con máxima energía, a los fines de alcanzar el umbral láser y reducir el poblamiento del triplete. Para ello resultó conveniente trabajar con tensiones mayores, usar capacitores de menor valor de capacidad y minimizar la inductancia del circuito. La dependencia cuadrática de la energía del bombeo con  $V$  permite escalar dicha energía en forma eficiente sin afectar la duración de pulso<sup>(3)</sup>.

Se debió realizar un esmerado diseño para acortar los cables de alimentación entre la fuente y la lámpara para disminuir la inductancia presente en la línea de descarga. Esto permitió acortar la duración del bombeo de  $200\mu s$  a  $30\mu s$ , ancho total a mitad de altura (FWHM). **Se obtuvo por primera vez emisión láser** cuando se experimentaba con una tensión de 1500V y una frecuencia de repetición de 1pps. Como se observaron fuertes variaciones de forma y tamaño en el spot entre disparos se decidió trabajar en condiciones alejadas del umbral láser subiendo la tensión, pero eso condujo a la explosión de la LF. El reemplazo se realizó por otra lámpara similar modelo EG&G62B3 con un sistema de refrigeración por agua. Con este dispositivo se pudo trabajar a máxima tensión en forma confiable y

segura, y se llevaron a cabo las mediciones que se detallan a continuación.

### Caracterización del láser

La medición de la curva de eficiencia se muestra en la Fig. 1, con un valor umbral de 23J. La curva se desvía del comportamiento lineal para energías de bombeo mayores de  $\sim 40J$  ( $V=1600V$ ). Se estima que el fenómeno de saturación está relacionado con la aparición de una lente térmica en el medio activo, la que produce un aumento de las pérdidas en la cavidad al crecer la energía del bombeo.

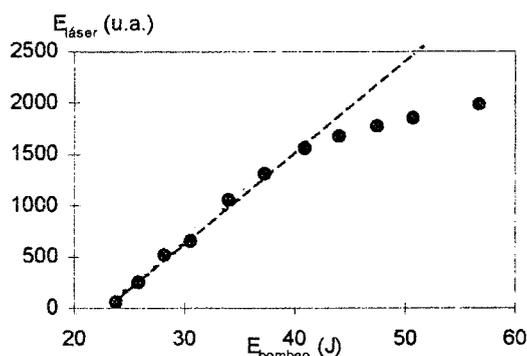


Figura 1: Curva de eficiencia del láser

Para medir la energía del láser se usó un cabezal detector piroeléctrico marca LPC modelo RJP735 colocado frente al espejo de salida, resultando un valor medio de energía  $8\mu J$  por pulso, con  $V=1920V$ .

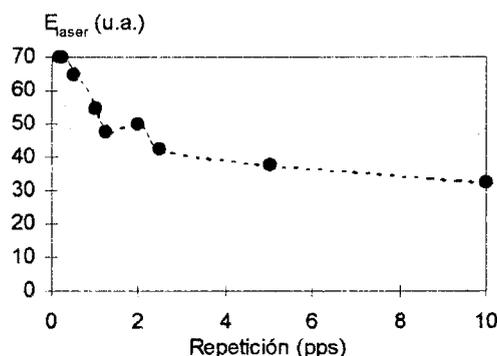


Figura 2: Variación de la energía del láser con la repetición de disparo

Se midió también la variación en la energía del láser aumentando la repetición del disparo de la LF (ver Fig.2). A medida que la repetición sube la energía por pulso cae monótonamente. Partiendo desde los 8spp hasta llegar a 10pps se observa una disminución relativa del valor de energía en un factor 2.

Para determinar el espectro de emisión del láser se colocó una red de 1800lin/mm frente al haz y se examinó en una pantalla el primer orden difractado sobre el plano focal de una lente de 1m. Previamente se estableció una calibración espectral haciendo pasar un haz láser de HeNe (632,8nm) y luego un haz proveniente de un láser de diodos (650nm), estimándose una resolución de 1nm. La imagen en pantalla se capturó usando una cámara digitalizadora VGACAM y

se obtuvo así una curva de emisión centrada en 604,0nm con un ancho de línea de 2,0nm.

La divergencia del haz calculada a partir de mediciones del tamaño de *spot* en campo lejano resultó de ~2mrad.

La concentración de la solución de colorante afecta indudablemente la eficiencia de la cavidad, ya que una solución muy diluida deja pasar de largo la luz proveniente de la lámpara mientras que una muy concentrada absorbe la radiación cerca del borde, impidiendo que ésta alcance el centro de la celda. Para conseguir un bombeo homogéneo en todo el volumen de colorante es preciso hallar una dilución intermedia.

Se efectuaron sucesivas diluciones de la solución de colorante midiendo con cada una de ellas la energía del láser. La curva E vs N (ver Fig.3) presentó un máximo cuando la concentración de R6G fue de  $N_{opt.} = 1,3 \cdot 10^{-4} M$ .

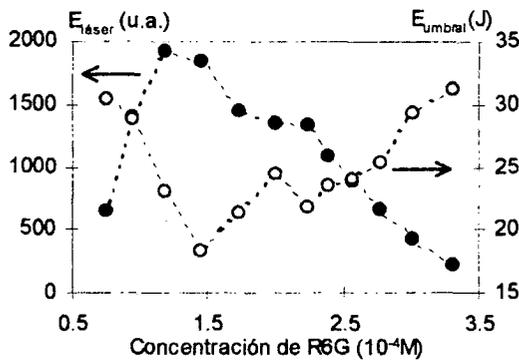


Figura 3: Concentración óptima de colorante

Asimismo, para este valor de concentración el umbral láser presenta su valor más bajo en 18J de bombeo. Este resultado coincide con un valor estimado a partir de un modelo de absorción de radiación en un cilindro con una ley de variación Lambertiana<sup>(4)</sup>.

### Terminación temprana del pulso

Se midió la duración del láser enfocando el haz sobre un fotodiodo rápido simultáneamente al pulso de excitación óptica que se registró con un segundo fotodiodo, orientado hacia la lámpara flash desde una posición lateral. Ambas señales se midieron en un osciloscopio digital de 500MHz, resultando una duración de 27μs para el bombeo y una duración de 2,7μs para el pulso láser (Fig.4).

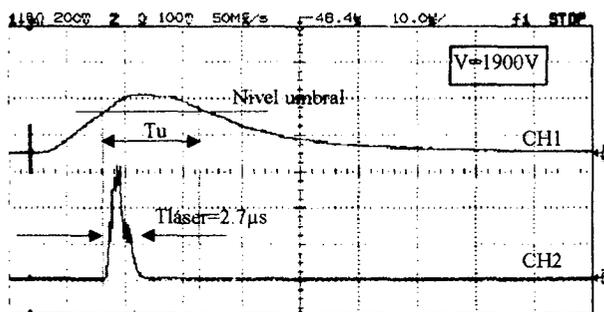


Figura 4: Terminación temprana del pulso. CH1: bombeo. CH2: láser.

El resultado no varió al aumentar el voltaje aplicado sobre la lámpara.

En la Fig.4 también se observa que el láser arranca durante la fase de crecimiento del bombeo y termina prácticamente cuando el pulso de excitación alcanza el máximo.

La terminación del láser antes que el bombeo vuelva a cruzar (hacia abajo) el nivel umbral constituye el fenómeno de *Terminación Temprana* del pulso.

Se definió el parámetro  $\delta$  para establecer la magnitud de este efecto como  $\delta \equiv (T_{láser}/T_u)$ .

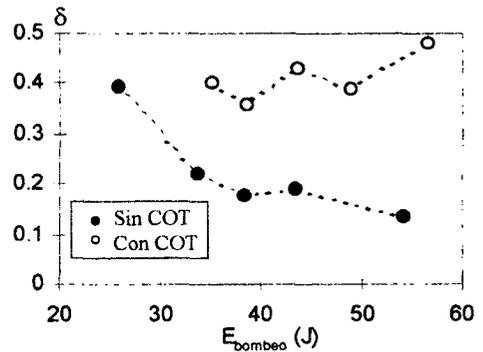


Figura 5: Variación de la duración de pulso con la energía de bombeo

Se observó que el valor de  $\delta$  disminuye para V creciente, a expensas del incremento de  $T_u$  ya que  $T_{láser}$  permaneció constante en ~3μs (Fig.5, sin COT).

Una de las posibles explicaciones de la terminación temprana sería la absorción de la radiación láser desde el estado triplete. Por eso se decidió agregar el *quencher* CicloOctaTetraeno a la solución de colorante hasta obtener una concentración  $10^{-3} M$ , y se midió otra vez la duración del láser. El ancho del pulso prácticamente se duplicó resultando de  $T_{1/2} = 5.8 \mu s$  (Fig.6). Se siguió agregando COT a la solución hasta alcanzar una concentración  $10^{-2} M$  pero ya no se observaron mejoras. Esta vez la duración del láser crece con V. Por eso se observa que el valor de  $\delta$  cambia poco con la  $E_{bombeo}$  mostrando que el láser acompaña al bombeo (Fig.5, con COT).

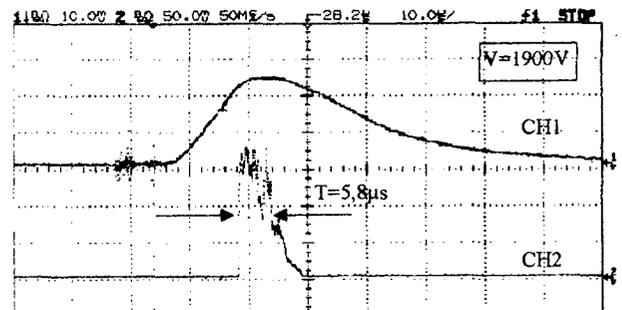


Figura 6: Efecto del COT sobre la duración del pulso

Se verificó también que el estiramiento del pulso estuvo acompañado por un aumento de la energía, obteniendo esta vez 15,7μJ por pulso. Esto representa un incremento de ~100% respecto a los 8μJ medidos sin COT.

A pesar de estas mejoras, el pulso láser finaliza antes que el bombeo vuelva a cruzar el umbral.

### Distorsión óptica del medio activo

Otra causa posible de la terminación temprana del láser es la presencia de inhomogeneidades en la solución.

Se hizo pasar un haz láser de He-Ne a través de la celda y colocando una pantalla a la salida se notó que el spot inicialmente redondo se deformaba durante el disparo de la lámpara. Reemplazando la pantalla por un fotodiodo rápido se registró en un osciloscopio el comportamiento de la señal.

Se analizó las señales en dos escalas de tiempo relevantes: la de  $\sim 10\mu\text{s}$  que da cuenta de lo ocurrido durante el pulso de bombeo, y la de  $\sim 10\text{ms}$  vinculada a la separación entre disparos sucesivos de la LF.

En el instante del disparo se observa una fuerte perturbación en la señal transmitida que se extingue aproximadamente en  $T\sim 300\text{ms}$ . Después de mejorar las condiciones de refrigeración de la cavidad, usando mayores caudales y depósitos más grandes de agua y de colorante, se observó que el tiempo de recuperación del medio entre disparos bajó sensiblemente y se ubicó en  $T\sim 50\text{ms}$  (Fig.7). Esto indica que el origen de este tipo de distorsión es térmico.

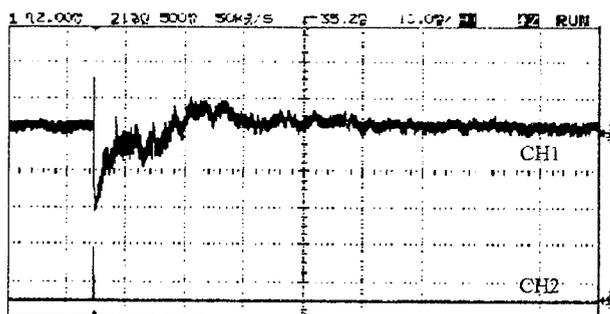


Figura 7: Distorsión óptica del medio, escala de 10ms. CH1:He-Ne. CH2:Disparo de la LF.

La turbulencia del flujo de colorante también introduce un aporte significativo a la distorsión de fondo observada. Sin embargo la reducción del caudal de colorante es una solución inaceptable ya que favorece el recalentamiento de la solución resultando en un deterioro de la calidad óptica aún mayor. La sugerencia<sup>(2)</sup> es trabajar siempre en régimen turbulento para lograr una rápida homogeneización de la solución.

En la escala de tiempos de  $10\mu\text{s}$  se observó que la forma de la señal del He-Ne varía de acuerdo al voltaje aplicado a la LF. Para tensiones elevadas,  $V>1500\text{V}$ , se perfila claramente un pico (Fig. 8, CH1) cada vez más angosto, de  $\sim 10\mu\text{s}$ , cuya posición coincide con la del pulso láser.

Al repetir las mediciones reemplazando el colorante por el solvente puro (etanol) la perturbación desapareció, por lo cual se concluyó que el efecto distorsivo se origina en la absorción del colorante.

La generación de una lente térmica en el medio activo en el instante del disparo podría explicar también el comportamiento observado.

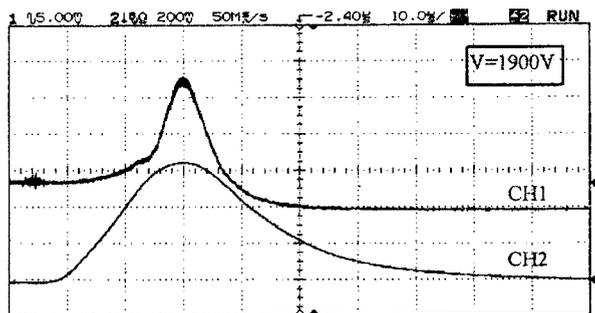


Figura 8: Distorsión óptica de la solución. CH1: He-Ne; CH2: Bombeo.

### Conclusión

Se construyó un LDC excitado por LF que emite en  $604\text{nm}$  con un ancho de línea de  $2\text{nm}$ . La divergencia medida en el campo lejano es de  $\sim 2\text{mrad}$ . La duración de pulso fue de  $2,7\mu\text{s}$  y aumenta a  $5,8\mu\text{s}$  después de agregar a la solución el quencher COT. De este modo también la energía por pulso creció desde  $8\mu\text{J}$  hasta  $15,7\mu\text{J}$ , siempre trabajando a una tensión máxima de  $1900\text{V}$ . Se determinó un umbral láser de  $23\text{J}$  y la curva de eficiencia se aparta de la linealidad por encima de los  $40\text{J}$  de bombeo. Mediciones recientes efectuadas después de introducir mejoras en la cavidad permitieron llevar el umbral a  $15\text{J}$  y la energía por pulso a  $55\mu\text{J}$ . Se presume que el efecto de saturación que se observa en la curva de eficiencia está relacionado con la formación de una lente térmica cuya influencia cobra importancia para energías de bombeo altas. La concentración de R6G que optimiza el acople con el bombeo, maximizando la energía del láser y minimizando el umbral, resultó de  $1,3 \cdot 10^{-4}\text{M}$ .

La utilización de *quenchers* no resultó una condición indispensable para obtener emisión láser, como se creía en un principio. Es en cambio importante la implementación de un pulso de bombeo de corta duración. El agregado de COT es efectivo para reducir el efecto de terminación prematura del láser ya que permite duplicar la duración y la energía del pulso, por lo que concluimos que el triplete afecta pero no impide la acción láser.

Se atribuye también a la distorsión óptica en la solución durante el disparo de la LF la terminación temprana del pulso remanente. El mecanismo de este proceso se basaría en la formación de una lente térmica que altera la configuración de la cavidad.

Se propone para un futuro trabajo sustituir el espejo de salida por otro de menor reflectividad que permita extraer más energía de la cavidad. El ensayo de una cavidad geoméricamente estable utilizando espejos curvos, teniendo en cuenta el valor de la presunta lente térmica, podría redundar en mejoras en la calidad espacial del haz y en la robustez de la cavidad. La implementación de un pulso de excitación trapezoidal, con una trepada rápida y que mantenga un nivel del bombeo constante a lo largo del pulso, se recomienda para un mejor aprovechamiento de la energía del bombeo.

La incorporación de filtros UV e IR para la radiación proveniente de la LF contribuirían a preservar el colorante

y también la acción del quencher<sup>(4)</sup>, evitando también un recalentamiento innecesario de la solución.

### Referencias

- 1- R.Carroll, "The dye laser's surgical successes", Photonic Spectra, Sept. 1986.
- 2- F.P.Schafer, "Topics in Applied Physics: Dye Lasers", Springer-Verlag, 1977.
- 3- R.H.Dishington, W.R.Hook, R.P.Hilberg, "Flashlamp Discharge and Laser Efficiency"; Applied Optics 13, p.2300, En. 1994.
- 4- M.Marioni, E.Succo, A.Sartarelli, "Construcción de un Laser de NdYAG Continuo Bombeado por Lámparas Halógenas de Filamento", Trabajo de Laboratorio 6 y 7, Sept. 1994.
- 5- R.Pappalardo, H.Samelson, A.Lempicki, "LongPulse Laser Emission From Rhodamine6G", IEEE Journal of Quantum Electronics, p.716, Nov. 1970.
- 6- A.Blit, B.Fisher, M.Ganiel, "Early Termination of Flashlamp Pumped Dye Laser by Shock Wave Formation", Applied Optics 13, p.335, Feb. 1974.