AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**Desenvolvimento de um laser Raman com bombeamento transversal em
configuração de ângulo rasante**

Cristine Calil Kores

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Materiais**

Orientador:

Prof. Dr. Niklaus Ursus Wetter

São Paulo

2015

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**Desenvolvimento de um laser Raman com bombeamento transversal em
configuração de ângulo rasante**

Cristine Calil Kores

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Materiais**

Orientador:

Prof. Dr. Niklaus Ursus Wetter

Versão Corrigida

Versão Original disponível no IPEN

São Paulo

2015

Agradecimentos

Agradeço ao Niklaus Ursus Wetter pela orientação, por ter me concedido a oportunidade de realizar este trabalho, pela confiança em mim depositada, por ter contribuído para a construção do meu conhecimento acadêmico nestes últimos seis anos, além de viabilizar o suporte para o desenvolvimento de toda a pesquisa no laboratório.

Aos meus colegas do laboratório: Adriana, Alessandro, Allan, Danilo, Fábio, João Pedro, Julia, Kelly, Lídia, Marcio e Regiane por tornarem o trabalho do dia a dia muito mais dinâmico, divertido e agradável. Ao Jonas, pelas inúmeras discussões elucidativas, seja por email, pessoalmente ou ainda me ajudando no laboratório. Agradeço ao Dimitri e à Saara, por terem passado dois anos conosco e me ensinado tanto sobre tantas coisas. À Fabiola, por ter me mostrado as primeiras coisas no laboratório quando eu dava meus primeiros passos. Agradeço também aos colegas do CLA, em especial ao Cássio, Letícia, Lucas, Marcus Raele e Thiago Cordeiro.

Aos funcionários do CLA encarregados da manutenção, que sempre garantiram o bom funcionamento das dependências, e à dona Marta pelo café forte. Ao Marcão e ao Paulinho, por confeccionarem tão habilmente os vários suportes de que precisei. Às agências de fomento CAPES, CNPq e Fapesp.

À minha mãe, Marisa, e ao meu irmão, Ricardo, que são as pessoas mais importantes na minha vida. Ao meu pai, Jaroslav, que me faz falta. E à minha família, sem a qual eu não seria quem sou.

Aos que estão sempre no meu coração, Andre, Aninha, Eliza, Fabrizio, Laís, Phablo, Roberta e Thiago Meister, e que me proporcionam tantos momentos ótimos.

Aos meus mais recentes amigos da escola de inverno do ICTP, que confirmaram minha ideia de que na pesquisa científica se fala a mesma língua, e que a ciência é um bem universal que deve ser colaborativo e independer de disputas políticas, diferenças religiosas e culturais, e isso faz a beleza da ciência./ To my most recent friends from ICTP Winter College, who have confirmed my idea that in scientific research we all speak the same language and science is a universal good that should be collaborative and independent of political disputes, cultural and religious differences, and this is what makes the beauty of science.

“We measure our growth by the precious gift
of the opportunity to discover and learn.
Art and science are the great mediums
of free thought.”

Taylor Family

Desenvolvimento de um laser Raman com bombeamento transversal em configuração de ângulo rasante

Cristine Calil Kores

Resumo

Lasers Raman são dispositivos que proporcionam uma maneira prática de transformar comprimentos de onda fundamentais em novas linhas espectrais via Espalhamento Raman Estimulado (*Stimulated Raman Scattering* - SRS). Quando combinados com outros processos de conversão não lineares, os lasers Raman fornecem acesso a comprimentos de onda na região do visível no espectro eletromagnético, que de outra maneira seriam de difícil acesso, como o laranja-amarelo, verde-limão e diversas linhas no azul. A grande vantagem dos lasers Raman é a possibilidade de geração de múltiplas frequências a partir de uma mesma combinação de cristais, tornando esse tipo de laser dispositivos baratos e compactos quando comparados a tecnologias como OPO.

Neste trabalho um cristal de Nd:YVO₄ foi bombeado por diodo, em configuração transversal, sendo o cristal o responsável pela emissão laser e pelo espalhamento Raman. Na primeira parte do trabalho, a cavidade utilizada apresentava alto fator de qualidade para o comprimento de onda fundamental (1064 nm) e foi estudada a operação laser do 1º Stokes (1176 nm) em regimes de operação quase contínua (q-cw) e contínua (cw). Foi explorada a configuração com uma dobra do feixe laser em ângulo rasante na superfície de bombeamento, bem como a configuração com duas dobras nesta mesma superfície (*double beam mode controlling* - DBMC). Na segunda parte do trabalho, um cristal LBO foi utilizado para a geração do segundo harmônico (SHG) em 588 nm, o que corresponde a um laser laranja-amarelo. Foi utilizada a configuração com uma dobra e operação cw, com a qual a cavidade apresentava alto fator de qualidade tanto para o 1064 nm quanto 1176 nm.

Com a configuração de uma dobra, foi demonstrado que o laser Raman opera em multimodo, com uma variedade de modos de Hermite-Gauss que puderam ser selecionados através apenas do alinhamento da cavidade, incluindo o modo TEM₀₀. Com configuração DBMC, o laser apresentou operação estável oscilando o modo TEM₀₀.

Em 1176 nm em regime q-cw, foi obtida a potência máxima de 8,2 W por pulso (multimodo) e 11,7% de eficiência óptica de conversão (diodo para o 1º Stokes), e operando em modo TEM₀₀ a potência máxima de 3,7 W por pulso e eficiência de 5,4% foi obtida com a configuração de duas dobras, de maneira que a tecnologia DBMC se mostrou eficiente para geração de um laser robusto e estável operando com o modo TEM₀₀. Em regime cw o melhor resultado em termos de potência e eficiência foi obtido com a configuração de uma dobra, correspondendo a 1,8 W e 7,3% de eficiência com o laser operando em multimodo.

Com o laser laranja, foi demonstrada a operação do modo TEM₀₀ para potências de bombeamento abaixo de 14,5 W. A potência máxima obtida em multimodo foi 820 mW correspondendo a 4% de eficiência óptica de conversão.

Palavras-chave: laser, laser de estado sólido, Nd:YVO₄, laser Raman, bombeamento transversal, geração de segundo harmônico.

Development of a side-pumped Raman laser in a grazing incidence geometry

Cristine Calil Kores

Abstract

Raman lasers are devices that provide practical means to shift fundamental laser wavelengths into new spectral lines via Stimulated Raman Scattering (SRS). When combined with other nonlinear conversion processes, Raman lasers permit access to hard-to-reach regions of the visible electromagnetic spectrum, for example, orange-yellow, lime-green and several blue lines. The great advantage of Raman lasers is the possibility of generating multiple wavelengths using the same set of crystals, which make these devices compact and practical when compared to other technologies as OPOs.

In this work, the Nd:YVO₄ crystal was laterally pumped by a diode laser and this crystal was responsible for laser generation as well as SRS. In the first part of this work, the laser cavity presented a high Q factor for the fundamental laser wavelength (1064 nm) and the laser operation at the first Stokes (1176 nm) was characterized under quasi-continuous wave operation (q-cw) and in continuous wave (cw) operation. The grazing incidence geometry of the cavity with a single bounce of the laser beam at the pumped facet of the crystal was exploited, as well as with the double bounce (double beam mode controlling - DBMC) of the laser beam at this same crystal facet. In the second part of this work, a LBO crystal was utilized for the second harmonic generation (SHG) at 588 nm, which corresponds to an orange-yellow laser. The single bounce cavity configuration was utilized under cw operation, which presented high Q factor at 1176 nm and at 1064 nm.

With the single bounce configuration, the laser operated in a variety of Hermite-Gaussian transversal modes that could be selected simply by cavity alignment, including the TEM₀₀ mode. With the DBMC technology, the laser presented stable operation of the TEM₀₀ mode.

At 1176 nm, under q-cw regime, the maximum output peak power of 8.2 W (multimode) was achieved, corresponding to an optical conversion efficiency (diode to 1st Stokes) of 11.7%, and operation of the TEM₀₀ mode yielded a maximum output peak power of 3.7 W and 5.4% efficiency with the double bounce configuration, hence the DBMC technology showed to be an efficient method for the generation of a stable and robust laser operating with TEM₀₀ mode. Under cw regime, the best result in terms of power and efficiency was obtained with the single bounce geometry, yielding 1.8 W (multimode) corresponding to 7.3% efficiency.

For the orange-yellow laser, operation of the TEM₀₀ laser mode was demonstrated for low pump powers up to 14.5 W. The maximum output power achieved in multimode operation was 820 mW and 4% optical conversion efficiency.

Keywords: laser, solid state laser, Nd:YVO₄, Raman laser, side-pumping, second harmonic generation.

Sumário

1	Introdução	1
2	Fundamentos Teóricos	5
2.1	Aspectos físicos que tornam o laser possível	5
2.1.1	Laser de Neodímio de quatro níveis	8
2.2	Interação não ressonante da radiação eletromagnética com a matéria	10
2.2.1	Espalhamento Raman	10
2.2.2	SRS - Lasers Raman	14
2.2.3	Geração harmônica - cristais não lineares	17
2.3	O cristal Nd:YVO ₄	19
2.3.1	Nd:YVO ₄ como meio ativo laser	19
2.3.2	YVO ₄ como meio ativo Raman	22
2.4	Diodo laser como fonte de bombeamento	22
2.5	Lente térmica	23
2.6	Modos no ressonador	25
3	Histórico dos lasers Raman de Nd	29
3.1	Lasers com emissão no 1º Stokes	29
3.1.1	Configuração de bombeamento longitudinal	29
3.1.1.1	Pulsados	29
3.1.1.2	cw	30
3.1.2	Configuração de bombeamento transversal	30
3.1.2.1	Pulsados	30
3.1.2.2	cw	31
3.2	Lasers laranja-amarelos	31
3.3	Aplicações	31
4	Materiais e Métodos	35
4.1	O Cristal Nd:YVO ₄	35

4.2	Caracterização do diodo laser	37
4.3	Configurações de bombeamento transversal	38
4.3.1	Regimes de bombeamento q-cw e cw	40
5	Resultados e discussão	43
5.1	Laser Raman em 1176 nm	43
5.1.1	Regime q-cw	43
5.1.2	Regime cw	47
5.2	Laser em 588 nm	53
5.3	Fluorescência azul	57
6	Conclusão	59
A	Equacionamento dos modos retangulares no ressonador	61

Lista de Figuras

Figura 1	Esquematização dos processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada em um sistema de dois níveis.	6
Figura 2	Esquematização dos níveis de energia relevantes para um laser de quatro níveis . . .	9
Figura 3	Esquematização dos níveis de energia vibracionais discretos de uma molécula. . .	13
Figura 4	Radiação eletromagnética que sofre espalhamento Raman.	13
Figura 5	Esquematização da relação entre as frequências da radiação incidente ω_i , radiação Stokes ω_s e radiação anti-Stokes ω_a	13
Figura 6	Diferentes arquiteturas de lasers Raman.	15
Figura 7	Definição da polarização ordinária e extraordinária, para um cristal não linear. . .	18
Figura 8	Temperatura necessária para o acoplamento de fase para SHG no cristal LBO, em função do comprimento de onda.	19
Figura 9	Níveis de energia do cristal $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$	21
Figura 10	Propriedades de alguns dos cristais Raman mais utilizados.	22
Figura 11	Esquematização da divergência de um feixe gaussiano teórico, e da divergência de um feixe real, a partir das quais se obtém o fator de qualidade M^2	26
Figura 12	Imagens de telangiectasia na pele e no olho.	32
Figura 13	Janela biológica.	32
Figura 14	Medida experimental dos coeficientes de absorção do cristal $\text{Nd}:\text{YVO}_4$, utilizando luz polarizada em π e σ	36
Figura 15	Potência do diodo (880 nm) em função da corrente, para regime cw e temperatura de 28° C e regime q-cw com temperaturas 25° C e 31° C.	37
Figura 16	Espectro de emissão do diodo, em regime cw.	38
Figura 17	Esquematização da geometria de bombeamento transversal em ângulo rasante, com as configurações de uma dobra e duas dobras (DBMC).	39
Figura 18	Esquematização da cavidade laser em configuração de ângulo rasante e uma dobra, para a geração do laser em 588 nm.	40

Figura 19	Espectro de emissão com o fundamental em 1064 nm e o 1º Stokes em 1176 nm, em regime q-cw.	43
Figura 20	Modos TEM do laser Raman em 1176 nm, obtidos com configuração de uma dobra, em regime q-cw.	44
Figura 21	Imagem do feixe laser no 1º Stokes e do feixe laser fundamental, mostrando uma depleção espacial do campo fundamental e um feixe Stokes “limpo”.	45
Figura 22	Gráficos da potência por pico do laser Raman em 1176 nm, em função da potência do diodo, em regime q-cw, para as configurações de uma dobra com TEM ₀₀ , uma dobra multimodo e duas dobras com TEM ₀₀	45
Figura 23	Medida do parâmetro M ² do laser em 1176 nm em regime q-cw e configuração de uma dobra.	46
Figura 24	Medida do parâmetro M ² para o laser em 1176 nm, em regime q-cw e configuração de duas dobras.	47
Figura 25	Espectro de emissão do laser Raman em 1176 nm em regime cw.	47
Figura 26	Gráfico da potência do laser Raman em 1176 nm, em função da potência incidente do diodo, em regime cw e configuração de uma dobra.	48
Figura 27	Medida do parâmetro M ² para o laser em 1176 nm, regime cw e configuração de uma dobra.	49
Figura 28	Gráfico da potência do laser Raman em 1176 nm, em função da potência do diodo, em regime cw e configuração DBMC.	49
Figura 29	Espectro do laser fundamental em 1064 nm, simultaneamente com a SRS, para investigar se há alargamento no espectro.	50
Figura 30	Medida do parâmetro M ² para o laser em 1176 nm, em regime cw e configuração DBMC.	50
Figura 31	Esquematização do volume dentro do cristal em que o calor é depositado pelo (a) espalhamento Raman e (b) bombeamento.	52
Figura 32	Esquematização dos comprimentos de onda gerados no ressonador laser com o cristal dobrador.	53
Figura 33	Espectros dos laser no visível obtidos a partir do laser fundamental em 1064 nm e Raman em 1176 nm, com o cristal LBO.	54
Figura 34	Foto do feixe laser laranja.	55
Figura 35	Imagens dos feixes laser visíveis obtidos.	55
Figura 36	Potência de saída em 588 nm em função da potência incidente de bombeamento, em regime cw e configuração de uma dobra.	56
Figura 37	Medida do parâmetro M ² para o laser em 588 nm, cw, uma dobra.	56
Figura 38	Imagens da fluorescência azul observada no cristal.	57

Capítulo 1

Introdução

Nas duas últimas décadas, houve um grande interesse no desenvolvimento de lasers Raman de estado sólido pois eles proporcionam uma maneira prática de transformar comprimentos de onda fundamentais em novas linhas espectrais via Espalhamento Raman Estimulado (*Stimulated Raman Scattering* - SRS). A melhora contínua nos *coatings* (filmes finos) disponíveis e na tecnologia de crescimento de cristais contribui significativamente para o desenvolvimento dos lasers Raman, operando próximos à eficiência quântica e atingindo altas potências de saída e altas energias por pulso [1]. Quando combinados com processos de conversão não lineares, os lasers Raman fornecem acesso a comprimentos de onda na região do visível no espectro eletromagnético, que de outra maneira seriam de difícil acesso, como o verde-limão, diversas linhas no azul [2] e o laranja-amarelo [3], este último encontrando aplicações em várias áreas, como medicina, biomedicina [4], e sensoriamento remoto [5]. Uma grande vantagem é a possibilidade de geração de múltiplas (>5, considerando apenas o 1º Stokes) frequências no visível que abrangem um intervalo de 15 nm até 100 nm (em linhas discretas), sendo, portanto, dispositivos laser baratos e compactos que podem substituir parcialmente OPOs muito mais caros.

Os lasers Raman mais compactos, simples e de baixo custo são os lasers self-Raman, em que a geração do laser e o SRS ocorrem no mesmo cristal, apresentando baixas perdas no ressonador por haver menos componentes ópticos. As perdas são de grande importância para a eficiência do laser pois o ganho óptico fornecido pelo SRS é pequeno comparado aos valores médios de ganho dos meios laser dopados com terras raras [6, 7, 8]. Os lasers self-Raman apresentam essencialmente duas desvantagens: primeiramente, não há como otimizar separadamente o tamanho do modo no cristal laser e no cristal Raman para obter o melhor acoplamento de modos; e em segundo lugar, a carga térmica é maior, sendo este o principal fator limitante de potência para os lasers self-Raman. Nos lasers Raman cristalinos, a carga térmica não é apenas induzida pelo bombeamento, como também pelo processo de espalhamento inelástico que gera o campo Stokes, de modo que em um laser self-Raman a carga térmica causa limitações severas quando o laser opera em altas potências.

O cristal YVO₄ foi sugerido como um meio ativo Raman promissor pela primeira vez em 2001 por

Kaminskii et al. [9]. Desde então, este cristal tem sido explorado como meio de ganho laser/ Raman para sistemas laser pulsados e, mais recentemente, dispositivos cw (*continuous wave* ou operação contínua). Como a principal limitação para a potência de saída de um laser self-Raman são os efeitos térmicos no cristal, o bombeamento direto do cristal YVO₄ dopado com Neodímio torna-se interessante, e este bombeamento em 880 nm ao invés do tradicional 808 nm elimina parte da perda por defeito quântico [10, 11], reduzindo o calor em ~25 % [12]. Neste trabalho, a emissão laser se dá em 1064 nm, e com o espalhamento Raman (foi escolhido o Stokes shift de 890 cm⁻¹ por ser o pico de maior valor de secção de choque de espalhamento) tem-se o laser Raman em 1176 nm, a partir da qual é possível obter o laser laranja-amarelo em 588 nm a partir da geração de segundo harmônico.

Na configuração de bombeamento longitudinal por diodo, é difícil atingir altas potências pela forte lente térmica e pela impossibilidade de escalonamento da potência [13]: o bombeamento pode ocorrer apenas nas duas extremidades, ao passo que o bombeamento transversal pode ser realizado por todas as direções perpendiculares à emissão laser - como exemplo, considerando módulos laser comerciais, o bombeamento por barras de diodo é feito ao redor do cristal em forma de bastão. Além disso, o bombeamento longitudinal exige a utilização de diodos laser acoplados a fibra, que são dispositivos de maiores custos e dimensões que as barras de diodo utilizadas para o bombeamento transversal. Uma configuração atraente é o bombeamento lateral com configuração de ângulo rasante [14], em que o modo laser sofre reflexão interna total na face de bombeamento do cristal.

Com essa geometria e com dois espelhos formando o ressonador laser, acontece uma reflexão interna total (uma dobra); já com a utilização de três espelhos, o feixe laser sofre uma segunda reflexão, passando duas vezes pelo cristal (duas dobras). Com a configuração de uma dobra, utilizando a geometria de ângulo rasante, o laser opera em uma variedade de modos transversais de Hermite-Gauss, dependendo do alinhamento dos espelhos, e para o laser Nd:YVO₄ em 1064 nm essa geometria tem mostrado altas potências de saída e uma *slope efficiency* de 74% [15]. Usando a tecnologia *double beam mode-controlling* (DBMC) - que foi desenvolvida no laboratório de desenvolvimentos de lasers do CLA, no IPEN, e gerou um pedido de patente em 2008 e outro em 2013 - o comportamento do modo pode ser controlado ao mudar o ângulo que os feixes laser fazem com a superfície de bombeamento do cristal e a distância entre os dois feixes nesta face. Com essa configuração, os dois feixes laser competem entre si por uma mesma região de ganho, tornando menor o tamanho efetivo do modo de cada feixe, de maneira que juntos eles são capazes de ocupar toda a região de inversão de população no cristal e desta forma impedir a oscilação de modos de ordens superiores [16].

Objetivo

O objetivo deste trabalho foi o desenvolvimento de um laser self-Raman bombeado por diodo, com bombeamento transversal em configuração de ângulo rasante sob regimes de bombeamento q-cw (*quasi-continuous wave* ou quase contínuo) e cw. O meio ativo laser e Raman utilizado foi o cristal Nd:YVO₄, com o qual foi explorado o 1° Stokes em 1176 nm, bem como a geração do 2° harmônico em 588 nm.

Capítulo 2

Fundamentos Teóricos

2.1 Aspectos físicos que tornam o laser possível

Dado um sistema físico formado por uma coleção de átomos (ou moléculas) posicionados entre dois espelhos, havendo algum processo de bombeamento de energia - como absorção da luz de uma lâmpada ou excitação por impacto eletrônico em um meio gasoso - alguns desses átomos são promovidos para um estado excitado. Como o nível fundamental é o nível de menor energia, os átomos excitados tendem a voltar para esse nível, e para isso decaem de forma radiativa ou não radiativa. O decaimento não-radiativo é através da emissão de fônons, que são a quantização da energia vibracional da molécula, e o decaimento radiativo se dá através da emissão de fótons, que são a quantização da radiação eletromagnética. Este processo de decaimento radiativo é chamado emissão espontânea, e é um processo dependente do tempo de vida do nível superior. Cada fóton emitido pode induzir um átomo excitado a emitir outro fóton de mesma frequência, direção e fase que o primeiro, e esse processo é chamado emissão estimulada. Quanto mais fótons são produzidos, mais rápida se dará a produção de ainda mais fótons, em um efeito cascata, pois a taxa de emissão estimulada é proporcional ao fluxo de fótons existentes. Os processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada estão esquematizados na figura 1.

Os espelhos do laser impedem que os fótons escapem completamente, de maneira que possam ser redirecionados no meio ativo laser a fim de estimular a emissão de mais fótons. Fazendo os espelhos parcialmente transmissores, alguns fótons escapam da cavidade e eles constituem o feixe de saída do laser. A intensidade deste feixe é determinada por aspectos como a taxa de produção de átomos excitados, pela refletividade dos espelhos e outras propriedades dos átomos constituintes do meio ativo. Esse processo de amplificação da emissão estimulada de fótons é o laser (LIGHT AMPLIFICATION BY STIMULATED EMISSION OF RADIATION).

Considerando um sistema atômico de dois níveis, sendo N_1 a densidade de população do nível 1 e N_2 do nível 2, e sendo a relação entre as energias $E_1 < E_2$, pode-se equacionar os processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada. Tratando-se de elétrons no equilíbrio térmico pode-se

Figura 1: Esquematização dos processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada em um sistema de dois níveis.

descrevê-los a partir da distribuição de Boltzmann [17]:

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{g_1}{g_2} e^{-\left(\frac{E_2 - E_1}{kT}\right)} \quad (1)$$

em que g_1 e g_2 são as degenerescências dos níveis 1 e 2, T a temperatura absoluta, e k é a constante de Boltzmann. Na presença de um campo eletromagnético de densidade de energia $\rho(\nu)$, o átomo pode absorver fótons de energia $h\nu_{12} = E_2 - E_1$, promovendo elétrons do nível 1 para o nível 2. Essa absorção aumenta N_2 , conforme:

$$\frac{dN_2}{dt} = B_{12}N_1\rho(\nu) = W_{12}N_1 \quad (2)$$

em que B_{12} é o coeficiente de Einstein para absorção induzida por um campo eletromagnético externo, e W_{12} é a taxa de absorção do nível 1 para o 2. A emissão espontânea diminui a população do nível 2, conforme a relação:

$$\frac{dN_2}{dt} = -A_{21}N_2 = \frac{N_2}{\tau_{21}} \quad (3)$$

sendo A_{21} o coeficiente de Einstein para decaimento espontâneo do nível 2 para o 1, e τ_{21} é chamado tempo de vida do nível 2, que é o tempo característico de decaimento espontâneo do nível 2 para o nível 1. Por fim, o processo da emissão estimulada reduz a população do nível 2, de acordo com a expressão:

$$\frac{dN_2}{dt} = -B_{21}N_2\rho(\nu) = -W_{21}N_2 \quad (4)$$

em que B_{21} é o coeficiente de Einstein para emissão estimulada e W_{21} é a taxa de emissão estimulada do nível 2 para o nível 1. No equilíbrio, a população do nível 2 deve manter-se constante, de maneira que a variação de N_2 devida à absorção deve ser equivalente à variação devida aos processos de emissão, de maneira que é possível escrever:

$$B_{12}N_1\rho(\nu) - A_{21}N_2 - B_{21}N_2\rho(\nu) = 0 \quad (5)$$

isolando o parâmetro $\rho(\nu)$, obtem-se:

$$\rho(\nu) = \frac{A_{21}N_2}{B_{12}N_1 - B_{21}N_2} \quad (6)$$

agora, dividindo o numerador e o denominador por N_2 e usando 1, obtem-se:

$$\rho(\nu) = \frac{A_{21}}{B_{21}} \left(\frac{B_{12}}{B_{21}} \frac{g_2}{g_1} e^{\left(\frac{E_2-E_1}{kT}\right)} - 1 \right)^{-1} \quad (7)$$

A relação de Planck para a radiação de corpo negro é dada pela seguinte expressão:

$$\rho_{CN}(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3 \left(e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1 \right)} \quad (8)$$

Igualando as expressões 7 e 8, obtem-se a relação entre os coeficientes de Einsten:

$$\frac{A_{21}}{B_{21}} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} e \frac{B_{12}g_2}{B_{21}g_1} = 1 \quad (9)$$

A partir da relação 9, pode-se verificar que quando dois níveis têm degenerescências iguais, a probabilidade de absorção será igual à probabilidade de emissão estimulada.

Considerando-se a propagação de radiação de determinada frequência em um meio cujos átomos tenham uma frequência de transição igual ou muito próxima à frequência dessa radiação, se houver mais átomos no nível superior do que no nível inferior, então haverá mais emissão estimulada do que absorção, de maneira que a radiação pode ser amplificada conforme se propaga - em um caso como esse é dito que há ganho na frequência ressonante.

A expressão que fornece o coeficiente de ganho é dada pela equação 10, conforme:

$$g(\nu) = \sigma(\nu) \cdot \left(N_2 - \frac{g_1}{g_2} \cdot N_1 \right) \quad (10)$$

em que $\sigma(\nu)$ é a secção de choque de emissão estimulada (e de absorção), conforme equação 11:

$$\sigma(\nu) = \frac{\lambda^2 \cdot A_{21}}{8 \cdot \pi} g(\nu_s, \nu_0) \quad (11)$$

Na expressão 10, quando o fator entre parênteses é positivo, $g(\nu)$ é chamado coeficiente de ganho, e quando é negativo, é chamado coeficiente de absorção. $\sigma(\nu)$ tem dimensão de área e é uma medida de quão forte é a emissão estimulada em uma dada transição, e nota-se que é um parâmetro que depende da frequência da transição, da taxa de emissão espontânea A_{21} e de $g(\nu_s, \nu_0)$ que é uma função que representa a interação entre uma linha de transição atômica centrada em ν_0 de largura não desprezível (LINEWIDTH-BROADENED) e um sinal discreto centrado em ν_s (NARROW BAND).

O único fator que distingue um meio amplificador de um meio absorvedor é o sinal da inversão de população $N_2 - N_1$, ou, caso os níveis possuam degenerescências g_2 e g_1 , o sinal de $N_2 - (g_2/g_1)/N_1$. A maneira usual utilizada para que o sinal seja amplificado repetidamente é a utilização de espelhos nas extremidades do meio ativo, e a esse conjunto chamamos cavidade.

Em um laser, não há apenas o aumento do número de fótons na cavidade devido à emissão estimulada, mas também uma diminuição por efeitos de perda, entre os quais pode-se citar espalhamento e absorção da radiação pelos espelhos, transições não radiativas no meio ativo, ou a transmissão parcial do espelho de saída do feixe laser. Esses fatores impõem um limite inferior no coeficiente de ganho, abaixo do qual a ação laser não ocorre, e esse coeficiente mínimo de ganho é chamado condição do limiar de operação laser (*threshold condition*), e conhecer a potência de bombeamento para o limiar de oscilação laser é importante para determinar as perdas na cavidade. O valor do ganho no limiar de operação do laser é dado pela equação 12:

$$g_t = -\frac{1}{2l} \cdot \ln(r_1 \cdot r_2) \quad (12)$$

em que r_1 e r_2 são os coeficientes de reflexão dos dois espelhos (considerando-se o caso mais simples de uma cavidade linear) e l é o comprimento do meio ativo, em que estão sendo consideradas apenas as perdas que ocorrem nos espelhos, desconsiderando-se possíveis espalhamento ou absorção no meio ativo. Utilizando a expressão 12 juntamente com as equações 10 e 11, pode-se calcular a inversão populacional no limiar de operação laser, conforme equação 13:

$$\Delta N_t = \left(N_2 - \frac{g_2}{g_1} \cdot N_1 \right) = \frac{8 \cdot \pi \cdot g_t}{\lambda^2 \cdot A_{21} \cdot g(\nu_s, \nu_0)} = \frac{g_t}{\sigma(\nu)} \quad (13)$$

2.1.1 Laser de Neodímio de quatro níveis

Um esquema eficiente para a obtenção de inversão de população é o esquema do laser de quatro níveis, conforme figura 2. O bombeamento excita o átomo do nível fundamental 0 para o nível 3, de onde o átomo decai rapidamente - por processos não radiativos - para o nível 2, que é um nível metaestável. Neste modelo, o nível laser inferior não é o nível fundamental, mas um estado excitado de onde o átomo

Figura 2: Esquematização dos níveis de energia relevantes para um laser de quatro níveis

decairá para o nível fundamental, e a inversão de população se dá entre os níveis 1 e 2, e é $N_2 - N_1$. O decaimento do nível 3 para o nível 2 é idealmente instantâneo, de maneira que se pode aproximar $N_3 \simeq 0$, e as equações de taxa das populações podem ser escritas conforme:

$$\frac{dN_0}{dt} = -PN_0 + \Gamma_{10}N_1 \quad (14)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -\Gamma_{10}N_1 + \Gamma_{21}N_2 + \sigma(\nu)(N_2 - N_1)\Phi_\nu \quad (15)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = PN_0 - \Gamma_{21}N_2 - \sigma(\nu)(N_2 - N_1)\Phi_\nu \quad (16)$$

em que P é a taxa de bombeamento, Φ_ν é o fluxo de fótons na cavidade, Γ_{21} e Γ_{10} são as taxas para os processos de decaimento espontâneo dos níveis 2 para o 1 e do 1 para o 0, respectivamente, e além disso as equações acima implicam na lei de conservação $N_0 + N_1 + N_2 = N_T = \text{constante}$.

Se a taxa de emissão espontânea for muito pequena quando comparada às taxas de bombeamento e emissão estimulada, então as equações acima fornecem as equações da população no estado estacionário, de cada nível, conforme:

$$\bar{N}_0 = \frac{\Gamma_{10}\Gamma_{21}}{\Gamma_{10}\Gamma_{21} + \Gamma_{10}P + \Gamma_{21}P}N_T \quad (17)$$

$$\bar{N}_1 = \frac{\Gamma_{21}P}{\Gamma_{10}\Gamma_{21} + \Gamma_{10}P + \Gamma_{21}P}N_T \quad (18)$$

$$\bar{N}_2 = \frac{\Gamma_{10}P}{\Gamma_{10}\Gamma_{21} + \Gamma_{10}P + \Gamma_{21}P}N_T \quad (19)$$

Portanto, a equação da inversão de população entre os níveis laser, no estado estacionário, é dada por:

$$\bar{N}_2 - \bar{N}_1 = \frac{P(\Gamma_{10} - \Gamma_{21})N_T}{\Gamma_{10}\Gamma_{21} + \Gamma_{10}P + \Gamma_{21}P} \quad (20)$$

Desta maneira, para um sistema de quatro níveis em que haja bombeamento, sempre haverá uma inversão de população, desde que $\Gamma_{10} > \Gamma_{21}$.

2.2 Interação não ressonante da radiação eletromagnética com a matéria

Quando a radiação eletromagnética de alta intensidade interage com a matéria, são observados efeitos lineares e não lineares, em respeito ao campo elétrico, conforme equação 21:

$$P(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E(t) + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) + \dots \quad (21)$$

em que $P(t)$ é a polarização induzida que varia no tempo, $E(t)$ é o campo elétrico, χ é o tensor de susceptibilidade elétrica (de primeira ordem, segunda, terceira, etc) e ϵ_0 é a permissividade elétrica. A interação linear irá gerar radiação de mesma frequência que a radiação incidente, ao passo que os processos não lineares podem dar origem a frequências maiores ou menores que a incidente, fenômeno chamado de conversão de frequência. O espalhamento Raman estimulado (SRS) é um tipo de interação não linear dependente de E^3 , e processos como geração de segundo harmônico (SHG), geração de soma de frequência (SFG) ou geração da diferença de frequência (DFG) são proporcionais a E^2 .

2.2.1 Espalhamento Raman

O efeito mais proeminente da interação da radiação com a matéria é a formação de dipolos elétricos. A perturbação periódica com a frequência ν_0 (do campo elétrico da onda incidente) dos elétrons constituintes das molécula resulta em uma separação destes elétrons - chamada dipolo elétrico induzido - que oscila e por sua vez é uma fonte de radiação eletromagnética, radiação esta que pode consistir na luz espalhada.

A maior parte da luz espalhada tem a mesma frequência ν_0 da luz incidente, e esse processo é referido como espalhamento elástico. Porém, a luz pode ser espalhada com diferentes frequências, e esse processo é referido como espalhamento inelástico, como por exemplo o espalhamento Raman.

A baixas intensidades do campo eletromagnético incidente, podemos desconsiderar os efeitos não lineares, de maneira que o dipolo elétrico induzido tem amplitude p dada por [18]:

$$p = \alpha \bar{E} \quad (22)$$

em que α é o tensor de polarizabilidade atômica e $\vec{E}$ é a amplitude do campo elétrico da onda incidente. O momento de dipolo elétrico p e a polarização P se relacionam conforme a expressão 23:

$$P = Np \quad (23)$$

em que N é o número de dipolos por unidade de volume do material, e substituindo a equação 22 em 23, e comparando com a expressão 21, é obtida a relação entre α e $\epsilon_0\chi^{(1)}$, que é:

$$\alpha = \frac{\epsilon_0\chi^{(1)}}{N} \quad (24)$$

O campo elétrico da onda incidente pode ser escrito como:

$$\vec{E} = E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \quad (25)$$

e as equações 22 e 25 fornecem o momento de dipolo elétrico induzido dependente do tempo, conforme:

$$p = \alpha E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \quad (26)$$

A probabilidade da onda incidente perturbar um elétron da estrutura da molécula depende da localização relativa dos átomos individuais, e segue que a polarizabilidade é uma função desta posição, além de ser uma propriedade do material que depende de sua estrutura molecular e dos tipos de ligação entre os átomos. Para escrever a posição relativa dos átomos, há de se considerar que eles estão confinados a modos vibracionais específicos, nos quais os níveis de energia vibracionais são quantizados. A energia vibracional será:

$$E_{vib} = (j + 1/2) h\nu_{vib} \quad (27)$$

em que j é o número quântico vibracional ($j=0,1,2,\dots$) e ν_{vib} é a frequência do modo vibracional. O deslocamento dQ dos átomos em relação a sua posição de equilíbrio devido a um determinado modo vibracional é expresso como:

$$dQ = Q_0 \cos(2\pi\nu_{vib} t) \quad (28)$$

em que Q_0 é o máximo deslocamento em relação a posição de equilíbrio. Para uma molécula diatômica típica, o deslocamento máximo é cerca de 10% do comprimento da ligação entre os átomos, e para deslocamentos assim pequenos, pode-se aproximar a polarizabilidade por uma expansão em série de Taylor, conforme:

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{\partial \alpha}{\partial Q} dQ \quad (29)$$

em que α_0 é a polarizabilidade da molécula na posição de equilíbrio. É possível reescrever o momento de dipolo elétrico da equação 26 utilizando a equação 29, como segue:

$$p = \alpha_0 E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) + \frac{\partial\alpha}{\partial Q} Q_0 E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \cos(2\pi\nu_{vib} t) \quad (30)$$

Usando uma identidade trigonométrica, podemos finalmente escrever a expressão para o momento de dipolo elétrico induzido:

$$p = \alpha_0 E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) + \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q} \frac{Q_0 E_0}{2} \right) \{ \cos[2\pi(\nu_0 - \nu_{vib})t] + \cos[2\pi(\nu_0 + \nu_{vib})t] \} \quad (31)$$

A equação 31 revela que momentos de dipolo induzidos emergem com três frequências distintas: ν_0 , $(\nu_0 - \nu_{vib})$ e $(\nu_0 + \nu_{vib})$ o que resulta em radiação espalhada com essas três mesmas possíveis frequências. A primeira corresponde à mesma frequência incidente, portanto se trata de espalhamento elástico (como espalhamento Rayleigh ou Mie), ao passo em que as outras duas são processos inelásticos que fornecem respectivamente radiação de energia menor e de energia maior. Trata-se do espalhamento Raman, em que a frequência de menor valor é referida como Stokes, e a de maior valor como anti-Stokes.

Pela Equação 31, nota-se que a condição necessária para que haja espalhamento Raman é que o termo $\frac{\partial\alpha}{\partial Q}$ não seja nulo - ou seja, os deslocamentos vibracionais dos átomos devem acarretar uma mudança na polarizabilidade para um deslocamento dQ em torno do ponto de equilíbrio Q_0 .

Sir Chandrasekhara Venkata Raman foi um cientista indiano que em 1928 descreveu pela primeira vez este tipo de espalhamento inelástico, pelo qual a ele foi conferido o Prêmio Nobel em 1930. Pode-se descrever o espalhamento Raman em termos dos estados de energia vibracionais discretos da molécula, em que os níveis de energia são as soluções da Equação de Schroedinger para o potencial harmônico $V(x) = \frac{1}{2} kx^2$, em que $x=0$ é a posição de equilíbrio. Segue na figura 3 o poço de energia vibracional, em que cada estado (ou nível energético) corresponde a um número quântico vibracional j . Dois estados adjacentes quaisquer diferem em energia $\Delta E_{vib} = h\nu_{vib}$ e cada estado j tem a energia vibracional dada por $E_j = \hbar\omega(j + \frac{1}{2})$.

Cada nível de energia terá uma certa população, cuja densidade é dada pela função de distribuição de Boltzman, de maneira que o estado vibracional fundamental ($j=0$) será favorecido a baixas temperaturas. A figura 3 mostra os diferentes níveis de energia vibracionais de uma molécula diatômica, sendo que moléculas em estados superiores de energia vibracional continuam com frequência ν_0 , a mudança é a probabilidade de se encontrar os átomos deslocados dQ em relação a posição de equilíbrio, e as curvas na figura 3 indicam essa densidade de probabilidade. O espalhamento Raman pode ser interpretado como uma mudança no estado quântico de energia vibracional da molécula devido à interação com um fóton incidente. A onda eletromagnética incidente induz um momento de dipolo elétrico na molécula, que irá para um estado de energia virtual (de valor muito maior que o quantum vibracional) e durante essa interação parte da energia da onda incidente - igual à energia de algum estado vibracional - pode ser

Figura 3: Esquematização dos níveis de energia vibracionais discretos de uma molécula.

transmitida para a molécula, de maneira que a onda reemitida pela molécula será a radiação Raman.

Os fótons espalhados que apresentam energia menor que a energia dos fótons incidentes constituem o campo eletromagnético Stokes, e aqueles de energia maior representam o chamado campo anti-Stokes. A radiação espalhada pelo cristal Raman está representada na figura 4 e as frequências dos campos incidente, Stokes e anti-Stokes na figura 5. O espalhamento Raman pode ser um efeito em cascata, ou seja, considerando-se o campo Stokes como exemplo, os fótons espalhados terão sua frequência diminuída em ω_v , constituindo o 1º Stokes, ou em $2.\omega_v$, constituindo o 2º Stokes, ou em $3.\omega_v$, constituindo o 3º Stokes, e assim por diante.

Figura 4: Radiação eletromagnética que sofre espalhamento Raman.

Figura 5: Esquematização da relação entre as frequências da radiação incidente ω_i , radiação Stokes ω_s e radiação anti-Stokes ω_a .

2.2.2 SRS - Lasers Raman

Lasers Raman são dispositivos baseados no Espalhamento Raman Estimulado (SRS), em que os fótons constituintes do campo eletromagnético fundamental (ou seja, é o campo eletromagnético relativo ao laser fundamental, que sofrerá o espalhamento Raman) têm sua energia modificada por espalhamento inelástico pelos constituintes do meio ativo Raman, de maneira que os fótons resultantes têm sua energia reduzida ou aumentada em uma quantidade equivalente ao quantum de energia depositado no processo, e a oscilação conjunta dos dois campos, o fundamental e o Stokes, torna o espalhamento um processo estimulado.

A intensidade do campo Stokes apresenta um crescimento na direção de propagação z dentro do cristal, e no regime estacionário, é descrito pela expressão [1]:

$$I_s(z) = I_s(0) \cdot \exp(g_R I_p z) \quad (32)$$

em que I_p é a intensidade do bombeamento, que é considerada constante nessa expressão, z é o comprimento do cristal, e g_R é o coeficiente de ganho Raman no regime estacionário, que é dado por:

$$g_R = \frac{8\pi c^2 N}{\hbar \mu_s^2 \omega_s^3 \Gamma} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} \right) \quad (33)$$

em que $\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}$ é a secção de choque diferencial do espalhamento Raman, dada por:

$$\left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} \right) = \frac{\omega_s^4 \mu_s}{c^4 \mu_p} \cdot \frac{\hbar}{2m\omega_R} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)^2 \quad (34)$$

em que ω_s é a frequência do 1º Stokes, ω_R é a frequência correspondente ao quantum de energia vibracional, N é a densidade de moléculas Raman ativas, μ_s e μ_p são os índices de refração que o cristal apresenta para a radiação Stokes e para a radiação do laser fundamental, respectivamente, m é a massa reduzida do oscilador (molécula), Γ é a largura de banda da transição Raman, que é inversamente proporcional ao tempo da transição fônon ($\Gamma = T_R^{-1}$). O SRS se relaciona à parte imaginária do tensor $\chi^{(3)}$, que é proporcional ao quadrado da derivativa do tensor de polarizabilidade molecular $\frac{\partial \alpha}{\partial q}$ [19]. Os valores da secção de choque integral de espalhamento Raman e da polarização da radiação do campo Stokes dependem da orientação do cristal - portanto do modo vibracional de interesse - com relação à polarização da radiação incidente. Aproximações na teoria prevêm a geração de radiação Stokes de polarização ortogonal à do bombeamento, entretanto isso não se mostra sempre válido, na realidade, na maior parte dos casos, o espalhamento Stokes que prevalece (portanto de maior ganho) é o que apresenta polarização do campo Stokes paralela à polarização do bombeamento.

Os ressonadores para geração de lasers Raman podem apresentar 3 diferentes configurações, chamadas de GERADOR RAMAN, LASER RAMAN COM CAVIDADE EXTERNA e LASER RAMAN INTRACAVIDADE, além do caso particular em que o mesmo cristal funciona como meio ativo laser e como meio

ativo Raman, chamado LASER SELF-RAMAN, conforme figura 6.

Figura 6: Diferentes arquiteturas de lasers Raman.

O GERADOR RAMAN (figura 6 (a)) envolve a conversão do laser pulsado de alta potência pico, com duração usual de 10-100 ps, e cada pico passa apenas uma vez pelo cristal. Para atingir o limiar para SRS, o feixe de bombeamento é focalizado no cristal Raman para atingir intensidades de $\sim 1\text{GW}/\text{cm}^2$ - e essa alta densidade de energia pode causar problemas como danos no cristal ou o aparecimento de outros fenômenos não lineares, especialmente *self-focusing*, que compete com o SRS.

Os LASERS RAMAN COM CAVIDADE EXTERNA (figura 6 (b)) apresentam um ressonador ao redor do cristal Raman, que é bombeado externamente por uma fonte laser e apresentam o espelho de entrada com

alta refletividade para os comprimentos de onda Stokes, e o espelho de saída pode apresentar diferentes transmissões para esses comprimentos de onda, dependendo das características do laser. Para lasers pulsados de alta potência pico na faixa de nanossegundos e taxas de repetição em torno de 10 Hz, a transmissão pode chegar a 50%, enquanto para taxas de repetição maiores, em torno de 10 kHz a transmissão deve ser em torno de 10%, e para lasers cw não deve ser maior que 1%. Para que o feixe passe novamente pelo cristal, em geral o espelho de saída apresenta *coating* de alta reflexão para o comprimento de onda do bombeamento. Pelo fato do SRS poder ser um efeito em cascata, os espelhos do ressonador podem apresentar *coatings* para ressonar o 1º Stokes e transmitir o 2º Stokes, ou ressonar o 1º e 2º Stokes e transmitir o 3º Stokes [20, 21].

Na configuração do LASER RAMAN INTRACAVIDADE, (figura 6 (c)) o cristal Raman é colocado dentro da cavidade laser. O meio ativo laser é bombeado por uma fonte externa, e o laser resultante é chamado laser fundamental, que por sua vez serve de bombeamento para o meio ativo Raman. A cavidade deve apresentar alto Q para o fundamental, e o espelho de saída deve apresentar transmissão para o comprimento de onda Stokes desejado. Também nessa configuração os *coatings* dos espelhos podem ser tais que o feixe transmitido seja o 2º, 3º Stokes ou até ordens superiores. Na representação da figura 6 (c), um dispositivo chaveador intracavidade possibilita a geração de pulsos curtos e de alta energia por pulso no fundamental, permitindo que o limiar da SRS seja atingido. O design desse tipo de ressonador é mais complexo que do laser Raman com cavidade externa, devido aos efeitos térmicos presentes. A carga térmica no cristal laser está invariavelmente presente, e a geração de uma potência média considerável no comprimento de onda Stokes provoca uma carga térmica no cristal Raman - a lente térmica (vide seção 2.5) no cristal laser depende da potência de bombeamento, ao passo que a lente térmica no cristal Raman depende da transmissão dos espelhos e da potência de saída no comprimento de onda Stokes. Para que seja obtida uma boa eficiência de conversão da potência de bombeamento para a potência do laser Raman, é necessário que o tamanho do modo nos dois cristais sejam otimizados. No caso do LASER SELF-RAMAN (figura 6 (d)), o cristal laser fornece ganho Raman, e o SRS acontece no mesmo cristal responsável pela emissão do laser fundamental. Essa configuração apresenta a vantagem de eliminar a necessidade de um cristal Raman separado, diminuindo as perdas intracavidade, mas enquanto simplifica o design do ressonador a carga térmica no cristal mostra-se exacerbada para potências altas do SRS.

O espelho de entrada de um ressonador em que ocorra SRS deve apresentar alta refletividade para os comprimentos de onda Raman e Stokes, e o espelho de saída alta refletividade para o fundamental, e transmissão parcial para o Stokes. Assim, os *coatings* dos espelhos devem apresentar um alto limiar de dano, tipicamente maior que 100 MW/cm^2 para lasers com pulsos de nanossegundos. Os avanços tecnológicos na área de *coatings* de espelhos e cristais foi um dos fatores que possibilitou que a tecnologia de lasers Raman sofresse rápidos avanços.

Para a geração de comprimentos de onda no visível, a partir do laser Raman, são utilizados cristais

não lineares como o LBO (Niobato de Lítio - LiNbO_3), KTP (Fosfato de Potássio titanyl - KTiOPO_4) e outros, que devem apresentar *coating* antirreflexivo para o laser fundamental e para o laser Raman, e em pelo menos uma de suas faces deve apresentar *coating* antirreflexivo também para o comprimento de onda dobrado. O cristal dobrador é adicionado na cavidade, conforme figura (figura 6 (f)) e um espelho intracavidade pode ser utilizado para separar o cristal dobrador dos cristais laser e Raman para redirecionar o feixe visível em direção ao espelho de saída, evitando que ele seja reabsorvido pelos cristais, o que é importante quando os cristais laser e Raman apresentarem um valor não desprezível para o coeficiente de absorção do laser visível em questão (o que é o caso dos lasers de Nd^{+3} dobrados).

2.2.3 Geração harmônica - cristais não lineares

Devido a não linearidades na resposta atômica, e usando como exemplo a geração de soma de frequência, cada átomo ou molécula desenvolve um momento de dipolo elétrico que oscila e contém uma componente de frequência $\omega_1 + \omega_2$. Um átomo isolado irá irradiar nessa mesma frequência, contudo, em um material com uma quantidade N de átomos grande o suficiente, cada dipolo atômico irá oscilar com uma fase determinada pela fase da onda incidente. Se a fase relativa desses dipolos for a mesma, o campo irradiado por cada dipolo será somado construtivamente na direção de propagação, levando à formação de um feixe bem definido e coerente. A condição necessária para tal é conhecida como condição de casamento de fase (*phase matching condition*).

Para se obter o casamento de fase com o uso de um cristal birrefringente, a onda de maior frequência possível, $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, é polarizada na direção que oferece o menor índice de refração, entre os dois valores possíveis [19], e há duas possibilidades para a polarização da onda de frequências menores que ω_3 . Midwinter e Warner definiram em 1965 os tipos I e II para o casamento de fase, em que o tipo I é o caso em que as duas ondas eletromagnéticas têm a mesma polarização, gerando um fóton de polarização ortogonal, e o tipo II quando apresentam polarizações ortogonais. O controle preciso do índice de refração para cada uma das três frequências envolvidas é muito importante para se obter a condição de casamento de fase, e tipicamente há dois métodos possíveis para tal: sintonização pelo ângulo (crítico) e sintonização pela temperatura (não-crítico).

- Casamento de fase crítico

Este método envolve a orientação angular precisa do cristal, com respeito à direção de propagação da radiação incidente. Para o caso de um cristal uniaxial, considerando o plano formado pelo vetor de propagação $\mathbf{k}$ e pelo eixo óptico do cristal, a luz polarizada na direção perpendicular a esse plano apresenta polarização ordinária, e é submetida ao índice de refração n_o , ao passo que luz polarizada paralelamente a este plano apresenta polarização extraordinária, e está submetida a $n_e(\theta)$ que é dependente do ângulo θ entre $\mathbf{k}$ e o eixo óptico do cristal, conforme figura 7. A relação entre os índices de refração e ângulo θ é conforme equação 35:

Figura 7: Definição da polarização ordinária e extraordinária, para um cristal não linear.

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{\sin(\theta)^2}{\bar{n}_e^2} + \frac{\cos(\theta)^2}{n_o^2} \quad (35)$$

em que $\bar{n}_e$ é o valor principal do índice de refração extraordinário. Quando $\theta = 90^\circ$, o valor de $n(\theta)$ é igual ao valor principal $\bar{n}_e$, e quando $\theta = 0$, n apresenta o mesmo valor de n_o . O casamento de fase é obtido ajustando-se o ângulo θ para que seja obtido o valor $n(\theta)$ que torne a diferença de fase entre as ondas igual a zero: $\Delta k = 0$.

A principal desvantagem que o ajuste por ângulo apresenta é o fato de que quando o ângulo θ apresenta um valor entre 0 e 90 graus, o vetor de Poynting $\mathbf{S}$ e o vetor de propagação $\mathbf{k}$ não são paralelos para os raios extraordinários. Como resultado, os raios ordinários e extraordinários com vetores de propagação paralelos divergem rapidamente entre si, à medida que se propagam pelo cristal. Este efeito é conhecido como *walkoff*, e é um limitante para o acoplamento entre as duas ondas e diminui a eficiência de qualquer processo não linear envolvendo estas ondas.

- Casamento de fase não-crítico

Para alguns cristais, notadamente o Niobato de Lítio (LBO), o valor da birrefringência é altamente dependente da temperatura, e como resultado, é uma possibilidade bastante interessante ajustar a temperatura do cristal de maneira a se obter o casamento de fase, mantendo-se o ângulo θ fixo em 90 graus. A dependência do índice de refração em função da temperatura para o LBO foi descrita em 1966 por Hobden e Warner. Para o cristal LBO com acoplamento de fase não-crítico, a dependência da temperatura ideal com o comprimento de onda para a SHG pode ser verificada na figura 8 [22].

Figura 8: Temperatura necessária para o acoplamento de fase para SHG no cristal LBO, em função do comprimento de onda.

2.3 O cristal Nd:YVO₄

2.3.1 Nd:YVO₄ como meio ativo laser

Cristais de vanadato de Ítrio dopados com Neodímio, Nd:YVO₄, possuem propriedades espectroscópicas particularmente interessantes para seu uso como meio ativo em lasers de estado sólido, como uma alta secção de choque de emissão estimulada - que é cinco vezes maior que a do Nd:YAG - e uma alta absorção em torno de 808 nm. Seu potencial como material laser foi primeiro reconhecido em 1966 [23], mas seu uso só foi consolidado com o desenvolvimento da tecnologia de crescimento de cristais, de maneira que a viabilização de cristais sem centros espalhadores e sem defeitos cristalinos mostrou-se crucial para que um material de alta qualidade óptica se tornasse disponível para uso como meio ativo em cavidades laser. Considera-se a polarização π quando o vetor campo elétrico é paralelo ao eixo óptico do cristal (eixo c), e a polarização σ quando é perpendicular à π e à direção de propagação da radiação. O YVO₄ é naturalmente birrefringente e o feixe laser é, normalmente, polarizado linearmente na direção π , dado que a secção de choque de emissão nessa direção é maior que em σ . A absorção pelo cristal também é dependente da polarização, e os maiores coeficientes de absorção se dão na direção π . A tabela 1 [24] lista os principais parâmetros desse cristal.

A baixa condutividade termica do Nd:YVO₄ (em torno de 1/3 da condutividade do Nd:YAG) impede uma boa dissipação de calor, de maneira que a ocorrência de fraturas induzidas termicamente pode ser um obstáculo na operação do laser à altas potências.

A grandeza secção de choque de absorção (σ_{abs}) se relaciona com o coeficiente de absorção (α) pela seguinte expressão:

Tabela 1: Alguns parâmetros do cristal $\text{Nd}^{+3}:\text{YVO}_4$ com concentração de Nd de 1 at %.

Comprimento de onda da transição ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2} (\pi)$	1064,3 nm
Largura de banda	0,8 nm
Secção de choque de emissão estimulada (π)	$25 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$
Comprimento de onda com o máximo pico de absorção	808,5 nm
Coeficiente de absorção em 808 nm	34 cm^{-1} (polarização π)
	10 cm^{-1} (polarização σ)
Tempo de vida de fluorescência	$100 \mu\text{s}$
Índices de refração	$n_a=1,958$ (ao longo do eixo a)
	$n_c=2,168$ (ao longo do eixo c)
Coeficientes termo-óptico	$dn_a/dT = 8,5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
	$dn_c/dT = 3,9 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
Condutividade térmica média	$0,05 \text{ W/cm.K}$
Densidade	$4,22 \text{ g/cm}^3$
Razão de Poisson	0,33

$$\sigma_{abs} = \frac{\alpha}{N} \quad (36)$$

em que N é número de densidade atômica, que por sua vez é calculado por:

$$N = \frac{n_{ions} \cdot \rho_{YVO_4} \cdot \gamma}{M_{YVO_4} \cdot m_p} \quad (37)$$

em que γ é a porcentagem atômica, ρ_{YVO_4} é a densidade do material expressa em $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$, M_{YVO_4} é o peso molecular relativo do material que multiplica a massa do próton m_p , expressa em g. Por fim, n_{ions} é o número de íons de ítrio Y^{+3} que serão substituídos pelo dopante, por molécula, por exemplo no caso do YVO_4 , n_{ions} é 1 pois há 1 íon Y^{+3} na molécula, ao passo que o YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) possui 3 íons Y^{+3} que podem ser substituídos pelo dopante.

Os íons Nd^{+3} no YVO_4 possuem uma alta secção de choque de absorção em uma região em torno de 809 nm, com um valor pico de aproximadamente $2,7 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ para um cristal com dopagem de 1% at. de Nd ($1,26 \cdot 10^{20}$ íons de Nd/ cm^3) que corresponde a um coeficiente de absorção de cerca de 34 cm^{-1} . Comparando com o Nd:YAG, esse valor é cerca de 7 vezes maior. A intensa absorção do bombeamento por um diodo laser que emite em torno de 809 nm permite o uso de cristais curtos que ainda assim absorvem a maior parte da radiação incidente. Como a divergência do feixe de bombeamento é tipicamente muito maior que a do modo ressonante, um cristal capaz de absorver a radiação do bombeamento em um comprimento pequeno pode se sobrepor mais efetivamente ao modo ressonante dentro do comprimento Rayleigh. Apesar de, por um lado, ser desejável uma alta absorção e pequena região ativa, do ponto de vista de casamento de modos, por outro lado, essas condições não favorecem uma dissipação adequada do calor, o que é necessário para operação à altas potências. Um volume bombeado pequeno aumenta o

gradiente térmico e o estresse mecânico, e foi demonstrado que a potência de bombeamento no limite de fratura do Nd:YVO₄ é inversamente proporcional a concentração de dopante. Como tentativa de reduzir o aumento de temperatura no Nd:YVO₄ há diversos relatos na literatura de sistemas que foram bombeados em 880 nm diretamente no nível laser superior, conforme figura 9.

Figura 9: Níveis de energia do cristal Nd³⁺:YVO₄.

O bombeamento em 880 nm reduz o aquecimento pelo defeito quântico devido a uma menor diferença entre o comprimento de onda do bombeamento e da emissão laser, aumentando a eficiência de defeito quântico (fator Stokes η_s) de 0,76 para 0,83 [25], sendo que o defeito quântico é definido como a razão entre as energias do fóton de bombeamento e do fóton do laser: $\eta_{QD} = \frac{h \cdot \nu_{laser}}{h \cdot \nu_{pump}}$.

2.3.2 YVO₄ como meio ativo Raman

Os cristais que preenchem os requisitos necessários para apresentarem alta polarizabilidade são os que apresentam ligações covalentes [1] - como iodatos, nitratos, vanadatos, tungstatos e molibdatos. Os vanadatos GdVO₄ e YVO₄ (GV, YV) são há muito tempo utilizados como meio ativo laser, mas até recentemente foram ignorados como meio ativo Raman, e só em 2001 o potencial de tais cristais como meio ativo Raman foi observado por Kaminskii et al. [26], que apresentou excelentes propriedades ópticas para SRS no regime estacionário. Segue na tabela da figura 10 algumas propriedades de alguns dos cristais Raman mais conhecidos [1].

Crystal (abbrev)	Raman shift cm ⁻¹	Raman linewidth cm ⁻¹	Integrated cross-sec (arb units*)	Raman gain g_L @1064nm cm/GW	Raman gain g_L @532nm cm/GW	Damage threshold GW/cm ²
LiIO ₃ (LI)	822	5.0	54	4.8		~ 0.1
PbMO ₄ (PM)	870	8	~50	~8		~ 0.4
Sr MO ₄ (PM)	888	2.8	55	~6		
Ba(NO ₃) ₂ (BN)	1047	0.4	21	11	47	~ 0.4
BaWO ₄ (BW)	926	1.6	52	8.5	40	
CaWO ₄ (CW)	908	4.8	52	3.0		~ 0.5
KGd(WO ₄) ₂ (KGW)	768 901	6.4 5.4	59 54	4.4 3.5	11.8	~ 10
KY(WO ₄) ₂ (KYW)	767 905	8.4 7	65 50	3.6 5.1	21	
PbWO ₄ (PW)	904	4.7		3.1		~1
SrWO ₄ (SW)	922	2.7	50	5.0		~ 5
GdVO ₄ (GV)	885	3.0	92	>4.5		~ 1
YVO ₄ (YV)	892	2.6	92	>4.5		~ 1

* Units for integrated Raman scattering cross section are normalized to 100 by comparison to diamond.

Figura 10: Propriedades de alguns dos cristais Raman mais utilizados.

Considerando-se o esquema de quatro níveis do cristal *a-cut* (cortado de maneira que o laser se propaga ao longo do eixo a) Nd:YVO₄ a transição laser se dá em 1064 nm, e com o Stokes shift de 892 cm⁻¹ o 1º Stokes emite em 1176 nm. O cristal YVO₄ também apresenta um modo vibracional com energia de 814 cm⁻¹, entretanto foi escolhido acessar o Stokes Shift de 892 cm⁻¹ pois é o que apresenta maior valor de espalhamento [26].

2.4 Diodo laser como fonte de bombeamento

A maneira energeticamente mais eficiente de se bombear lasers de estado sólido é utilizando um diodo laser. Comparando o uso de diodo laser como fonte de bombeamento com o uso de lâmpadas, o diodo laser apresenta uma largura de banda de emissão mais estreita, e apesar da eficiência radiativa das lâmpadas ser comparável com a dos diodos (40-60%) [24] apenas uma pequena fração dessa radiação é absorvida pelo meio ativo. O diodo laser varia seu comprimento de onda de emissão fortemenete como função da temperatura, aproximadamente 0,25 nm/°C, bem como apresenta um aumento da largura de banda como

função da corrente aplicada [27], de maneira que este pode ser sintonizado para emitir no comprimento de onda em que o cristal tem seu pico de absorção. Quanto melhor for a sobreposição espectral entre a emissão do diodo laser e a absorção pelo meio ativo, maior será a eficiência óptica-óptica e menor será a quantidade de calor depositado no cristal, o que reduz efeitos termo-ópticos e contribui para uma melhor qualidade do feixe. Além disso, a direcionalidade da radiação emitida pelo diodo laser permite a obtenção de uma boa sobreposição espacial entre a radiação de bombeamento e os modos de pequena ordem no ressonador. Adicionalmente à direcionalidade da emissão, o tamanho pequeno da área emissora do diodo laser possibilitam uma enorme variedade de configuração das cavidades laser, bem como de configurações do bombeamento.

O bombeamento direto do nível laser superior é uma maneira mais eficiente para o laser de quatro níveis, quando comparado com o bombeamento em 808 nm, pois elimina parte da perda por defeito quântico[28]. Quando o sistema é bombeado com o tradicional 808 nm, o átomo é excitado do nível fundamental $^4I_{9/2}$ para o nível $^4F_{5/2}$ e por uma transição não radiativa decai para o nível laser superior $^4F_{3/2}$ de onde decai radiativamente para o subnível Stark de menor energia do nível laser inferior $^4I_{11/2}$, conforme pode ser observado na figura 9. Bombeando o sistema em 880 nm o átomo é excitado diretamente para o nível $^4F_{3/2}$, reduzindo a diferença de energia entre o fóton de bombeamento e o fóton do laser e uma redução de calor de ~25% foi demonstrada [29].

2.5 Lente térmica

No laser self-Raman Nd:YVO₄ bombeado em 880 nm e emitindo em 1176 nm, a deposição de calor no cristal ocorre por dois processos - o decaimento não radiativo do elétron quando decai do nível laser inferior ($^4I_{11/2}$) para o nível fundamental ($^4I_{9/2}$) e quando o fóton é espalhado inelasticamente, depositando no cristal a energia equivalente ao quantum de energia vibracional de 890 cm⁻¹. O calor gerado pelo bombeamento é depositado na região do cristal que absorve o bombeamento, ao passo que o calor proveniente do espalhamento Raman é distribuído pelo volume do cristal percorrido pelo feixe Raman. O calor é conduzido para fora dessas regiões, criando um gradiente de temperatura que origina um perfil de índice de refração, que age como uma lente, chamada lente térmica, que pode causar uma diminuição da potência de saída do laser e da qualidade do feixe.

O bombeamento em 880 nm excita os fótons do estado fundamental diretamente para o nível laser superior. Caso o bombeamento fosse feito em 808 nm, que é o comprimento de onda de bombeamento mais tradicional e em que o cristal apresenta maior coeficiente de absorção, haveria ainda uma terceira deposição de calor no cristal, correspondente ao decaimento não radiativo do fóton do nível de bombeamento ($^4F_{5/2}$) para o nível laser superior ($^4F_{3/2}$).

Foi feita uma estimativa da contribuição de cada um dos dois processos para a deposição de calor no cristal. O calor gerado pelo espalhamento Raman no estado estacionário pode ser calculado pela seguinte

expressão:

$$P_{LR} = \frac{(h\nu_f - h\nu_s) \cdot P_{Stokes-out} \cdot (T + L)}{T \cdot h\nu_s} \quad (38)$$

no qual h é a constante de Planck, ν_f e ν_s são as frequências da radiação fundamental e Stokes, $P_{Stokes-out}$ é a potência de saída no 1^o Stokes, T é a transmissão dos espelhos e L são as perdas intracavidade (pelos *coatings* e espalhamento nos cristais).

Utilizando a relação $c = \lambda \nu$, pode-se modificar a expressão 38, colocando os termos em função do comprimento de onda:

$$P_{LR} = \frac{\left(\frac{hc}{\lambda_f} - \frac{hc}{\lambda_s}\right) \cdot P_{Stokes-out} \cdot (T + L)}{T \cdot \frac{hc}{\lambda_s}} \quad (39)$$

simplificando os termos, e substituindo os comprimentos de onda obtém-se, finalmente:

$$P_{LR} = \frac{\left(\frac{1}{1064} - \frac{1}{1176}\right) \cdot P_{Stokes-out} \cdot (T + L)}{T \cdot \frac{1}{1176}} \quad (40)$$

O calor gerado pelo bombeamento, considerando-se o caso em que essa quantidade é mínima - ou seja, que os elétrons do nível laser superior decaiam somente através da emissão de um fóton em 1064 nm - corresponde ao decaimento não radiativo do nível laser inferior para o nível fundamental. Assim, essa quantidade pode ser calculada pela expressão:

$$P_{LP} = \frac{h\nu_{qd}}{h\nu_p} \cdot P_p \quad (41)$$

em que ν_p é a frequência de bombeamento, ν_{qd} é a frequência correspondente ao defeito quântico entre os níveis $^4I_{11/2}$ e $^4I_{9/2}$ e P_p é a potência de bombeamento.

Para obter o valor de ν_{qd} pode-se usar que a diferença de energias entre um fóton de bombeamento e um fóton emitido corresponde à energia de defeito quântico:

$$E_{qd} = E_{880} - E_{1064} \rightarrow h\nu_{qd} = \frac{hc}{880 \cdot 10^{-9}} - \frac{hc}{1064 \cdot 10^{-9}} \rightarrow \nu_{qd} = \frac{c}{10^{-9}} \cdot \left(\frac{1}{880} - \frac{1}{1064}\right)$$

Substituindo essa expressão na equação 41 e cancelando os termos adequados, tem-se:

$$P_{LP} = \frac{\left(\frac{1}{880} - \frac{1}{1064}\right)}{\frac{1}{880}} \cdot P_p \quad (42)$$

Com a configuração de ângulo rasante utilizada neste trabalho, a distribuição de temperatura no cristal na direção y (vertical) apresenta um comportamento parabólico [13], correspondendo a uma lente cilíndrica. A região próxima ao vértice desta parábola pode ser considerada esférica, e quando o modo do feixe laser é pequeno o suficiente para ser contido nesta região em torno do vértice, a deformação que ele sofre devido à essa “lente esférica” pode ser facilmente contrabalanceada pelo realinhamento da

cavidade laser; no entanto, quando o tamanho do modo é maior e ocupa a região da lente térmica que é parabólica e não mais esférica, as distorções causadas no feixe são mais complexas, e já não podem ser anuladas pelo simples reajuste da cavidade, e isso causa uma queda na potência de saída do laser.

Quando outros processos de conversão não lineares (além do SRS) são explorados - como neste trabalho a geração de segundo harmônico (*second harmonic generation* SHG) ou geração de soma de frequência (*sum frequency generation* SFG), o cristal não linear emite radiação que se propaga na direção do feixe laser nos dois sentidos, e a parte cujo sentido vai de encontro ao cristal laser pode ser reabsorvida por ele, caso seu *coating* o permita ou caso não haja um espelho intracavidade que o impeça.

2.6 Modos no ressonador

Em um ressonador estável, a oscilação laser pode ser associada a dois tipos de modos - os modos longitudinais e os modos transversais. Os modos longitudinais diferem entre si pela frequência de oscilação e pela distribuição espacial do campo eletromagnético na direção de propagação, já os modos transversais diferem pela frequência e pela distribuição espacial do campo eletromagnético na direção perpendicular à de propagação.

Embora os modos no ressonador sejam compostos pela distribuição do campo nas direções axial e transversal, convém considerar essas duas componentes separadamente, pois são responsáveis por diferentes aspectos da performance do laser. Os modos longitudinais são responsáveis pelas características espectrais do laser, como largura de banda e coerência, ao passo que os modos transversais determinam parâmetros como divergência, diâmetro e distribuição de energia no feixe.

A distribuição do campo elétrico na direção transversal pode ser escrita, em coordenadas cartesianas, como o produto de dois polinômios de Hermite de ordens n e m - sendo n e m números inteiros positivos correspondendo aos nós de intensidade nas direções vertical e horizontal, respectivamente - e duas funções gaussianas. Em coordenadas cilíndricas, os modos são designados TEM_{pl} em que p e l são as ordens dos polinômios de Laguerre e correspondem aos nós de intensidade nas direções radial e angular, respectivamente. O modo de menor ordem é chamado modo fundamental TEM_{00} e é reconhecido por fornecer um perfil ideal para aplicações analíticas e para vários propósitos práticos [30]. A observação de um perfil gaussiano da intensidade do feixe laser não necessariamente implica em um feixe de alta qualidade, a maneira adequada para se medir a qualidade é através do M^2 , que é um parâmetro adimensional que caracteriza o quão imperfeito é um feixe real quando comparado a um feixe perfeitamente gaussiano com modo TEM_{00} cujo valor do M^2 é 1. O fator M^2 pode ser definido como a taxa de divergência do feixe real em relação ao feixe teórico (feixe limitado por difração) com a mesma cintura.

O perfil de um feixe gaussiano $w(z)$ fornece o fator de escala transversal característico de qualquer modo que se propaga no espaço livre e que seja descrito pelos polinômios de Hermite-Gauss ou Laguerre-Gauss, e pode ser escrito da forma:

$$w^2(z) = w_0^2 + \left(\frac{\lambda}{\pi \cdot w_0} \right)^2 (z - z_0)^2 = w_0^2 \cdot \left[1 + \left(\frac{z - z_0}{z_R} \right)^2 \right] \quad (43)$$

em que $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ é a distancia de Rayleigh para os modos de Hermite-Gauss e w_0 é a cintura do feixe na localização z_0 . Assim, a propagação de um feixe gaussiano no espaço livre é completamente caracterizada pelo *spot-size* na distância z , e pela abertura angular no campo distante dada por $\frac{\lambda}{\pi w_0}$.

Assim, para feixes reais, necessita-se do M^2 , que é definido como:

$$M^2 = \frac{\Theta}{\theta} \quad (44)$$

em que Θ é o ângulo sólido do feixe real medido no campo distante ($z \gg z_R$), e θ é o ângulo sólido do feixe teórico gaussiano TEM_{00} que tenha a mesma cintura que o feixe real, conforme figura 11.

Figura 11: Esquematização da divergência de um feixe gaussiano teórico, e da divergência de um feixe real, a partir das quais se obtém o fator de qualidade M^2 .

O ângulo sólido do feixe gaussiano é escrito como $\theta = \frac{2\lambda}{\pi W_0}$ sendo W_0 o raio do feixe real, então podemos reescrever M^2 conforme:

$$M^2 = \left(\frac{\pi}{4 \cdot \lambda} \right) \Theta \cdot 2 \cdot W_0 \quad (45)$$

A distância de Rayleigh para feixes reais é escrita como:

$$z_R = \frac{2 \cdot W_0}{\Theta} = \frac{\pi \cdot W_0^2}{M^2 \cdot \lambda} \quad (46)$$

Assim, a equação 43 reescrita para feixes reais será:

$$W(z) = W_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (47)$$

Rearranjando os termos das equações 45, 46 e 47 é possível escrever M^2 em termos do *spot-size* na posição z e da cintura do feixe, conforme:

$$M^2 = \frac{\pi \cdot W_0^2}{\lambda \cdot z} \sqrt{\left(\frac{W(z)}{W_0}\right)^2 - 1} \quad (48)$$

As equações acima supõem um feixe simétrico em x e y , entretanto, se o feixe for assimétrico ou astigmático ou ainda se apresentar uma divergência assimétrica ($\Theta_x \neq \Theta_y$) então terá um valor para o M^2 em x e outro valor para o M^2 em y .

Capítulo 3

Histórico dos lasers Raman de Nd

Neste breve histórico, são mencionados alguns lasers Raman bombeados por diodo e baseados na transição de quatro níveis do Nd, descritos na literatura ao longo das últimas décadas. Os exemplos aqui citados envolvem lasers Raman intracavidade - podendo ser self-Raman, ou lasers com os cristais separados. Desta forma, o comprimento de onda do 1º Stokes é em torno de 1170 nm, mas varia de acordo com os subníveis Stark de energia do Nd na matriz cristalina, e de acordo também com o Stokes *shift* do meio ativo Raman. É dada ênfase nos trabalhos encontrados desenvolvidos a partir do cristal Nd:YVO₄, por se tratar do cristal utilizado para o desenvolvimento deste trabalho.

Esta pequena revisão bibliográfica foi dividida em lasers com configuração longitudinal de bombeamento, englobando lasers pulsados e lasers no regime cw; e com configuração transversal, também divididos em operação cw e pulsada.

Também é feita uma breve revisão da literatura relacionada aos lasers emitindo no visível, na região de 588 nm, que são baseados no laser Raman em 1176 nm, em operação cw.

É importante esclarecer que as eficiências mencionadas nessa seção se referem à eficiência de conversão óptica-óptica: da radiação incidente do diodo para a radiação de saída do laser considerado (Raman ou visível).

3.1 Lasers com emissão no 1º Stokes

3.1.1 Configuração de bombeamento longitudinal

3.1.1.1 Pulsados

Até 2004, todos os lasers Raman de estado sólido eram pulsados. O primeiro resultado de um laser self-Raman Nd:YVO₄ Q-switched emitindo em 1176 nm foi obtido em 2004, com máxima potência pico de saída de 1,5 W, correspondendo a uma eficiência de conversão de 13,9 % [31]. Em 2010, foram relata-

dos resultados melhores em termos de potência, com um cristal composto Nd:YVO₄/YVO₄, atingindo potência pico máxima de 3,1 W, com uma eficiência óptica de 12,4 % [32].

3.1.1.2 cw

Em 2005, foram relatados os primeiros lasers Raman intracavidade operando em regime cw. Pask et al. [33] reportou a operação cw de um laser Raman Nd:YAG/KGW em 1176 nm, atingindo a potência de 800 mW e uma eficiência de conversão de 4%. No mesmo ano, Demidovich [34] apresentou um laser self-Raman Nd:KGW bombeado por diodo em uma configuração longitudinal com máxima potência de saída de 54 mW em 1180 nm, correspondendo a uma eficiência de conversão de 2,6%. Em 2007, Lisinetskii et al. fez uma pequena modificação [35], substituindo o cristal Nd:KGW por um cristal composto Nd:KGW/KGW, obtendo uma potência máxima de saída de 270 mW, e eficiência de conversão de 14%, que é o valor mais alto reportado na literatura para um laser Raman intracavidade cw.

Em 2007, Burakevich et al. relataram um laser self-Raman Nd:YVO₄ operando em 1176 nm com potência máxima de saída de 50 mW correspondendo a um *slope efficiency* de 5% e qualidade do feixe M² de 1,4 [36]. No mesmo ano, foi reportado [37] um laser self-Raman Nd:GdVO₄ com potência de saída de 2,04 W em 1173 nm, equivalendo a uma eficiência de conversão de 9,27%.

Em 2009, foi atingida uma potência de 3,36 W em 1180 nm, com um laser Raman Nd:YVO₄/BaWO₄, o que correspondeu a 13,2% de eficiência de conversão [38]. Em 2011, foi demonstrado um laser emitindo em 1176 nm, baseado no cristal composto YVO₄/Nd:YVO₄, com o qual foi atingida uma potência de saída de 1,84 W, correspondendo a uma eficiência de conversão de 7,8% [39].

3.1.2 Configuração de bombeamento transversal

A geometria de bombeamento utilizada nos lasers apresentados nessa seção foi o bombeamento transversal tradicional, que difere da geometria utilizada neste trabalho, em que há uma reflexão interna total na face de bombeamento, garantindo uma boa sobreposição entre o bombeamento e o feixe laser - o que não acontece no bombeamento transversal tradicional. É importante notar também que os lasers apresentados nesta seção foram desenvolvidos a partir da utilização de módulos comerciais, que apresentam bombeamento transversal.

3.1.2.1 Pulsados

Configurações transversais de bombeamento também foram exploradas, pois é um método já estabelecido para outros tipos de lasers, que permite um escalonamento da potência de saída e flexibilidade no desenho da cavidade. Um dos melhores resultados obtidos até o presente, em termos de potência, foi o de um laser Nd:YAG/SrWO₄ com chaveamento ativo, com potência média de saída em 1180 nm de 10,5 W, e uma eficiência de conversão de 6,3% [40]. Mildren et al. reportou um laser Raman com cavidade externa,

fazendo uma comparação dos resultados com bombeamento transversal e bombeamento longitudinal. O cristal Raman era um KGW, bombeado em 532 nm e foi transmitido o 2º Stokes em 589 nm. Os resultados indicaram uma performance melhor com configuração longitudinal, com um *slope efficiency* de 53%, em comparação à 46% com bombeamento transversal [41].

3.1.2.2 cw

O único trabalho encontrado na literatura referente a um laser Raman intracavidade em regime cw com configuração transversal de bombeamento data de 2012, por Savitski et. al [42]. Um cristal Nd:YAG foi bombeado transversalmente, e foram utilizados dois meios para o SRS, um cristal de diamante e um cristal KGW. Com o cristal de diamante foram obtidos 5,1 W em 1217 nm, correspondendo a uma eficiência de 3,2%, e com o KGW foram obtidos 6,1 W de potência e eficiência de 4%. Até o presente, este resultado consiste no maior valor de potência obtido para um laser Raman intracavidade operando em regime cw. Apesar de terem sido obtidos valores consideráveis de potência de saída no 1º Stokes, as eficiências obtidas foram baixas, além do fato de terem sido utilizados módulos comerciais.

3.2 Lasers laranja-amarelos

O primeiro laser amarelo-laranja operando em regime cw e baseado em um laser Raman na região de 1176 nm foi reportado em 2007, consistindo em um laser Nd:GdVO₄ com o cristal KGW para o SRS, com o qual foi obtido 704 mW de potência em 588 nm, correspondendo a uma eficiência óptica de conversão de 5,1% [43]. Utilizando o mesmo cristal laser e trocando o cristal Raman por um BaWO₄, foi obtida uma potência de saída de 2,9 W em 590 nm, com 11 % de eficiência de conversão óptica [44]. O mesmo grupo reportou um laser amarelo-laranja, agora baseado no laser self-Raman Nd:YVO₄, com o qual foi obtida uma eficiência de conversão óptica de 8,4% e uma potência máxima de 320 mW [45].

O valor mais alto de potência em regime cw obtido na região de 590 nm com um laser self-Raman foi 4,3 W obtidos com o cristal Nd:GdVO₄, correspondendo à eficiência de conversão óptica de 17% [46]. Outro trabalho próximo a esse recorde foi um laser self-Raman com o cristal Nd:LuVO₄, com o qual foram obtidos 3,5 W, correspondendo a 13,3% de eficiência de conversão óptica [47].

3.3 Aplicações

O laser Raman gerado na cavidade apresenta comprimento de onda de 1176 nm, e o laser fundamental é em 1064 nm. A partir de processos não lineares de conversão de frequência, frequências distintas podem ser obtidas na região do espectro eletromagnético visível que de outra maneira seriam comprimentos de onda de difícil acesso. Uma das possibilidades é o laser em 588 nm - explorado neste trabalho - que cor-

responde à região laranja-amarelo do espectro electromagnético, região esta em que há interesse devido a sua multitude de aplicações, como o uso como estrela guia de sódio (*sodium guide star*), aplicações médicas e biológicas, tecnologia de displays e computação quântica.

Para o tratamento de condições oftalmológicas na retina, o laser laranja-amarelo é a radiação que tem mostrado melhores resultados clínicos com minimização dos efeitos colaterais [48]. Uma das aplicações na oftalmologia que merece destaque é o tratamento de telangiectasias (conhecidos popularmente por “vasinhos”) e que pode se manifestar tanto nos olhos quanto na pele, conforme figura 12 [49, 50], e o tratamento de fotocauterização com o laser em 578 nm se mostrou eficaz [4].

Figura 12: Imagens de telangiectasia na pele e no olho.

Segue na figura 13 o gráfico da janela biológica [51], em que se observa a absorção da radiação pela água, sangue e melanina.

Figura 13: Janela biológica.

Assim, é possível notar que na região do laranja-amarelo a água praticamente não apresenta absorção, ao passo que tanto o sangue quanto a melanina apresentam um valor considerável de absorção nessa região do espectro, o que torna o laser laranja muito interessante para ser usado para fotocauterização, sendo especificamente interessante para fotocauterização no olho, pois praticamente não será absorvido na região do humor vítreo, incidindo na retina onde será absorvido pelo sangue, cauterizando os vasinhos. Para fotocauterização na retina próximo a região da mácula o laser laranja é o laser mais indicado, pois

a mácula apresenta pigmentos que não absorvem na região do laranja amarelo. Esse tipo de fotocauterização é o tratamento para a retinopatia diabética, que é a principal causa de cegueira em indivíduos entre 20 e 64 anos [52].

O laser laranja-amarelo também tem aplicações na microscopia confocal, que é um tipo de microscopia de fluorescência em que a imagem é coletada de um só plano da amostra. Um laser ilumina a amostra, excitando os fluoróforos, que por sua vez emitem a radiação que formará a imagem. Alguns dos fluoróforos utilizados têm seu pico de absorção em 588 nm, como por exemplo a proteína fluorescente HcRed (BD *Living Colors*TM) que é gerada a partir de células de corais presentes na Grande Barreira de Coral Australiana [53].

A citometria de fluxo é uma técnica utilizada tanto em medicina clínica como em pesquisa básica em ciências da vida, permitindo um estudo detalhado de imunologia. Isso é possível a partir do uso de alvos fluorescentes que se ligam aos anticorpos, que são detectados com a excitação destes alvos pela radiação de comprimento de onda correto, e há uma série deles que absorve na região de 588 nm. Avanços nas tecnologias de lasers de estado sólido bombeados por diodo (DPSSL) permitiram a incorporação de lasers de novos comprimentos de onda em citômetros de fluxo, permitindo que os pesquisadores utilizem uma nova variedade de alvos fluorescentes. No entanto, a região compreendida entre 561 nm e 640 nm tem sido mais difícil de preencher, e há, portanto, uma demanda de lasers nesta região e que operem com estabilidade de potência, baixo ruído e feixe com o modo gaussiano [54, 55].

Capítulo 4

Materiais e Métodos

4.1 O Cristal Nd:YVO₄

Foram utilizado dois cristais laser durante o desenvolvimento deste trabalho. Ambos eram cristais Nd:YVO₄ com concentração de Neodímio de 1,1 at.% , e dimensões 22×5×2 mm³, com a orientação do eixo c perpendicular às superfícies maiores. As faces 5×2 mm foram cortadas em um ângulo de 5° para minimizar possíveis modos parasitas indesejados, e estas faces apresentam *coating* antireflexivo para 1064 e 1176 nm. No **cristal 1**, a face de bombeamento possui *coating* antireflexivo para 808 nm e 880 nm, e no **cristal 2** esta face não apresenta *coating*, entretanto, este cristal apresenta uma relação *scratch/dig* reduzida em relação ao cristal 1. A relação *scratch/dig* é a quantidade de riscos e buracos presentes na superfície e que não puderam ser eliminados com o polimento, e para superfícies sem *coating* o fabricante dos cristais tem condições de fornecer um produto com essa superfície com qualidade superior. Como é nessa superfície que a reflexão total interna ocorre, era possível que esse fator tivesse grande influência, bem como a presença do *coating* (cujo índice de refração nos é desconhecido) pudesse influenciar positiva ou negativamente o comportamento do modo e da lente térmica. Os primeiros experimentos foram realizados com o cristal 1, até que ele sofreu um grave dano que o inutilizou, a partir do qual o cristal 2 passou a ser utilizado, e está especificado no trabalho o ponto a partir do qual o cristal 2 passou a ser utilizado. Para que os dados obtidos com ambos cristais pudessem ser comparados, nos experimentos com o cristal 2 foi feita uma correção que considerasse que parte da potência incidente na face de bombeamento do cristal era refletida. Considerando que o índice de refração do cristal YVO₄ em 880 nm é n=1,97, a reflexão pode ser calculada pela expressão:

$$R = \left[\frac{(n-1)}{(n+1)} \right]^2 = \left[\frac{(1,97-1)}{(1,97+1)} \right]^2 = 10,67\% \quad (49)$$

Assim, temos que a potência corrigida incidente no cristal é calculada conforme a equação 50, que foi aplicada todas as vezes em que o cristal 2 foi utilizado.

$$P_{corrigida} = P_{diodo} \cdot 0,89 \quad (50)$$

Para refrigeração do cristal, foi utilizado um suporte de cobre, refrigerado por água circulando por um *chiller*, mantida a 15° C, onde o contato térmico entre o cristal e o suporte é melhorado utilizando-se folhas de índio de 1 mm de espessura nas faces superior e inferior do cristal.

Em um espectrofotômetro (Cary, modelo 5000) foram medidos os espectros de absorção do cristal Nd:YVO₄, com luz polarizada em π e em σ , e os resultados seguem na figura 14. Os valores experimentais encontrados para os maiores coeficientes de absorção deste cristal (em π) foram de 22 cm⁻¹ em 808 nm e 14 cm⁻¹ em 880 nm.

Figura 14: Medida experimental dos coeficientes de absorção do cristal Nd:YVO₄, utilizando luz polarizada em π e σ .

Usando a expressão 37, tem-se para o caso do cristal Nd:YVO₄ com 1,1 at. %:

$$N = \frac{1 \times 4,22 \times 0,011}{(88,9 + 50,9 + 4,16) \times 1,67 \times 10^{-24}} = 1,36 \times 10^{20} \frac{1}{\text{cm}^3} \quad (51)$$

A partir de 36, e usando o valor experimental $\alpha = 22 \text{ cm}^{-1}$ em 808 nm, tem-se:

$$\sigma_{abs}(808 \text{ nm}) = \frac{22 (\text{cm}^{-1})}{1,36 \times 10^{20} (\text{cm}^{-3})} = 1,62 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \quad (52)$$

E utilizando o coeficiente de absorção em 880 nm, experimentalmente $\alpha = 14 \text{ cm}^{-1}$, teremos

$$\sigma_{abs}(880 \text{ nm}) = \frac{14 (\text{cm}^{-1})}{1,36 \times 10^{20} (\text{cm}^{-3})} = 1,0 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \quad (53)$$

4.2 Caracterização do diodo laser

Para o bombeamento em 880 nm, foi utilizada uma barra de diodo da marca Jenoptiks, de potência máxima 70 W e polarização TE, com uma lente cilíndrica nele acoplada. Por definição, a polarização TE se dá quando a direção do campo elétrico é perpendicular ao *fast axis* do diodo (que é a direção em que o diodo apresenta maior divergência, nesse caso, a direção vertical), ou seja, o diodo apresenta polarização TE quando seu vetor campo elétrico está na direção x, ao passo que a polarização TM acontece quando o vetor campo elétrico está na direção y (sempre considerando a propagação no eixo z). Para rotacionar a polarização - e assim acessar os coeficientes de absorção mais altos do cristal, que se dão na polarização π - foi utilizada uma placa de meia onda acromática (Thorlabs). Foi medida a curva de potência de saída (detector de potência Newport 818T-150) do diodo em 880 nm em função da corrente aplicada em regime cw, após atravessar a placa de meia onda e lente cilíndrica para medir a potência entregue no cristal, após as reflexões nos componentes ópticos entre o diodo e o cristal. Com bombeamento q-cw, foram feitas duas curvas de potência em função da corrente (detector Coherent LMP10i), uma para temperatura mínima utilizada de 25° C e a outra para a máxima de 31° C, para analisar se o comportamento da potência do diodo varia significativamente com sua mudança de temperatura, e observa-se que essa variação é desprezível, conforme figura 15, em que foi ajustada uma função linear que fornece a potência de saída do diodo laser (P) em função da corrente aplicada (i).

Figura 15: Potência do diodo (880 nm) em função da corrente, para regime cw e temperatura de 28° C e regime q-cw com temperaturas 25° C e 31° C.

O diodo laser foi montado sobre uma placa de cobre, com uma folha de índio entre eles, e sua temperatura era controlada por um sistema *Peltier*. Foi medido o espectro de emissão deste diodo (Ocean

Optics, modelo HR 2000, com resolução de 0,22 nm), com 19 A de corrente aplicada e temperatura de 33° C, em regime cw, e o espectro normalizado é mostrado na figura 16. Observa-se que o espectro apresenta dois picos, o que não é desejável, e isto também ocorre com correntes mais altas e também em regime q-cw.

Figura 16: Espectro de emissão do diodo, em regime cw.

4.3 Configurações de bombeamento transversal

A configuração de bombeamento transversal com geometria de ângulo rasante foi primeiro demonstrada - com alta eficiência e boa qualidade de feixe - por Damzen et al [14]. Com essa configuração, o feixe intracavidade realiza uma dobra (*single bounce*) na superfície de bombeamento do cristal, permitindo uma boa sobreposição entre o feixe de bombeamento e o feixe intracavidade, de maneira que essa geometria se torna particularmente interessante [56, 57]. Segue na figura 17 uma esquematização de tal configuração.

Adicionando na cavidade um terceiro espelho, chamado espelho de dobra, o feixe laser sofrerá duas reflexões totais internas na face de bombeamento do cristal, conforme figura 17(b), ilustrando o método de *double beam mode controlling* (DBMC). Com essa configuração, os dois feixes laser competem entre si por uma mesma região de ganho, tornando menor o tamanho efetivo do modo de cada feixe, de maneira que juntos eles são capazes de ocupar toda a região de inversão de população no cristal e desta forma impedir a oscilação de modos de ordens superiores.

Para focalizar o feixe de bombeamento no cristal foi utilizada uma lente cilíndrica de 6,4 mm de distância focal, gerando uma linha de cerca de 60 μ m de espessura e 1 cm de largura (que é a largura da barra

Figura 17: Esquematização da geometria de bombeamento transversal em ângulo rasante, com as configurações de uma dobra e duas dobras (DBMC).

de diodo, pois nessa direção o feixe praticamente não sofre divergência, é o *slow axis*). Considerando o valor obtido para o coeficiente de absorção pelo cristal em 880 nm na direção π como 14 cm^{-1} , no primeiro 1 mm do cristal cerca de 75% da radiação incidente do diodo é absorvida. A cavidade com uma dobra apresentava cerca 7 cm de comprimento, possuindo um espelho côncavo M_1 de alta refletividade ($>99,99\%$) para 1064 nm e 1176 nm e raio de curvatura de 15 cm, um espelho de saída (*output coupler*) plano de alta refletividade para 1064 nm ($>99,99\%$) e transmissão de 0,47% para 1176 nm. Para o caso da configuração de duas dobras, o espelho de dobra M_2 era plano e possuía alta refletividade ($>99,99\%$) para 1064 nm e 1176 nm. Foi utilizado um filtro na saída do laser (Thorlabs modelo FEL1150-1V) de maneira que através dele passavam comprimentos de onda superiores a 1150 nm, para que não se detectasse o laser residual em 1064 nm que escapa da cavidade.

Para a SHG do 1º Stokes, o laser laranja-amarelo, foi adicionado à cavidade um cristal LBO (Castech, $\theta = 90^\circ$, $\phi = 0$) com casamento de fase não crítico, conforme representado na figura 18. O cristal apresenta dimensões $4 \times 4 \times 10 \text{ mm}^3$ e *coating* antirreflexivo para 1064 nm, 1176 nm e 588 nm. Este cristal

foi montado sobre um suporte de alumínio que envolvia um resistor que dissipava calor linearmente com a corrente aplicada, mantido à temperatura de 45 °C. O laser em 588 nm foi estudado com a configuração de uma dobra em regime cw, utilizando os espelhos M_1 e M_2 , sendo que o último apresentava transmissão próxima a 100% em 588 nm.

Figura 18: Esquematização da cavidade laser em configuração de ângulo rasante e uma dobra, para a geração do laser em 588 nm.

4.3.1 Regimes de bombeamento q-cw e cw

Inicialmente, optou-se pelo bombeamento q-cw pois ao utilizar um ciclo útil baixo, pode-se desconsiderar o efeito de lente termica no cristal e o alinhamento do laser torna-se mais fácil. A fonte de corrente para o diodo de bombeamento (Analog Modules – Laser Controller) teve sua frequência ajustada em 20 Hz e o tempo de pulso em 150 μ s (que é cerca de 1,7 vezes o tempo de vida do nível laser superior [58], sendo portanto suficiente para promover a inversão de população), correspondendo a um ciclo útil de 0,3%. Para que o diodo laser utilizado fosse sintonizado em 880 nm, foi preciso que sua temperatura fosse ajustada para 39° C quando operando em regime pulsado, assim, a configuração do controle de temperatura do *Peltier* foi ajustada para aquecimento ao invés de resfriamento. O detector utilizado era um detector de energia por pulso (Thorlabs, modelo ES111C).

Para potências de bombeamento abaixo de cerca de 35 W, o detector apresentou-se muito instável, não sendo possível realizar uma medição confiável. Os outros detectores disponíveis no laboratório não eram adequados para esse regime de operação, ou comprimento de onda, ou ainda eram absorvedores térmicos - também apresentando instabilidade para potências médias muito baixas. Para solucionar este problema, utilizou-se um detector rápido de Germânio pois esse tipo de detector é sensível o suficiente e apresenta um comportamento linear para baixas potências. Foi utilizado um difusor para que não houvesse interferência do tamanho do modo ou pequenos desvios do feixe, um filtro de densidade neutra para

atenuação, e em um osciloscópio foi medida a tensão no detector. Conhecido o valor de potência do laser para determinada potência de bombeamento, medindo-se a tensão correspondente a esse ponto, pode-se realizar uma calibração para obtenção da relação entre a tensão medida e a potência correspondente.

Para o bombeamento cw, a temperatura do diodo foi mantida em aproximadamente 30° C pela refrigeração do *Peltier*. A fonte de corrente para o diodo era da marca Newport Laser Diode Driver – Modelo 5600, e o detector de potência utilizado era da marca Thorlabs modelo S302-C.

Capítulo 5

Resultados e discussão

5.1 Laser Raman em 1176 nm

5.1.1 Regime q-cw

Foi medido o espectro do laser Raman em 1176 nm, com o cristal 1, utilizando o espectrômetro da marca Ocean Optics modelo NIR-Quest, com resolução de aproximadamente 3,3 nm, conforme figura 19, em que é possível observar a linha do fundamental e do 1º Stokes.

Figura 19: Espectro de emissão com o fundamental em 1064 nm e o 1º Stokes em 1176 nm, em regime q-cw.

O laser Raman com configuração de ângulo rasante com uma dobra encontra um grande volume de ganho dentro do cristal, permitindo a oscilação de modos TEM de Hermite-Gauss de ordens superio-

res, dependendo do alinhamento dos espelhos. Com uma câmera (Newport modelo LBP-4-USB) foram obtidas imagens de alguns desses modos, conforme figura 20.

Figura 20: Modos TEM do laser Raman em 1176 nm, obtidos com configuração de uma dobra, em regime q-cw.

O campo fundamental, em 1064 nm, gera o campo Stokes, em 1176 nm, e quanto mais intenso o campo Stokes, maior será a depleção do campo em 1064 nm, consistindo em uma dinâmica delicada. Ainda que na saída do laser haja essencialmente o 1176 nm, há uma pequena fração residual do campo em 1064 nm, e utilizando um filtro (FL1064-10 Newport) podemos observar somente o 1064 nm enquanto oscila o Stokes, e da mesma forma, usando um filtro adequado (Thorlabs FEL1150-1V) pode-se observar apenas o 1176 nm, conforme figura 21, em que esse procedimento foi feito com a configuração de duas dobras e com o cuidado de não saturar a câmera.

Observa-se pela imagem que o perfil do feixe da emissão Stokes apresenta qualidade superior à do feixe em 1064 nm, efeito conhecido como Raman *beam cleanup* [59]. Com o regime q-cw e configuração de uma dobra, o 1° Stokes forneceu uma potência pico máxima de 8,4 W em multimodo, correspondendo a uma eficiência de conversão óptica da radiação incidente do diodo para radiação Stokes de 11,7%. Alinhando os espelhos para favorecer a oscilação do modo TEM₀₀, foi atingida uma potência pico máxima de 3 W, correspondendo a uma eficiência de conversão óptica de 4,5%. Com configuração de duas dobras, a competição entre os dois feixes dentro do cristal “força” a oscilação do modo TEM₀₀, e com essa configuração DBMC foi obtido um resultado um pouco melhor, em que a potência pico máxima foi 3,7 W com uma eficiência de conversão óptica de 5,4%. A figura 22 mostra as curvas de potência de saída em função da potência incidente do diodo para configuração de uma dobra com o laser em multimodo para uma dobra com o modo TEM₀₀ e para duas dobras com o modo TEM₀₀. Os pontos do gráfico em formato triangular correspondem ao cristal 2 (e os valores foram corrigidos conforme equação 50) e as medidas desses pontos foram realizadas com um detector de Germânio, ao passo que os demais pontos correspondem ao cristal 1 tendo sido medidos com um detector de potência.

Figura 21: Imagem do feixe laser no 1º Stokes e do feixe laser fundamental, mostrando uma depleção espacial do campo fundamental e um feixe Stokes “limpo”.

Figura 22: Gráficos da potência por pico do laser Raman em 1176 nm, em função da potência do diodo, em regime q-cw, para as configurações de uma dobra com TEM₀₀, uma dobra multimodo e duas dobras com TEM₀₀.

Para realizar as medidas do fator de qualidade M^2 do modo TEM₀₀, com configuração de uma dobra, foi utilizada uma câmera CCD para medir o diâmetro do feixe ao longo do eixo z. O feixe laser foi focalizado em uma câmera por uma lente biconvexa de distância focal $f=35$ mm, sendo a câmera deslocada ao longo do eixo de propagação z, passando pelo plano focal, em cuja posição (z_0) o feixe tinha

diâmetro mínimo (w_0). A figura 23 mostra a curva do M^2 do feixe com modo TEM_{00} , medido nos eixos x e y, com configuração de uma dobra. Os resultados mostram que com uma dobra e com o alinhamento adequado dos espelhos o laser apresenta um fator M^2 de 1,77 e 1,42 nas direções horizontal e vertical, respectivamente.

Figura 23: Medida do parâmetro M^2 do laser em 1176 nm em regime q-cw e configuração de uma dobra.

Com a configuração DBMC, foi utilizado o método *knife edge*. Esse método consiste em medir o diâmetro do feixe em cada posição ao longo do eixo z, porém essa medida é calculada através das medidas de potência ao invés da imagem em si. O feixe foi focalizado pela mesma lente de distância focal $f=35$ mm, e uma lâmina de estilete em um suporte com micrômetro foi utilizada para cobrir 10% da potência do feixe, na posição x_1 e 90% na posição x_2 . A diferença entre os valores x_1 e x_2 corresponde ao diâmetro do feixe naquela posição z, e essa medida é repetida para várias posições no eixo z, em torno de z_0 . O valor do raio obtido dessa forma é multiplicado pelo fator de correção 1,561 (pelo fato da lâmina cortar o feixe tornando-o retangular embora as regiões equipotenciais na realidade correspondem a círculos). Os resultados para o M^2 obtidos dessa maneira foram 1,32 e 1,22 nas direções horizontal e vertical, respectivamente, conforme figura 24.

Figura 24: Medida do parâmetro M^2 para o laser em 1176 nm, em regime q-cw e configuração de duas dobras.

5.1.2 Regime cw

O espectro de emissão do laser Raman em regime cw pode ser observado na figura 25.

Figura 25: Espectro de emissão do laser Raman em 1176 nm em regime cw.

Comparando os espectros do laser Raman em regime q-cw e cw, observa-se que o primeiro apresenta a largura a meia altura (FWHM) de aproximadamente 11 nm, ao passo que no último esse valor é cerca

de 7 nm. A lente térmica que se instala no cristal quando o laser opera em regime cw tem como um de seus efeitos a filtragem espacial do laser, tornando o espectro mais estreito. Entretanto, a resolução do espectrômetro utilizado não é adequada para esta comparação, dado que a incerteza das medidas é muito grande.

Com configuração de uma dobra, o laser em 1176 nm atingiu uma potência máxima de 1,8 W, correspondendo a uma eficiência de conversão óptica (diodo para Stokes) de 7,3%. Para potências de bombeamento abaixo de 8 W, o modo que oscilava era predominantemente o TEM_{00} . Em regime cw, é esperada uma forte lente térmica, e como o cristal YVO_4 apresenta valor positivo para o coeficiente termo óptico (dn/dT), essa lente é convergente, e o modo TEM_{00} é o modo que sofrerá menos influência dessa lente, devido a sua pequena dimensão. Com potências de bombeamento acima de 8 W, foi observado que modos TEM de ordem superior começavam a oscilar, o que pode ser devido ao aumento do volume em que há ganho dentro do cristal, permitindo que outros modos coexistam com o modo TEM_{00} , e ainda que o alinhamento da cavidade permitisse a seleção do modo TEM_{00} , essa oscilação era muito instável e sujeita a um comportamento de *mode hopping* dos modos transversais. Com configuração de uma dobra, foi medida a curva de *slope efficiency* conforme figura 26.

Figura 26: Gráfico da potência do laser Raman em 1176 nm, em função da potência incidente do diodo, em regime cw e configuração de uma dobra.

Durante este experimento, o cristal sofreu um dano em uma das faces laterais (em que não há bombeamento), resultando em uma trinca que se propagava a partir da superfície em direção ao centro do cristal. Acreditamos que um dano no *coating* tenha criado uma região de absorção localizada da radiação do laser, gerando calor e trincando o cristal. A partir daqui, utilizou-se o cristal 2, e foi feita a correção conforme indicado na seção 4.1, utilizando a expressão 50.

A medida do M^2 com 6 W de potência de bombeamento em configuração de uma dobra e utilizando uma câmera CCD e uma lente biconvexa de distância focal $f=50$ mm, forneceu os valores $M_x^2 = 1,11$ e $M_y^2 = 1,01$, conforme figura 27, em que há também a imagem do feixe no plano focal.

Figura 27: Medida do parâmetro M^2 para o laser em 1176 nm, regime cw e configuração de uma dobra.

Com a configuração DBMC em regime cw, foi obtida a operação do laser Raman, entretanto com baixa eficiência, conforme figura 28.

Figura 28: Gráfico da potência do laser Raman em 1176 nm, em função da potência do diodo, em regime cw e configuração DBMC.

Uma possível causa para o aparecimento do *rollover* que se observa para potências de bombeamento acima de 12,5 W seria um alargamento do espectro do laser fundamental em 1064 nm, e para confirmar ou refutar tal hipótese foram realizadas medidas do espectro (Ocean Optics modelo HR 2000, com resolução de 0,22 nm) simultaneamente às medidas do gráfico de potência. O resultado pode ser observado na figura 29 a partir do qual não é possível constatar nenhum alargamento significativo do espectro em 1064 nm.

Figura 29: Espectro do laser fundamental em 1064 nm, simultaneamente com a SRS, para investigar se há alargamento no espectro.

Com a operação cw do laser Raman em configuração DBMC, foi utilizado o método *knife edge* para as medidas do M^2 , utilizando uma lente de distância focal $f=35$ mm, e foram obtidos os valores $M_x^2 = 1,26$ e $M_y^2 = 1,19$, conforme figura 30.

Figura 30: Medida do parâmetro M^2 para o laser em 1176 nm, em regime cw e configuração DBMC.

Segue na tabela 2 os resultados obtidos com o laser em 1176 nm, seguida por uma breve comparação da performance do laser nos regimes q-cw e cw, nas configurações abordadas no trabalho.

Tabela 2: Valores experimentais do fator de qualidade M^2 e potências (P_{th}) de limiar de oscilação laser em 1176 nm para as configurações do ressonador laser utilizadas neste trabalho.

	M_x^2	M_y^2	$P_{th}(W)$	$P_{max}(W)$	eficiência de conversão óptica
q-cw, 1 dobra (multimodo)	-	-	12,8	8,2	11,7%
q-cw, 1 dobra (modo TEM ₀₀)	1,77	1,42	12,8	3,0	4,5%
q-cw, DBMC (modo TEM ₀₀)	1,22	1,32	10,0	3,7	5,4%
cw, 1 dobra (multimodo)	-	-	-	1,8	7,3%
cw, 1 dobra (modo TEM ₀₀)	1,11	1,01	4,0	0,35	4,4%
cw, DBMC (modo TEM ₀₀)	1,26	1,19	5,5	0,26	2,11%

O valor obtido para a potência do limiar de oscilação laser com bombeamento q-cw e configuração de uma dobra foi 12,8 W (multimodo e TEM₀₀) e para o laser q-cw com configuração DBMC foi um pouco menos, 10 W. No laser com duas dobras, o caminho do feixe laser é duas vezes mais longo que o caminho do feixe com uma dobra, fornecendo duas vezes o ganho Raman, o que explica o valor mais baixo para a potência limiar P_{th} , no entanto as perdas também dobram, e por isso a eficiência se mantém aproximadamente constante.

O valor da potência limiar de oscilação observada em regime cw com configuração de uma dobra foi bem mais baixo, apenas 4 W, e uma possível explicação pode ser pelo *buildup time* do campo Stokes, resultando em não haver tempo suficiente para se criar o campo Stokes durante estes 150 μs do pulso de bombeamento para potências mais baixas do fundamental. Outra possível explicação poderia ser em relação à lente térmica que existe em regime cw e que de alguma forma beneficia o acoplamento de modos. Porém essas duas hipóteses precisam ser investigadas para serem conclusivas. Em configuração de uma dobra, a eficiência do modo TEM₀₀ em regime q-cw foi 4,5%, aproximadamente igual à eficiência em regime cw a baixas potências, de 4,4%.

O desempenho do laser em regime cw e configuração DBMC foi insatisfatório, mostrando-se inferior em termos de potência e eficiência, e as razões podem ser de natureza térmica, entretanto não se obteve dados suficientes para alguma conclusão.

A lente térmica formada no cristal quando o laser opera em regime cw tem uma maior contribuição pelo calor proveniente do bombeamento do que pelo proveniente do espalhamento Raman. Para a configuração de uma dobra, utilizando a equação 40 e o valor da potência de saída Stokes 1,8 W para potência de entrada de 25 W e estimando as perdas por passo $L=0,2\%$, obtém-se que:

$$P_{LR1} = \frac{\left(\frac{1}{1064} - \frac{1}{1176}\right) \cdot 1,8 \cdot (0,0047 + 0,002)}{0,0047 \cdot \frac{1}{1176}} \simeq 270,10 \text{ mW} \quad (54)$$

o que corresponde, aproximadamente, a apenas 1% da potência de bombeamento que incide no cristal.

Usando a expressão 42 para calcular o calor depositado no cristal devido ao bombeamento, temos:

$$P_{LP_1} = \frac{\left(\frac{1}{880} - \frac{1}{1064}\right)}{\frac{1}{880}} \cdot 25 = 4,323308 \text{ W} \quad (55)$$

De maneira que este valor corresponde a cerca de 17% do valor da potência de bombeamento que incide no cristal. Além disso, o calor gerado pelo espalhamento Raman distribui-se uniformemente pelo caminho que o feixe percorre dentro do cristal, ao passo que o calor proveniente do bombeamento é depositado apenas na região percorrida pelo feixe de bombeamento, que foi focalizado por uma lente cilíndrica, sendo cerca de 75% da radiação absorvida no primeiro 1 mm do cristal.

Considerando que o feixe laser fundamental e o feixe Raman possuam o mesmo valor de raio, em torno de $150 \mu\text{m}$, e que eles não apresentem uma divergência considerável dentro do cristal, podem ser considerados como cilindros, conforme figura 31.

Figura 31: Esquematização do volume dentro do cristal em que o calor é depositado pelo (a) espalhamento Raman e (b) bombeamento.

O volume total dos cilindros na figura 31 (a) é calculado por: $V_{a_1} = 2 \cdot \pi \cdot (150 \cdot 10^{-4})^2 \cdot 1,1 \simeq 0,00156 \text{ cm}^3$.

Para o cálculo do volume em que o calor proveniente do bombeamento é depositado, utilizou-se as dimensões da “folha” de bombeamento, assim, o volume de (b) é $V_{b_1} = 0,5 \cdot (60 \cdot 10^{-4}) \cdot 1,1 = 0,003300 \text{ cm}^3$.

Agora, dividindo o valor da potência depositada no cristal em forma de calor devido aos dois processos pelos volumes das respectivas regiões, obtém-se:

$P_{V(LR)_1} = \frac{0,27010}{0,00156} \simeq 173 \text{ W/cm}^3$ é a potência depositada no cristal, por cm^3 , pelo espalhamento Raman, uma dobra;

$P_{V(LP)_1} = \frac{4,323308}{0,003300} \simeq 1310 \text{ W/cm}^3$ é a potência depositada no cristal, por cm^3 , pelo bombeamento, uma dobra.

Para a configuração de duas dobras, devemos usar que $L=0,4\%$, e utilizando o valor da potência de saída 0,020 W para potência de entrada de 13,5 W (conforme figura 28) temos que:

$$P_{LR_2} = \frac{\left(\frac{1}{1064} - \frac{1}{1176}\right) \cdot 0,020 \cdot (0,0047 + 0,004)}{0,0047 \cdot \frac{1}{1176}} \simeq 3,90 \text{ mW} \quad (56)$$

$$P_{LP_2} = \frac{\left(\frac{1}{880} - \frac{1}{1064}\right)}{\frac{1}{880}} \cdot 13,5 = 2,334587 \text{ W} \quad (57)$$

E como o volume do feixe é o dobro quando há duas dobras, obtem-se que:

$P_{V(LR)_2} = \frac{0,00390}{2 \cdot 0,00156} \simeq 1,25 \text{ W/cm}^3$ é a potência depositada no cristal, por cm^3 , pelo espalhamento Raman, duas dobras;

$P_{V(LP)_2} = \frac{2,334587}{0,003300} \simeq 707 \text{ W/cm}^3$ é a potência depositada no cristal, por cm^3 , pelo bombeamento, duas dobras.

Esses resultados indicam que o calor depositado no cristal pelo bombeamento é muito maior que o devido ao SRS, entretanto, para realizar os cálculos do calor proveniente do SRS, foi considerado apenas a conversão de fótons em 1064 nm para 1176 nm, quando na realidade outras transições também podem ocorrer.

5.2 Laser em 588 nm

Com a configuração de uma dobra e regime cw, foi adicionado à cavidade laser o cristal LBO, sendo possível a geração do laser em 588 nm. Em menor intensidade, foi observada a emissão no verde em 532 nm, a partir da geração do segundo harmônico do laser fundamental em 1064 nm, e também observada emissão laser verde-limão em 559 nm, a partir da geração de soma de frequência dos lasers em 1064 nm e 1176 nm, conforme esquematização na figura 32.

Figura 32: Esquematização dos comprimentos de onda gerados no ressonador laser com o cristal dobrador.

Os espectros destas três emissões foram medidos com espectrômetros da marca Ocean Optics - para

559 e 588 nm foi utilizado o modelo HR2000+ (resolução 0,06 nm nesta região) e para 532 nm o modelo HR4000 (resolução 0,12 nm nesta região), e os resultados seguem na figura 33.

Figura 33: Espectros dos laser no visível obtidos a partir do laser fundamental em 1064 nm e Raman em 1176 nm, com o cristal LBO.

Em algum dos componentes ópticos da cavidade, os feixes sofrem reflexão, de maneira que é possível observar o feixe principal, um segundo feixe menos intenso e um terceiro, já bastante tênue. Isso acontece com os três comprimentos de onda no visível. Segue na figura 34 uma foto do laser laranja-amarelo, e na figura 35 imagens dos três comprimentos de onda obtidos, que foram separados utilizando-se uma grade de difração holográfica para o visível (Thorlabs, com 2400 ranhuras/mm). Neste ponto do experimento, interessava-nos a obtenção apenas do laser laranja em 588 nm, entretanto os outros dois comprimentos de onda também foram gerados, devido à altíssima intensidade do campo fundamental em 1064 nm.

Pela figura 35 é possível também observar o comportamento multimodo das emissões em 532 nm e 559 nm, ao passo que a emissão em 588 nm era modo TEM_{00} no momento da foto, a baixa potência.

Na saída do laser foi posicionada uma grade de difração para separar os 3 comprimentos de onda visíveis, e a potência de saída do laser em 588 nm foi medida como função da potência incidente de bombeamento, conforme figura 36 (Thorlabs - S302c), e como a conversão pelo LBO se dá na direção de propagação z mas nos sentidos z e $-z$, o fato de não haver um espelho intracavidade faz com que a potência medida no espelho de saída corresponda à metade do que realmente é produzido, de maneira que o valor medido foi multiplicado por 2. O residual em 1064 nm foi medido através espelho M_1 (Newport - PM10v1), utilizando um filtro para a transmissão apenas do 1064 nm (Thorlabs FL1064-10), com o intuito de observar seu comportamento de maneira qualitativa. Não foi possível observar o residual em 1176 nm quando utilizado o espelho M_2 como espelho de saída para o laranja.

Figura 34: Foto do feixe laser laranja.

Figura 35: Imagens dos feixes laser visíveis obtidos.

Para o bombeamento de até aproximadamente 15 W, o laser oscilava no modo TEM_{00} , e para potências mais altas, sua oscilação era em multimodo, apresentando-se instável e com um comportamento de *mode hopping* dos modos transversais. O valor máximo da potência do laser no modo TEM_{00} foi 350 mW, correspondendo a uma eficiência de conversão óptica (diodo- visível) de 2,4% e a potência máxima em multimodo foi 820 mW e eficiência 4%. O limiar de operação laser foi cerca de 7 W da potência incidente de bombeamento. Com o bombeamento em 14,5 W, foi medido o fator de qualidade M^2 do laser, utilizando o método da câmera, com uma lente biconvexa ($f=35$ mm), conforme figura 37, e foram obtidos os valores $M_x^2 = 1,15$ e $M_y^2 = 1,20$.

Figura 36: Potência de saída em 588 nm em função da potência incidente de bombeamento, em regime cw e configuração de uma dobra.

Figura 37: Medida do parâmetro M^2 para o laser em 588 nm, cw, uma dobra.

5.3 Fluorescência azul

Quando o campo Stokes oscilava, observou-se no cristal uma emissão de coloração azul por onde o feixe laser passava, conforme figura 38, sendo (a) a vista de uma das faces laterais do cristal, em que se observa também o suporte; (b) a face lateral do cristal, com configuração de uma dobra e (c) a face lateral do cristal com configuração de duas dobras. Essa luminescência azul é típica de alguns lasers Raman, tendo sido relatada em cristais como KGW, BaWO_4 , YVO_4 , GdVO_4 , SrWO_4 e SrMoO_4 , e há estudos que investigam o fenômeno e sugerem ser devido à impurezas $\text{Tm}^{+3}(^1\text{G}_4)$ [60], podendo ter influência moderada na lente térmica e na redução da potência de saída. Neste trabalho, o caminho óptico é longo, principalmente em configuração de duas dobras, de maneira que a perda causada pela fluorescência azul pode ter um impacto considerável na potência de saída do laser.

Figura 38: Imagens da fluorescência azul observada no cristal.

Capítulo 6

Conclusão

Foi demonstrado o funcionamento do primeiro laser self-Raman com bombeamento lateral em regime cw, tendo sido explorado o 1° Stokes em 1176 nm e seu segundo harmônico em 588 nm. EM RELAÇÃO AO LASER OPERANDO EM 1176 NM: Sua operação foi caracterizada com configurações de uma dobra e duas dobras (DBMC), fornecendo uma potência pico máxima de 8,4 W em 1176 nm em regime q-cw e multimodo, correspondendo a uma eficiência de conversão óptica de 11,7%. Essa eficiência é superior aos valores obtidos nos trabalhos com bombeamento transversal, tanto em regime pulsado quanto cw [40, 42]. Com configuração de uma dobra, o laser apresentou uma variedade de modos TEM de Gauss-Hermite, dependendo do alinhamento da cavidade e da potência de bombeamento. A potência pico máxima de operação do modo TEM₀₀ em regime q-cw foi 3,7 W, obtida utilizando a tecnologia DBMC. A tecnologia DBMC não apenas demonstrou eficiência superior com o modo TEM₀₀ quando comparada à configuração de uma dobra, como forneceu um feixe com qualidade robusta e insensível às variações da potência de bombeamento e alinhamento da cavidade. A operação cw do laser com configuração de uma dobra favoreceu a oscilação do modo TEM₀₀ para baixas potências de bombeamento (<8 W), e para potências mais altas se observou um comportamento de *mode hopping*. Esta configuração forneceu a potência máxima de saída em multimodo de 1,8 W em 1176 nm. No regime de bombeamento cw e configuração DBMC, foi obtida a oscilação laser no modo TEM₀₀, entretanto com baixa eficiência. Em resumo, com a associação da tecnologia de bombeamento transversal em ângulo rasante à tecnologia de laser Raman, foi possível a geração de um laser em 1176 nm, compacto, de custo reduzido quando comparado a lasers bombeados longitudinalmente, e com boa qualidade de feixe. A geometria da configuração DBMC é muito vantajosa para um laser Raman pelo fato de que quanto maior for o comprimento de interação no cristal Raman, maior será o ganho.

EM RELAÇÃO AO LASER OPERANDO EM 588 NM: Foi obtida a operação laser em regime cw com configuração de uma dobra. Para potências de bombeamento abaixo de 15 W foi demonstrada a oscilação no modo TEM₀₀, e a potência máxima de saída em multimodo foi de 820 mW, correspondendo à eficiência de conversão óptica de 4%.

Apêndice A

Equacionamento dos modos retangulares no ressonador

Dada a equação de onda para o campo elétrico no vácuo:

$$\nabla^2 E(\vec{r}, t) - \frac{1}{c} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.1})$$

A solução é do tipo:

$$E(\vec{r}, t) = \varepsilon(\vec{r}) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.2})$$

que corresponde a campos monocromáticos, e substituindo essa solução na expressão A.1, obtém-se a equação de Helmholtz:

$$\nabla^2 \varepsilon(\vec{r}) + k^2 \varepsilon(\vec{r}) = 0 \quad (\text{A.3})$$

em que $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ é o vetor de onda. Uma das soluções da equação de Helmholtz é do tipo:

$$\varepsilon(\vec{r}) = \varepsilon_0 e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{A.4})$$

em que ε_0 é uma constante.

Essa solução corresponde a uma onda plana, pois apresenta o mesmo valor para todos os pontos em um plano normal ao vetor de onda k . Entretanto, a área da seção de choque transversal que a onda plana apresenta é infinita, ao passo que no laser tal área tem valor finito. Fazendo-se aproximações para a equação A.3, aplicando as condições de contorno adequadas e impondo que a solução satisfaça a equação de Helmholtz, tem-se:

$$\nabla_T^2 \varepsilon_0 + 2ik \frac{\partial \varepsilon_0}{\partial z} E(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.5})$$

Esta é a chamada equação de onda paraxial, em que $\nabla_T^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$ é o laplaciano transversal. Uma possível solução dessa equação segue em A.6 e apresenta o perfil de intensidade gaussiano em qualquer plano perpendicular à z .

$$\varepsilon(\vec{r}) = \frac{A e^{ikz} e^{-i\phi(z)}}{\sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}}} e^{ik \frac{(x^2+y^2)}{2R(z)}} e^{-\frac{(x^2+y^2)}{w^2(z)}} \quad (\text{A.6})$$

em que $w(z)$ é o diâmetro do feixe, que apresenta valor mínimo - chamado cintura do feixe - em um plano $z=0$ e cresce conforme a relação:

$$w = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}} \quad (\text{A.7})$$

em que A é uma constante, z_0 é a distância de Rayleigh dada por $z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$, $\phi(z) = \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_0} \right)$ e por fim:

$$R(z) = z + \frac{z_0^2}{z} \quad (\text{A.8})$$

A equação A.6 é uma das soluções da equação de onda paraxial A.5, mas podemos encontrar outras soluções. Assumindo uma solução do tipo:

$$\varepsilon_0(\vec{r}) = A \cdot g \left[\frac{x}{w(z)} \right] h \left[\frac{y}{w(z)} \right] e^{iP(z)} e^{ik \frac{(x^2+y^2)}{2q(z)}} \quad (\text{A.9})$$

em que $q(z)$ é tal que

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} + \frac{i\lambda}{\pi w(z)} \quad (\text{A.10})$$

em que g é uma função de $\frac{x}{w(z)}$ e h é uma função de $\frac{y}{w(z)}$. Devemos encontrar g , h e P que satisfaçam a equação de onda paraxial. Considerando que g e h são funções de variáveis independentes, a melhor maneira de encontrar as soluções é usando o método de separação de variáveis. Para isso, escrevemos:

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{x}{w(z)} \\ \eta &= \frac{y}{w(z)} \\ \frac{\partial g}{\partial x} &= \frac{dg}{d\xi} \frac{\partial \xi}{\partial x} = \frac{1}{w(z)} \frac{dg}{d\xi} \rightarrow \frac{\partial^2 g}{\partial x^2} = \frac{1}{w^2(z)} \frac{d^2 g}{d\xi^2} \\ \frac{\partial g}{\partial z} &= \frac{dg}{d\xi} \frac{\partial \xi}{\partial z} = \frac{-x}{w^2(z)} \frac{dw}{dz} \frac{dg}{d\xi} \end{aligned}$$

Analogamente para a função h . Substituindo essas derivadas na equação de onda paraxial e usando A.7, A.8 e A.10, e dividindo o resultado por $g(\xi)h(\eta)$, obtém-se:

$$\frac{1}{g(\xi)} \left(\frac{d^2 g}{d\xi^2} - 4\xi \frac{dg}{d\xi} \right) + \frac{1}{h(\eta)} \left(\frac{d^2 h}{d\eta^2} - 4\eta \frac{dh}{d\eta} \right) + \left(\frac{2ik}{q(z)} - 2k \frac{dP}{dz} \right) w^2(z) = 0$$

$$-a_1 \qquad -a_2 \qquad a_1 + a_2$$

Nota-se que cada termo é função de apenas uma variável independente, de maneira que podemos igualar cada termo a uma constante, e então basta resolver essas três equações diferenciais ordinárias. É conveniente reescrever ξ : $u = \sqrt{2}\xi$

$$\frac{dg}{d\xi} = \frac{dg}{du} \frac{du}{d\xi} = \sqrt{2} \frac{dg}{du} \rightarrow \frac{d^2g}{d^2\xi} = 2 \frac{d^2g}{du^2} \text{ obtem-se então:}$$

$$\frac{d^2g}{d^2u} - 2u \frac{dg}{du} + \frac{a_1g}{2} = 0 \quad (\text{A.11})$$

As soluções finitas da equação A.11 são os polinômios de Hermite, e os primeiros são escritos conforme segue:

$$H_0(u) = 1$$

$$H_1(u) = 2u$$

$$H_2(u) = 4u^2 - 2$$

$$H_3(u) = 8u^3 - 12u$$

$$H_4(u) = 16u^4 - 48u^2 + 12$$

Referências Bibliográficas

- [1] PIPER, J. A.; PASK, H. M. Crystalline Raman Lasers. **IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics**, v. 13, n. 3, p. 692–704, 2007.
- [2] GESKUS, D.; JAKUTIS-NETO, J.; PASK, H. M.; WETTER, N. U. Intracavity frequency converted Raman laser producing 10 deep blue to cyan emission lines up to 0,94 W output power Accepted with revisions **Optics Letters**, 2014.
- [3] OMATSU, T; LEE, A.; DEKKER, P.; PASK, H. M.; PIPER, J. A. Compact continuous-wave yellow laser based on a self-stimulating Raman Nd:YVO₄ laser. In: OSA ADV. SOLID STATE PHOTON. CONF., Vancouver, 2007.
- [4] SADICK, N. S.; WEISS, R. The utilization of a new yellow light laser (578 nm) for the treatment of class I red telangiectasia of the lower extremities. **J. Dermatol. Surg.**, v. 28, p. 21–23, 2002.
- [5] DEKKER, P.; PASK, H. M.; SPENCE, D. J.; PIPER, J. A. Continuous-wave, intracavity doubled, self-Raman laser operation in Nd:GdVO₄ at 586.5 nm. **Opt. Express**, v. 15, n. 11, p. 7038–7046, 2007.
- [6] MILDREN, R. P. Side-pumped crystalline Raman laser. **Opt. Lett.**, v. 36, n. 2, p. 235–7, 2011.
- [7] WANG, C.; CONG, Z.; QIN, Z.; ZHANG, X.; WEI, W.; WANG, W.; ZHANG, Y.; ZHANG, H.; YU, H. LD-side-pumped Nd:YAG/BaWO₄ intracavity Raman laser for anti-Stokes generation. **Optics Communications**, v. 322, p. 44–47, 2014.
- [8] LI, L.; ZHANG, X.; LIU, Z.; WANG, Q.; CONG, Z.; ZHANG, Y.; WANG, W.; WU, W.; ZHANG, H. A high power diode-side-pumped Nd:YAG/BaWO₄ Raman laser at 1103 nm”, **Laser Physics**, v. 23, n. 4, 2013.
- [9] KAMINSKII, A. A.; KEN-ICHI UEDA; EICHLER, H. J.; KUWANO, Y.; KOUTA, H.; BAGAEV, S. N.; CHYBA, T. H.; BARNES, J. C.; GAD, G. M. A.; MURAI, T.; LU, J. Tetragonal vanadates YVO₄ and GdVO₄ - new efficient χ^3 materials for Raman lasers. **Laser Phys.**, v. 11, n. 10, p. 1124-1133, 2001.

- [10] LAVI, R.; JACKEL, S.; TZUK, Y.; WINIK, M.; LEBIUSH, E.; PAISS, I. High-efficiency diode direct-pumping of Nd:YVO₄ grazing incidence oscillators. In: LASERS AND ELECTRO-OPTICS EUROPE, 2000.
- [11] KORES, C. C.; JAKUTIS-NETO, J.; WETTER, N. U. Comparison of grazing incidence Nd:YVO₄ lasers pumped at 808 and 880 nm. In: ADVANCED SOLID STATE LASERS, 2013, Paris.
- [12] GOLDRING, S.; LAVI, R. Heat generation following direct pumping of Nd:YVO₄ with and in the absence of stimulated emission. IN: ADVANCED SOLID-STATE PHOTONICS, 2006, Nevada.
- [13] BERMUDEZ, J. C.; PINTO-ROBLEDO, V. J.; KIR'YANOV, A. V.; DAMZEN, M. J. The thermo-lensing effect in a grazing incidence, diode-side-pumped Nd:YVO₄ laser. **Opt. Commun.** v. 210, n. 1-2, p. 75-82, 2002.
- [14] DAMZEN, M. J.; TREW, M.; ROSAS, E.; CROFTS, G. J. Continuous-wave Nd:YVO₄ grazing-incidence laser with 22.5 W output power and 64% conversion efficiency. **Opt. Comm.**, v. 196, September, p. 237–241, 2001.
- [15] WETTER, N. U.; CAMARGO, F. A; SOUSA, E. C. Mode-controlling in a 7.5 cm long, transversally pumped, high power Nd:YVO₄ laser. **Journal of Optics A: Pure and Applied Optics**, v. 10, n. 10, p. 104012, 2008.
- [16] DEANA, A. M.; LOPEZ, M. A. P. A.; WETTER, N. U. Diode-side-pumped Nd:YLF laser emitting at 1313 nm based on DBMC technology. **Opt. Lett.**, v. 38, n. 20, p. 4088–4091, 2013.
- [17] EISBERG, R. M.; RESNICK, R. **Quantum physics of atoms, molecules, solids, nuclei and particles**. New York; Chichester, Wiley, 1985.
- [18] HAHN, D. W. Raman Scattering Theory. p. 1-13, 2007.
- [19] BOYD, R. **Nonlinear Optics**. 3^a ed., Rochester, Elsevier/Academic Press, 2008.
- [20] LI, R.; BAUER, R.; LUBEIGT, W. Continuous-Wave Nd:YVO₄ self-Raman lasers operating at 1109 nm, 1158 nm and 1231 nm. **Opt. Express**, v. 21, n. 15, p. 1915–1917, 2013.
- [21] PASK, H. M.; DEKKER, P.; MILDREN, R. P.; SPENCE, D. J.; PIPER, J. A. Wavelength-versatile visible and UV sources based on crystalline Raman lasers. **Progress in Quantum Electronics**, v. 32, n. 3-4, p. 121–158, 2008.
- [22] http://www.rp-photonics.com/noncritical_phase_matching.html Acesso em 22/03/2015 às 15h.
- [23] O'CONNOR, J. R. Unusual crystal-field energy levels and efficient laser properties of YVO₄:Nd. **Appl. Phys. Lett.** v. 9, 407, 1966.

- [24] KOECHNER, W. **Solid State Lasers Engineering - A Graduate Text**. 6^a ed. Berlin; New York, Springer, 2006. (Springer series in optical sciences, v.1)
- [25] SATO, Y.; TAIRA, T.; PAVEL, N.; LUPEI, V. Laser operation with near quantum-defect slope efficiency in Nd:YVO₄ under direct pumping into the emitting level. **Applied Physics Letters**, v. 82, n. 2003, p. 844–846, 2003.
- [26] KAMINSKII, A. A.; KEN-ICHI UEDA; EICHLER, H. J.; KUWANO, Y.; KOUTA, H.; BAGAEV, S. N.; CHYBA, T. H.; BARNES, J. C.; GAD, G. M. A.; MURAI, T.; LU, J. Tetragonal vanadates YVO₄ and GdVO₄ - new efficient χ^3 materials for Raman lasers. **Laser Phys.**, v. 11, n. 10, p. 1124–1133, 2001.
- [27] WETTER, N. U. (2012). Spectral Narrowing and Brightness Increase in High Power Laser Diode Arrays, Semiconductor Laser Diode Technology and Applications, Dr. Dnyaneshwar Shaligram Patil (Ed.), ISBN: 978-953-51-0549-7, InTech, Available from: <http://www.intechopen.com/books/semiconductor-laser-diodetechnology-and-applications/spectral-narrowing-and-brightness-increase-in-high-power-laser-diode-arrays>
- [28] LAVI, R.; JACKEL, S.; TZUK, Y.; WINIK, M.; LEBIUSH, E.; PAISS, I. High-efficiency diode direct-pumping of Nd:YVO₄ grazing incidence oscillators. In: LASERS AND ELECTRO-OPTICS EUROPE, 2000.
- [29] GOLDRING, S.; LAVI, R. Heat generation following direct pumping of Nd:YVO₄ with and in the absence of stimulated emission. IN: ADVANCED SOLID-STATE PHOTONICS, 2006, Nevada.
- [30] SIEGMAN, A. E. Defining, measuring, and optimizing laser beam quality. In: PROCEEDINGS SPIE, 1993, Los Angeles. Proc. SPIE v. 1868, 1993.
- [31] CHEN, Y. F. High-power diode-pumped actively Q-switched Nd:YVO₄ self-Raman laser: influence of dopant concentration. **Opt. Lett.**, v. 29, n. 16, p. 1915–7, 2004.
- [32] DU, C. L.; ZHANG, L.; YU, Y. Q.; RUAN, S. C.; GUO, Y. Y. 3.1 W laser-diode-end-pumped composite Nd:YVO₄ self-Raman laser at 1176 nm. **Appl. Phys. B**, v. 101, n. 4, p. 743–746, 2010.
- [33] PASK, H. M. Continuous-wave, all-solid-state, intracavity Raman laser. **Opt. Lett.** v. 30, n. 18, p. 2454–2456, 2005.
- [34] DEMIDOVICH, A. A. Continuous-wave Raman generation in a diode-pumped Nd³⁺KGd(WO₄)₂ laser. **Opt. Lett.**, v. 30, n. 13, p. 1701–1703, 2005.

- [35] LISINETSKII, V. A.; GRABTCHIKOV, A. S.; DEMIDOVICH, A. A.; et al. Nd:KGW/KGW crystal: efficient medium for continuous-wave intracavity Raman generation. **Appl. Phys. B**, v. 88, n. 4, p. 499–501, 2007.
- [36] BURAKEVICH, V. N.; LISINETSKII, V. A.; GRABTCHIKOV, A. S.; DEMIDOVICH, A. A.; ORLOVICH, V. A.; MATROSOV, V. N. Diode-pumped continuous-wave Nd:YVO₄ laser with self-frequency Raman conversion. **Appl. Phys. B**, v. 86, n. 3, p. 511–514, 2006.
- [37] DEKKER, P.; PASK, H. M.; PIPER, J. A. All-solid-state 704 mW continuous-wave yellow source based on an intracavity, frequency-doubled crystalline Raman laser. **Opt. Lett.**, v. 32, n. 9, p. 1114–1116, 2007.
- [38] LEE, A. J.; PASK, H. M.; PIPER, J. A.; ZHANG, H.; WANG, J. An intracavity, frequency doubled BaWO₄ Raman laser generating multi-watt continuous-wave, yellow emission. **Opt. Express**, v. 18, n. 6, p. 2366–2368, 2010.
- [39] ZHU, H. Y.; DUAN, Y. M.; ZHANG, G.; et al. Efficient continuous-wave YVO₄/Nd:YVO₄ Raman laser at 1176 nm. **Appl. Physics B**, v. 103, n. 3, p. 559–562, 2010.
- [40] CHEN, X. H.; ZHANG, X. Y.; WANG, Q. P.; et al. Diode side-pumped actively Q-switched Nd:YAG/SrWO₄ Raman laser with high average output power of over 10 W at 1180 nm. **Laser Phys. Lett.**, v. 6, n. 5, p. 363–366, 2009.
- [41] MILDREN, R. P. Side-pumped crystalline Raman laser. **Opt. Lett.**, v. 36, n. 2, p. 235–7, 2011.
- [42] SAVITSKI, V.; FRIEL, I.; HASTIE, J.; DAWSON, M.; BURNS D.; KEMP, A. Characterization of single-crystal synthetic diamond for multi-Watt continuous-wave Raman lasers, **IEEE J. Quantum Electron.**, v. 48, n. 328, 2012.
- [43] DEKKER, P.; PASK, H. M.; SPENCE, D. J.; PIPER, J. A. Raman laser operation in Nd:GdVO₄ at 586.5 nm. **Opt. Express**, v. 15, n. 11, p. 7038–7046, 2007.
- [44] FAN, L.; FAN, Y.; LI, Y.; ZHANG, H.; WANG, Q.; WANG, J.; WANG, H. T. High-efficiency continuous-wave Raman conversion with a BaWO₄ Raman crystal. **Opt. Lett.**, v. 34, n. 11, p. 1687–1689, 2009.
- [45] LI, X.; PASK, H. M.; LEE, A. J.; et al. Miniature wavelength-selectable Raman laser: new insights for optimizing performance. **Opt. Express**, v. 19, n. 25, p. 25623, 2011.
- [46] LEE, A. J.; SPENCE, D. J.; PIPER, J. A.; PASK, H. M. A wavelength versatile, continuous-wave, self-Raman solid-state laser operating in the visible. **Opt. Express**, v. 18, n. 19, p. 20013–20018, 2010.

- [47] ZHANG, X.; LI, S.; XIA, J.; CHENG, W.; XIONG, Z. All-solid-state cw sodium D₂ resonance radiation based on intracavity frequency-doubled self-Raman laser operation in double-end diffusion-bonded Nd⁺³:LuVO₄ crystal. **Opt. Lett.**, v. 35, n. 17, p. 2964–2966, 2010.
- [48] <http://archive.sciencewatch.com/ana/hot/phy/11novdec-phy/>. Acesso em 11/02/2015 às 8h.
- [49] <http://www.dermnet.com/images/Telangiectasias/photos/1> acesso em 12/05/2015 às 17h.
- [50] <http://emedicine.medscape.com/article/1113394-clinical> acesso em 12/05/2015 às 17h.
- [51] http://spie.org/Images/Graphics/Newsroom/Imported-2009/1669/1669_fig1.jpg acesso em 12/05/2015 às 17h.
- [52] ENGELGAU, M. M.; GEISS, L. S.; SAADDINE, J. B.; BOYLE, J. P.; BENJAMIN, S. M.; GREGG, E. W.; et al. The evolving diabetes burden in the United States. **Ann Intern Med.** v. 140, n. 11, p. 945-950, 2004.
- [53] KRICK, L. J. **Optical Methods: A Guide to the "sciences"**. 1^a ed.; Washington, DC, AACC Press, 2003.
- [54] <http://www.photonics.com/Article.aspx?AID=41159>. Acesso em 06/04/2015 às 11h.
- [55] KAPOOR, V.; KARPOV, V.; LINTON, C.; SUBACH, F. V.; VERKHUSHA, V. V.; TELFORD, W. G. Solid state yellow and orange lasers for flow cytometry. **Cytometry Part A**, v. 73A, p. 570-577, 2008.
- [56] CAMARGO, F.; WETTER, N. U., 22 watt, diode side-pumped Nd:YVO₄ laser with 63% optical-to-optical efficiency. In: ENCONTRO NACIONAL DE FÍSICA DA MATÉRIA CONDENSADA, XXIX, 2006, São Lourenço. *Annals of Optics*, 2006.
- [57] WETTER, N. U.; CAMARGO, F. A.; SOUSA, E. C. Mode-controlling in a 7.5 cm long, transversally pumped, high power Nd:YVO₄ laser. **Journal of Optics A: Pure and Applied Optics**, v. 10, n. 10, p. 104012, 2008.
- [58] FORNASIERO, L.; JENSEN, T.; HUBER, G. Excited state absorption and stimulated emission of Nd³⁺ in crystals. Part 2: YVO₄, GdVO₄, and Sr₅(PO₄)₃F, **Appl. Phys. B**, v. 553, p. 549–553, 1998.
- [59] MURRAY, J. T.; AUSTIN, W. L.; POWELL, R. C. Intracavity Raman conversion and Raman beam cleanup. **Optical materials**, v. 11, n. March 1999, p. 353–371, 2010.
- [60] NETO, J. J.; ARTLETT, C.; LEE, A.; LIN, J.; SPENCE, D.; PIPER, J.; WETTER, N. U.; PASK, H. Investigation of blue emission from Raman-active crystals: Its origin and impact on laser performance. **Optical Materials Express**, v. 4, n. 5, p. 889, 2014.