

POSGRADO EN CIENCIA E INGENIERÍA DE MATERIALES

**“LÁSERES ALEATORIOS DE TINTE BASADOS EN
PARTÍCULAS DE SiO₂”**

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE

**MAESTRO EN CIENCIA E INGENIERÍA DE
MATERIALES**

PRESENTA:

NATANAEL BENITO CUANDO ESPITIA

TUTOR: DR. JUAN HERNÁNDEZ CORDERO

México D.F.

2011



Universidad Nacional
Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

GRACIAS A:

Dr. Juan Hernández Cordero, por enseñarme con tu ejemplo, por hacerme sentir apoyado siempre.

Dr. Crescencio García Segundo, por compartir todo lo que sabes con pasión.

Dr. Rosa Quispe Siccha, por tu paciencia, por soportar mi desorden.

Instituto de Investigación en Materiales y Centro de Ciencias Aplicadas y Desarrollo Tecnológico, por facilitar las instalaciones y el equipo esencial para este trabajo.

Instituto de Ciencia y Tecnología del Distrito Federal, por brindar apoyo económico a este y otros proyectos.

En memoria de:

*Benito Cuando Celis
Mario Alfredo Ibarra Pereyra*

ÍNDICE

	<i>Página</i>
INTRODUCCIÓN	1
CAPÍTULO 1	
ANTECEDENTES	3
1.1. CONCEPTOS BÁSICOS DE LÁSERES	3
1.1.1. EMISIÓN Y ABSORCIÓN EN MEDIOS ACTIVOS	3
1.1.2. ELEMENTOS FUNDAMENTALES	5
1.2.3. LÁSERES DE TINTE	10
1.2. LÁSERES ALEATORIOS	11
1.3. EFECTO FOTOTÉRMICO	18
CAPÍTULO 2	
ARREGLO EXPERIMENTAL Y CARACTERIZACIÓN DE MUESTRAS	21
2.1. DESCRIPCIÓN DEL ARREGLO EXPERIMENTAL	22
2.1.1. MEDICIONES ÓPTICAS	24
2.1.2. OBTENCIÓN DE LA SEÑAL FOTOTÉRMICA	24
2.2. CARACTERIZACIÓN DEL MEDIO ESPARSOR Y DEL MEDIO ACTIVO	25
2.2.1. CARACTERIZACIÓN DE LAS PARTÍCULAS DE SiO ₂	26
2.2.2. CARACTERIZACIÓN DE LA RODAMINA 6G	31
CAPÍTULO 3	
LÁSERES ALEATORIOS DE TINTE BASADOS EN PARTÍCULAS DE SiO₂	35
3.1. EFECTO LÁSER ALEATORIO	36
3.2. CAMBIOS POR CONCENTRACIÓN DE TINTE	41
3.3. CAMBIOS POR CONCENTRACIÓN Y TAMAÑO DE PARTÍCULA EN EL MEDIO ESPARSOR	44
3.4. MEZCLAS CON DISTINTO TAMAÑO DE PARTÍCULA	55

CAPÍTULO 4

CONCLUSIONES	63
REFERENCIAS	70
BIBLIOGRAFÍA	73

INTRODUCCIÓN

La emisión coherente de luz es generalmente asociada con resonadores ópticos. En estos dispositivos la luz viaja describiendo trayectorias que se repiten después de realizar un viaje redondo. Los resonadores de Fabry-Perot, por ejemplo, basan su funcionamiento en las reflexiones múltiples de la luz entre dos espejos. Cuando un medio activo se coloca dentro de un resonador para generar emisión láser, la luz que permanece en el dispositivo interactúa más con el medio activo y se alcanza una intensidad máxima de emisión estimulada. La distancia entre los espejos determina la longitud de onda de resonancia de la luz láser; para resonadores de espejos paralelos, por ejemplo, las longitudes de onda iguales a un múltiplo entero del doble de la separación entre los espejos son las únicas que pueden generar emisión coherente.[1] Sin embargo, existen otras maneras de generar emisión láser utilizando fenómenos asociados al esparcimiento de la luz. La generación coherente de radiación óptica con este tipo de efectos se conoce como emisión láser aleatoria, y es un fenómeno óptico que permite generar emisión coherente en un medio con estructura desordenada [2].

Cuando se agregan partículas esparzoras en un medio activo, la luz generada es esparcida dentro del medio permitiendo mayor interacción con el medio activo. Como resultado de este incremento en interacción es posible generar las condiciones necesarias para la emisión estimulada de luz. En este tipo de láseres, las características de la luz generada como longitud de onda de resonancia, polarización y perfil espacial son determinadas por el conjunto de partículas esparzoras [2]. La dependencia de la luz láser con el medio esparzor desordenado hace útiles a estos sistemas en aplicaciones como la caracterización de materiales complejos [3], el sensado remoto [4], fuentes láser micrométricas [2] y terapia fotodinámica [5], por mencionar algunas. Además, por su propia naturaleza, los láseres aleatorios ofrecen ventajas de fabricación y una gran versatilidad en sus elementos fundamentales. Por otro lado su característica multidireccional puede ser útil en dispositivos de iluminación y pantallas inteligentes [2]. Durante la última década se han reportado láseres aleatorios basados en polvos semiconductores [6], cristales líquidos [7], partículas dieléctricas [8], materiales electrolumiscentes [9] y tejido orgánico [10]. Sin embargo, a pesar del interés que han

despertado y de su constante estudio, la física de los láseres aleatorios y sus parámetros principales están lejos de ser comprendidos completamente.

En este trabajo se presenta el estudio de láseres aleatorios basados en Rodamina 6G y partículas de dióxido de silicio SiO₂ como medio esparsor. El objetivo del estudio radica en estudiar los efectos de la concentración y el tamaño de partículas que conforman el medio esparsor. Adicionalmente se realiza un análisis de los efectos no radiativos por medio de la técnica fototérmica. La técnica fototérmica sirve en este trabajo para comparar las mediciones ópticas con los efectos no radiativos y así vincular parámetros ópticos con mediciones fototérmicas. En particular se estudian, el ancho espectral, la longitud de onda de emisión láser y la energía de umbral como parámetros de comparación para diferentes concentraciones de partículas y de tinte. Este tipo de parámetros son útiles para caracterizar el desempeño de sistemas láser, y en este caso, permite también estudiar los efectos del medio esparsor sobre la emisión de luz láser. Adicionalmente, se presentan mediciones fototérmicas en láseres aleatorios y se evalúa su uso como alternativa y complemento a las mediciones ópticas convencionales utilizadas para caracterizar estos sistemas.

El trabajo se compone de 4 capítulos, en el primero se cubren los aspectos básicos de sistemas láser y emisión láser aleatoria, además se exponen los principios de la técnica fototérmica como técnica de detección de procesos no radiativos. En el capítulo 2 se presentan los detalles del arreglo experimental, la preparación de las muestras con partículas esparsoras, así como la caracterización del medio activo usado. En el capítulo 3 se muestran los resultados de la emisión láser aleatoria obtenida en los experimentos en función de las variables estudiadas. Finalmente, el capítulo 4 contiene las conclusiones que se derivan del análisis de los capítulos anteriores y se comenta sobre el trabajo a futuro en esta línea de investigación tanto en aplicaciones como en ciencia básica.

CAPÍTULO 1

ANTECEDENTES

1.1. CONCEPTOS BÁSICOS DE LÁSERES

1.1.1. Absorción y emisión en medios activos

La radiación electromagnética y la materia interactúan debido a que esta está formada por partículas cargadas eléctricamente. Cuando la luz entra en contacto con la materia, puede ocurrir que los electrones de los orbitales más superficiales accedan a estados de mayor energía. Esta condición se logra si la energía del fotón iguala a la diferencia de energías entre los estados de los electrones. Los estados de energía de la materia están regidos por las leyes de la mecánica cuántica, y aunque no es fácil determinar los estados de energía de los electrones, las aproximaciones usadas han mostrado ser muy útiles para describir estas interacciones. Las transiciones electrónicas pueden generarse también por efectos térmicos, descargas eléctricas o reacciones químicas. En general, la interacción de una fuente luminosa externa con la materia a través de transiciones electrónicas se le conoce como absorción luminosa.

Una vez que los electrones pasan a un estado de energía mayor, permanecen en ese estado un tiempo τ antes de decaer al estado original. El tiempo τ de decaimiento entre dos estados de energía se conoce como tiempo de vida, y es característico de cada material ya que depende de su estructura atómica. El sistema puede entregar la energía absorbida de forma radiativa o de forma no radiativa. Cuando el decaimiento es radiativo, se emiten fotones con una energía igual a la diferencia de energías entre estados electrónicos. Por otro lado, cuando el decaimiento es no radiativo, la energía se transfiere a la estructura atómica por medio de vibraciones cuantizadas llamadas fonones. En la figura 1.1 se muestran diagramas ilustrativos de niveles de energía en los que existe a) decaimiento radiativo y b) decaimiento no radiativo.

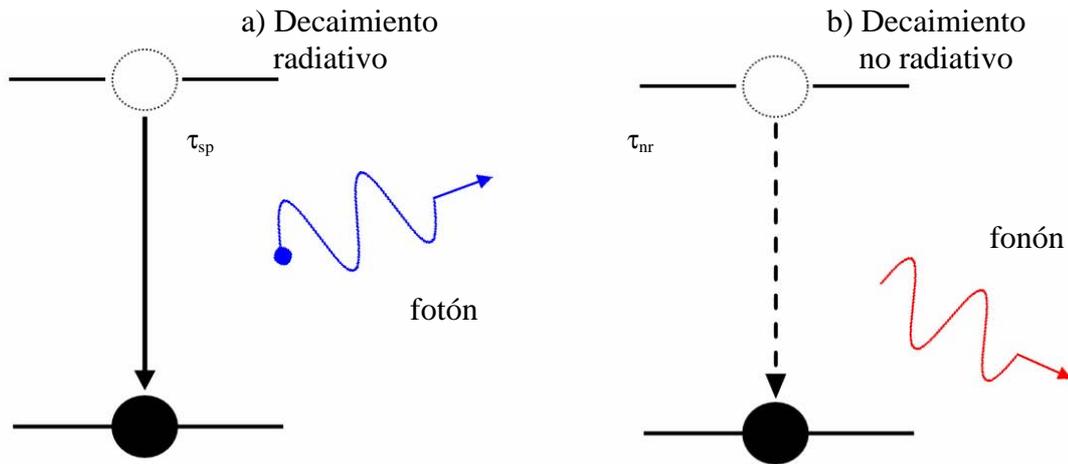


Figura 1.1 a) Decaimiento radiativo, se emite un fotón de energía igual a la diferencia de energía entre niveles. b) Decaimiento no radiativo, la energía es entregada a través de vibraciones cuantizadas llamadas fonones. La línea punteada indica el decaimiento no radiativo

El conjunto de fonones se manifiesta macroscópicamente como perturbaciones de presión. En secciones posteriores se describe con más detalle a estos decaimientos no radiativos además de sus implicaciones en los sistemas láser. Los tiempos de vida para los decaimientos radiativos son diferentes a los tiempos de vida de los decaimientos no radiativos, pero para un par de niveles de energía se cumple que:

$$\tau^{-1} = \tau_{sp}^{-1} + \tau_{nr}^{-1} \quad 1.1$$

Donde τ es el tiempo de vida total de la transición, τ_{sp} es el tiempo de vida de los decaimientos radiativos y τ_{nr} es el tiempo de vida para los decaimientos no radiativos [1]. En la ecuación 1.1 se analizan por facilidad los inversos de los tiempos de vida; de esta forma, las contribuciones radiativas y no radiativas se suman como los inversos de sus tiempos de vida. Más adelante se observará la utilidad de esta representación.

La proporción de electrones que decaen radiativa y no radiativamente después de la absorción es también una característica del material. Aquellos materiales que tienen una proporción alta de decaimientos radiativos se les conoce como medios activos y son un elemento fundamental en los sistemas láser. Por el contrario, los materiales pasivos absorbentes entregan la energía absorbida por medio de decaimientos no radiativos.

Los decaimientos radiativos pueden presentarse como emisión espontánea o emisión estimulada. La emisión espontánea ocurre cuando los electrones en estados

excitados decaen después de un tiempo característico τ . Los fotones generados por emisión espontánea poseen direcciones de propagación y fases aleatorias. Por otra parte, la emisión estimulada ocurre cuando un fotón interactúa con un electrón en estado excitado y se promueve así el decaimiento radiativo. El segundo fotón se propaga en la misma dirección que el primer fotón y con la misma fase. La absorción y los dos procesos de emisión se ilustran con diagramas de energía hipotéticos en la figura 1.2.

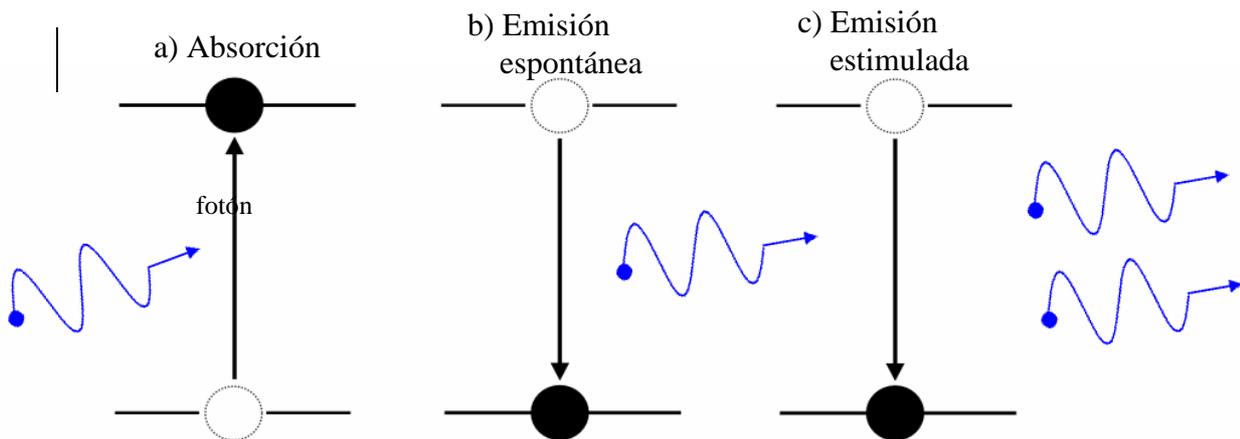


Figura 1.2. Procesos de absorción y emisión en medios activos. a) Absorción: el electrón es promovido a un nivel energético mayor. b) Emisión espontánea: el electrón decae a su estado inicial y genera un fotón en dirección y fase aleatoria. c) Emisión espontánea: un fotón incide sobre un electrón excitado y promueve el decaimiento radiativo, ambos fotones tienen la misma dirección y fase.

La reacción en cadena del proceso de emisión estimulada da como resultado un haz de luz coherente. Cuando los procesos de emisión estimulada se generan dentro de una cavidad óptica los fotones emitidos son amplificados en una dirección preferencial. Esto permite que el haz de salida sea coherente y colimado. Los sistemas láser se basan en los procesos de absorción, emisión espontánea y emisión estimulada descritos anteriormente.

1.1.2. Elementos fundamentales

Los sistemas láser pueden describirse como amplificadores ópticos con realimentación positiva. Para que la amplificación exista se requiere de un medio activo y una fuente de energía externa que proporcione las transiciones electrónicas necesarias

en el medio activo. A la fuente de energía externa se le conoce como fuente de bombeo. Finalmente, la realimentación positiva se logra al permitir que la emisión interactúe cíclicamente con el medio activo. Usualmente se usan resonadores ópticos para brindar realimentación al sistema láser. En general, un sistema láser está compuesto por un medio activo, una fuente de bombeo y un resonador o cavidad óptica.

Los medios activos usados en sistemas láser pueden ser cristales como el rubí, o bien mezclas de gases como en los láseres de Helio-Neón, o incluso tintes orgánicos disueltos en líquidos como la Rodamina 6G. Las características de absorción y emisión de cada medio activo varían dependiendo de su estructura molecular. De esta forma el bombeo adecuado para cada medio activo queda determinado por sus características de absorción óptica o bien por su excitación térmica o eléctrica. Sin una fuente de energía, es decir en estado de equilibrio, el número de electrones en estados excitados dentro del medio activo tiende a cero. La energía de bombeo suministra al sistema el desequilibrio necesario para que la ocupación en niveles elevados sea distinta de cero. A esto se le conoce como inversión de población. La inversión de población provee las bases para la acción láser. El análisis de la razón de cambio de la cantidad de electrones en los niveles energéticos del sistema se realiza por medio de un diagrama de niveles, como se muestra en la figura 1.3.

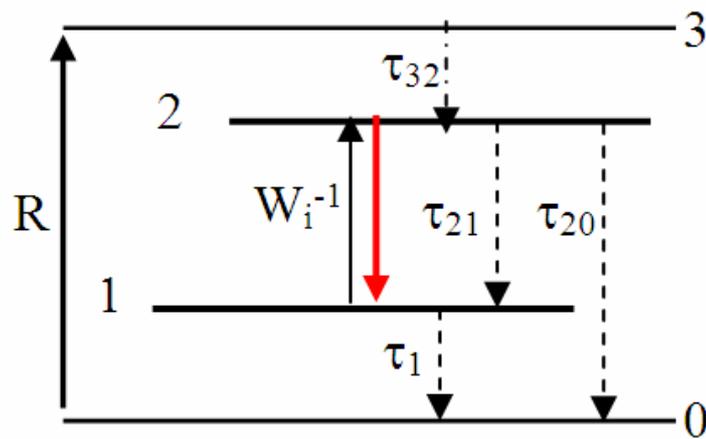


Figura 1.3. Diagrama de cuatro niveles marcados como 0,1,2 y 3. La línea en rojo representa los decaimientos radiativos entre el nivel 2 y el nivel 1, esta transición genera la emisión láser del sistema. Las líneas punteadas representan efectos no radiativos.

La figura 1.3 muestra un diagrama de 4 niveles para un sistema hipotético. El bombeo está representado por la razón R de electrones promovidos al nivel 3 por unidad

de tiempo por unidad de volumen. Esta razón se supone igual a la razón de electrones que dejan el nivel 0 debido al bombeo. En la figura 1 se representan los tiempos de vida para los decaimientos entre los niveles 3-2 (τ_{32}), 2-1 (τ_{21}), 2-0 (τ_{20}) y 1-0 (τ_1). Si existe radiación coincidente con la transición 2-1 se presentan procesos de emisión estimulada y absorción que están representados por la densidad de probabilidad W_i . En la figura 1.3 se muestra con rojo la transición 2-1, que produce los fotones de la emisión estimulada con probabilidad W_i . Para muchos sistemas de cuatro niveles, el tiempo τ_{32} es muy corto y la razón R es la misma para poblar el nivel 2, por lo que las ecuaciones de razón de cambio en la población electrónica son [1]:

$$\frac{dN_2}{dt} = R - \frac{N_2}{\tau_2} - N_2W_i + N_1W_i \quad 1.2$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -R - \frac{N_1}{\tau_1} + \frac{N_2}{\tau_{21}} + N_2W_i - N_1W_i \quad 1.3$$

Donde:

N_2 : es el número de electrones por unidad de volumen en el nivel 2.

N_1 : es el número de electrones por unidad de volumen en el nivel 1.

La diferencia de población entre los niveles 2 y 1 en estado estacionario se puede encontrar considerando a los tiempos de los procesos no radiativos como despreciables, y se puede entonces suponer que $\tau_2 = \tau_{sp} = \tau_{21}$; asimismo, se puede considerar que las poblaciones en los niveles 1 y 3 tienen tiempos de vida de corta duración, esto es: $\tau_1 \ll \tau_{sp}$, $\tau_3 \ll \tau_{sp}$. Con estas simplificaciones se puede obtener:

$$N_2 - N_1 = N = \frac{N_0}{1 + \tau_s W_i} \quad 1.4$$

Con:

$$N_0 = \frac{\tau_{sp} N_d W}{1 + \tau_{sp} W_i}$$

$$\tau_s = \frac{\tau_{sp}}{1 + \tau_{sp} W}$$

Aquí, W es la densidad de probabilidad asociada a las transiciones del nivel 0 al nivel 3 debido al bombeo, y N_a es la densidad atómica total del sistema (número de átomos por unidad de volumen). Esto implica que para obtener diferencias de población grandes se requiere una gran cantidad de energía de bombeo. Además, el tiempo de vida del nivel 2 debe ser largo y los tiempos de vida para los niveles 3 y 1 deben de ser cortos.

La emisión láser se origina a partir de la acción de una fuente de energía externa en un medio activo con realimentación coherente. Sin esta realimentación la emisión del medio activo tiene un ancho espectral amplio y carece de coherencia espacial y temporal. A excepción de los láseres aleatorios, la mayoría de los sistemas láser hacen uso de resonadores ópticos para realimentar de forma coherente la emisión proveniente del medio activo. Un resonador óptico almacena energía y proporciona la realimentación requerida para el funcionamiento de un sistema láser. El resonador más sencillo es el de Fabry-Perot, formado por dos espejos paralelos separados por una distancia conocida. En su forma más simple, un sistema láser consta de un medio activo y dos espejos paralelos altamente reflectivos para la longitud de onda de la emisión estimulada, y con baja reflectividad para la longitud de onda del bombeo. Esta configuración se muestra esquemáticamente en la figura 1.4.

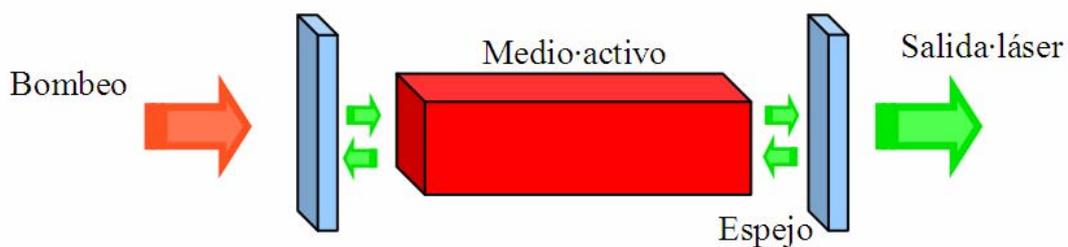


Figura 1.4. Representación de un sistema láser. El bombeo pasa por uno de los espejos e interactúa con el medio activo, la emisión del medio activo se refleja en los espejos fomentando la emisión estimulada. El haz de salida es espectralmente angosto, con alta coherencia y cuasicolimado.

En el resonador Fabry-Perot, el bombeo entra por uno de los espejos parcialmente reflectivos generando emisión estimulada dentro del medio activo. Esta

emisión estimulada es reflejada por los espejos permitiendo mayor interacción con el medio activo. Las reflexiones dentro del medio activo permiten la interferencia constructiva para ciertas frecuencias determinadas por los modos de oscilación del resonador. Estos modos de oscilación pueden obtenerse a partir de la función de onda de una onda monocromática con frecuencia ν [11]:

$$u(\mathbf{r},t) = \text{Re}\{U(\mathbf{r})\text{Exp}(j2\pi\nu t)\} \quad 1.5$$

Aquí, $u(\mathbf{r},t)$ representa la componente transversal del campo eléctrico, y se obtiene considerando únicamente la parte real de la representación compleja de la onda [1]. La amplitud compleja $U(\mathbf{r})$ satisface la ecuación de Helmholtz:

$$\nabla^2 U(\mathbf{r}) + k^2 U(\mathbf{r}) = 0 \quad 1.6$$

$$k = \frac{2\pi\nu}{c} \quad 1.7$$

Los modos del resonador son las soluciones básicas que satisfacen la ecuación 1.6 para las condiciones de frontera adecuadas. Para un resonador de espejos planos paralelos, debe cumplirse que el campo eléctrico en la superficie de los espejos es cero (esto es, $U(\mathbf{r})=0$ para $z=0=d$). Con estas condiciones las soluciones tienen la forma:

$$U(\mathbf{r}) = A \sin(kz) \quad 1.8$$

con $A=\text{constante}$. Para satisfacer las condiciones de frontera 1.6, la función $U(\mathbf{r})$ debe restringirse a valores discretos de k , esto es:

$$kd = q\pi \quad 1.9$$

Esto indica también que las frecuencias del resonador son discretas y están dadas por:

$$f = \frac{mc}{2nL} \quad 1.10$$

donde:

f : frecuencia de resonancia

c : velocidad de la luz

L : longitud de la cavidad

m : número entero positivo.

Las frecuencias de resonancia del resonador son múltiplos enteros de medias longitudes de onda a partir de la longitud de la cavidad. Sólo aquellas frecuencias que cumplen lo anterior podrán resonar y generar emisión estimulada dentro del medio activo. Estas frecuencias se conocen como modos longitudinales del resonador. En cualquier resonador se presentan pérdidas debidas a esparcimiento, reabsorción del medio activo, efectos no radiativos y a la transmitividad de los espejos. Estas pérdidas dan como resultado que energías de bombeo bajas no generen oscilación láser. En otras palabras, debido a las pérdidas en el resonador existe una energía de bombeo umbral para la cual se superan las pérdidas y la emisión láser comienza. Lo anterior clasifica a los sistemas láser como sistemas de umbral. La emisión a la salida del sistema láser contiene los modos longitudinales que están dentro del espectro de emisión del medio activo y que superan las pérdidas dentro del resonador. En general, la luz láser es espectralmente angosta, tiene alta coherencia, posee alta densidad de energía y su haz es cuasicolimado.

1.1.3. Láseres de tinte

En un láser de tinte, el medio activo está constituido por uno o varios colorantes orgánicos disueltos en algún solvente, comúnmente en fase líquida, el cual es excitado a través de alguna fuente externa para mantenerlo operando ya sea en modo continuo (CW) o en modo pulsado. La compleja estructura molecular de estos colorantes, la gran cantidad de átomos que los constituyen, así como sus propiedades fisicoquímicas, dificultan la tarea de construir un modelo semiclásico general para explicar el funcionamiento de estos sistemas láser. De manera general se considera que los tintes poseen una estructura compleja de niveles electrónicos que a su vez permite desarrollar láseres sintonizables [12].

En la figura 1.5 se muestra una configuración típica para un láser de tinte. La celda de prueba se usa para alojar el tinte orgánico mientras que es iluminado por el haz de bombeo. La configuración muestra un espejo de salida y una rejilla de difracción a los lados de la celda de prueba formando un resonador óptico. La rejilla de difracción permite la sintonía del láser y es colocada de modo que pueda girar sobre sí misma sin

desalinearse la cavidad óptica.

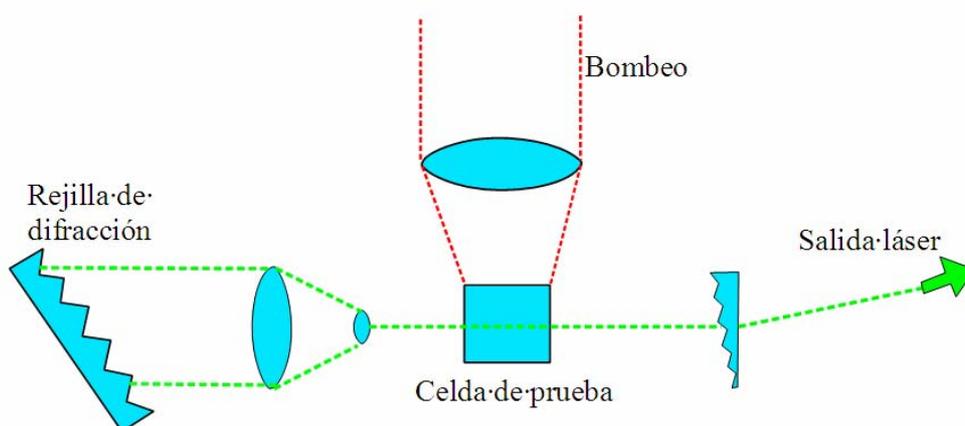


Figura 1.5. Configuración para un láser de tinte. En la celda de prueba se coloca el tinte que es usado como medio activo del láser. La rejilla de difracción puede rotar sobre su propio eje y permite la sintonía dentro del ancho de línea de emisión.

Típicamente, los láseres de tinte se comportan como sistemas de 4 niveles, por lo que las expresiones de la sección 1.1.2 aplican para estos láseres. Una de las grandes ventajas que ofrecen los láseres de tinte es su sintonía con respecto a la concentración de tinte usado en el solvente. Esto se debe a que cada molécula de tinte puede encontrarse en distintos estados vibro-rotacionales, con lo que los niveles energéticos se convierten en una banda de estados cuasi continuos. El ancho medio espectral de ganancia para los tintes orgánicos se encuentra entre los 40 y 60 nm. Entre los tintes usados en láseres de tinte se encuentran los que emiten en el infrarrojo (polimetinas), en el rojo y cercano infrarrojo (xentenos) y en la banda de azul-verde (coumarinas) [1].

1.2. LÁSERES ALEATORIOS

En los láseres convencionales, la cavidad óptica que confina a los fotones determina las características esenciales de la emisión láser como longitud de onda, patrón de emisión, unidireccionalidad y estado depolarización. En los láseres aleatorios, que no poseen espejos o cavidad bien definida, la luz es confinada dentro del medio activo por medio de efectos de esparcimiento ("scattering") múltiple.

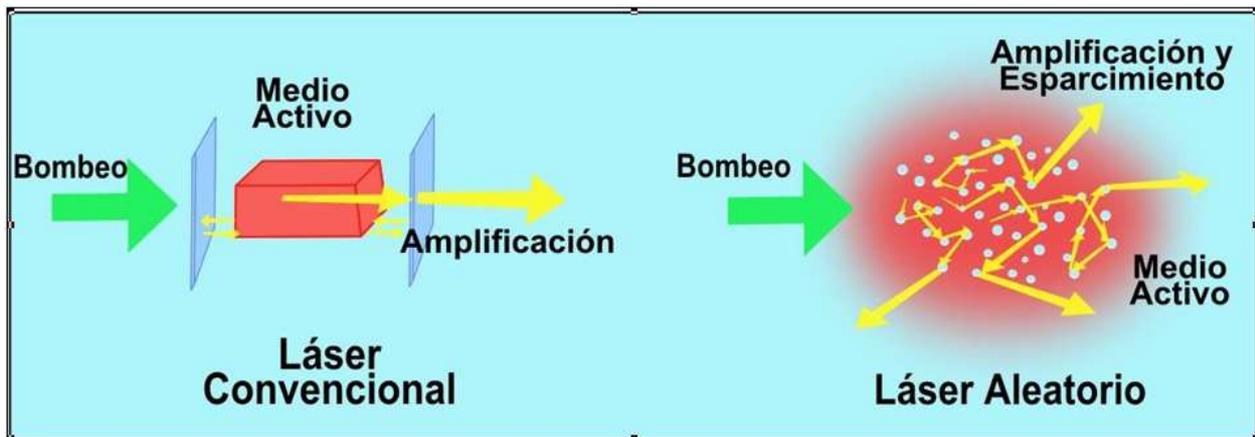


Figura 1.6. Esquema de láser convencional y láser aleatorio. En un láser aleatorio la función de los espejos es reemplazada por el esparcimiento desordenado.

Los estudios teóricos de acción láser en medios desordenados tienen sus inicios en los primeros años de la física de láseres. Pero fue hasta 1999 que se reportaron líneas láser angostas en polvos semiconductores. A partir de los trabajos de H. Cao y Y.G. Zhao [6] se ha logrado emisión láser aleatoria en una gran variedad de materiales desde cristales líquidos [7] hasta tejido biológico [10]. En la literatura se pueden encontrar reportes sobre láseres aleatorios utilizando distintos medios activos como tintes orgánicos, películas delgadas electroluminiscentes [9] y puntos cuánticos [14]. Se ha estudiado además la relación que guardan los láseres aleatorios con variables como temperatura [15], tensión mecánica [3] y otros haces de luz láser [7]. A pesar de la gran cantidad de reportes de emisión láser aleatoria, los mecanismos que permiten la realimentación coherente se encuentran aún en discusión.

Se ha mostrado que las observaciones experimentales de láseres aleatorios no cumplen las condiciones de fuerte esparcimiento múltiple que permitiría pensar en localización fotónica [16]. Esta localización fotónica sería análoga al régimen de localización de Anderson, que es el confinamiento de electrones debido a esparcimiento extremadamente fuerte. Por otro lado, plantear el estudio de los sistemas desordenados con ganancia como un problema basado en la ecuación de difusión asume que la luz esparcida por una partícula es independiente de aquella luz esparcida por todas las partículas del sistema, es decir, asume que no existe interferencia coherente [17]. Esta simplificación pierde validez para concentraciones de partículas saturadas, en las que la separación media entre los centros de esparcimiento es del mismo orden de magnitud

que el tamaño de las partículas esparzoras. En otros trabajos de emisión láser aleatoria se han estudiado concentraciones saturadas [18]. Como se detalla en secciones posteriores, el presente trabajo incluye concentraciones saturadas semejantes a las reportadas en la referencia [18]. Hasta ahora, la descripción más general de este problema ha sido la resolución de las ecuaciones de razón de cambio para un sistema de cuatro niveles acopladas a las ecuaciones de Maxwell de la siguiente manera [13, 16]:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad 1.11$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = -\varepsilon(\mathbf{r}) \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad 1.12$$

Donde $\mathbf{B} = \mu \mathbf{H}$ y \mathbf{P} es la densidad electrónica de polarización y representa la emisión en el sistema. La constante dieléctrica $\varepsilon(\mathbf{r})$ modela el medio esparzor, y en general es una variable aleatoria espacial que depende de las condiciones de los centros de esparcimiento.

Por otro lado, se puede demostrar [19] que para el caso de un sólo electrón, la densidad de polarización $\mathbf{P}(x,t)$ en presencia de un campo eléctrico cumple la siguiente ecuación de movimiento:

$$\frac{d^2 P(t)}{dt^2} + \Delta \omega_a \frac{dP(t)}{dt} + \omega_a^2 P(t) = \frac{\gamma_r e^2}{\gamma_c m} \Delta N(t) E(t) \quad 1.13$$

Donde:

$$\Delta \omega_a = \frac{1}{\tau_{21}} + \frac{2}{T_2} \text{ es el ancho medio espectral de la transición atómica. } T_2 \text{ es el}$$

tiempo promedio entre eventos, $\Delta N(x,t) = N_1(x,t) - N_2(x,t)$, $\gamma_r = \frac{1}{\tau_{21}}$ es la razón real

de decaimientos del segundo nivel y $\gamma_c = \frac{e^2 \omega_a^2}{6\pi m \varepsilon_0 c^3}$ es la razón clásica de decaimientos

para el mismo nivel.

La ecuación 1.13 asocia la dependencia temporal de la densidad de polarización con el campo eléctrico, la diferencia de población de la transición láser y los parámetros del medio activo. En la referencia [19] se muestra que la dependencia temporal de la

ecuación 1.13 genera ensanchamiento homogéneo. Esta descripción de la densidad de polarización modela la ganancia del sistema a través de la radiación y absorción entre los niveles 2-1 [20]. Por lo tanto, las ecuaciones de población para cada nivel pueden ser expresadas en términos de la derivada con respecto al tiempo de la densidad de polarización como:

$$\frac{dN_3}{dt} = P_r N_0 - \frac{N_3}{\tau_{32}} \quad 1.14$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{N_3}{\tau_{32}} + \frac{E}{\hbar\omega_a} \frac{dP}{dt} - \frac{N_2}{\tau_{21}} \quad 1.15$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{N_2}{\tau_{21}} - \frac{E}{\hbar\omega_a} \frac{dP}{dt} - \frac{N_1}{\tau_{10}} \quad 1.16$$

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{N_1}{\tau_{10}} - P_r N_0 \quad 1.17$$

Los trabajos donde se analiza este modelo se encuentran en las referencias [16,19,20]. En estos trabajos se utilizan aproximaciones con métodos numéricos como el método de diferencias finitas en el dominio del tiempo (FDTD). Además, se comprueba teóricamente la existencia de un umbral de energía bajo para los láseres aleatorios. Para Jiang y Soukoulis [19] la fuerza de esparcimiento, que es un parámetro que depende de concentración de esparsores, el índice de refracción y la geometría de los esparsores, determina si existen modos expandidos o modos localizados en el medio activo.

Para concentraciones pequeñas, existe un modo expandido dominante en el sistema. La distribución espacial de estos modos expandidos es comparable a las dimensiones del sistema y en estos modos se presentan casi la totalidad de las emisiones estimuladas. Por otro lado, Jiang y Soukoulis encuentran un régimen diferente para fuerza de esparcimiento grandes. Un número mayor de modos se observa en estos sistemas cuando aumenta la energía de bombeo. Existe también en estos casos un número máximo de modos por unidad de volumen, es decir, saturación modal. Además, los modos en estas condiciones presentan una mayor localización y una longitud de onda distinta para cada modo. Finalmente, la distribución espacial de los modos y la longitud de onda de emisión dependen primordialmente del arreglo aleatorio del medio

esparisor.

En la referencia [16] se incluye un análisis del esparcimiento debido solo al medio esparisor sin la presencia de medio activo. Según el trabajo de Andreasen et. al [16]., el medio aleatorio por si sólo tiene la capacidad de generar modos debido a todos los procesos de interferencia y esparcimiento dentro del medio aleatorio. El modelo del medio esparisor consiste en un arreglo de dos dimensiones con partículas en posiciones aleatorias. Las dimensiones de las partículas así como su posición permanecen constantes, mientras que el índice de refracción se varia para obtener distintas fuerzas de esparcimiento. Al igual que la referencia [19], Andreasen et al encuentran modos localizados para esparcimiento fuerte y modos extendidos para esparcimiento débil.

Sin embargo, el análisis del medio esparisor permite observar que la ubicación espacial de los modos con y sin medio activo es prácticamente la misma cuando existe esparcimiento fuerte. Otra característica que presenta cambios al variar el índice de refracción de las partículas esparisoras es la longitud de onda de emisión. Los reportes de Andreasen *et al* muestran un cambio de longitud de onda de emisión de $\Delta\lambda \approx 10$ nm para cambios en el índice de refracción de las partículas de 1.25 a 2.0 [13]. Como se muestra en secciones posteriores de este trabajo, el cambio en longitud de onda de emisión se logra también al variar la concentración de los centros de esparcimiento del medio aleatorio o bien al modificar el tamaño medio de las partículas esparisoras.

En conclusión se puede decir que la estructura del medio esparisor, es decir, el tamaño, geometría y composición de las partículas, así como su concentración están estrechamente ligadas a las características espectrales de los láseres aleatorios. Esto resulta de gran importancia en aplicaciones donde se busca encontrar parámetros de una estructura desordenada. Por lo anterior, los láseres aleatorios tienen el potencial de ser usados en la caracterización de materiales y el diagnóstico de tejido biológico. Muestra de esto es el trabajo de Polson y Vardeny [10, 13], quienes comparan emisiones láser aleatorias para distintos tejidos biológicos. Las muestras de tejido de prueba (colon humano) son elegidas con el propósito de comparar la emisión de tejido sano con la emisión de tejido con cáncer. El análisis espectral de ambas emisiones permite realizar

un mapa sobre el tejido que permite determinar a su vez regiones sanas o regiones dañadas.

Los láseres aleatorios que utilizan tejidos como medios de esparcimiento típicamente son preparados en una solución de Rodamina 6G, que es usada como medio activo para el sistema. Posteriormente, las muestras son iluminadas con un láser pulsado de bombeo con una longitud de onda de 532 nm. La emisión espectral es recolectada y analizada bajo la transformada de potencia de Fourier. La figura 1.7 muestra imágenes tomadas con un microscopio óptico para ambos tipos de tejidos analizados. En las imágenes de la figura se aprecian ordenamientos tisulares distintos para cada una de las muestras.

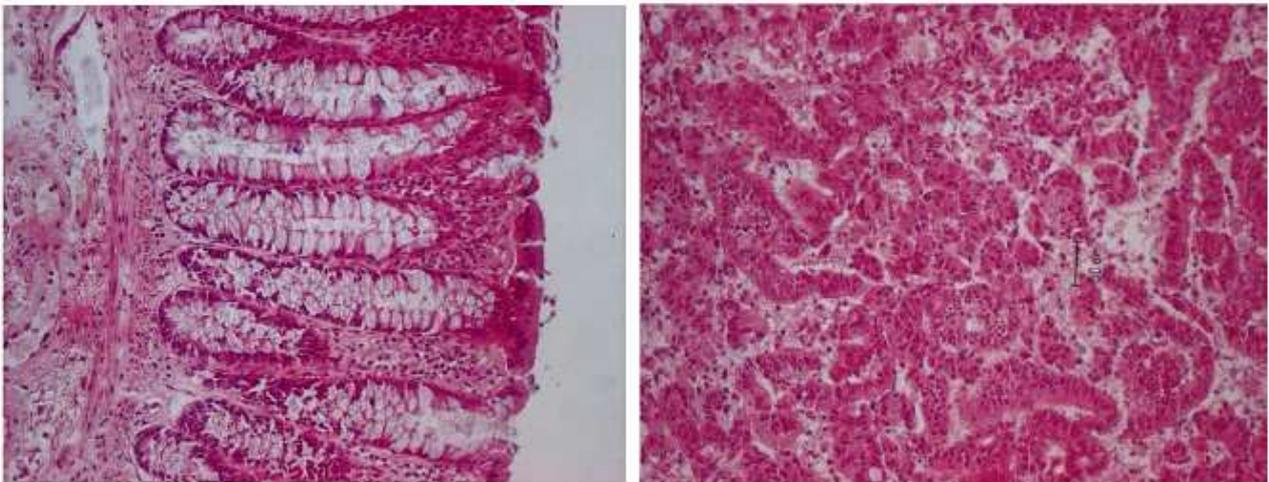


Figura 1.7. Imágenes de tejidos usados en la referencia [3]. Izquierda: tejido de colon sano. Derecha: tejido de colon enfermo.

Los resultados muestran que tanto para la emisión espectral como para la transformada de potencia de Fourier, las muestras presentan un comportamiento distinto. La figura 1.8 muestra la emisión espectral y la transformada de potencia de Fourier para los casos de tejido sano y tejido enfermo. Como lo muestra la figura, tanto el espectro de emisión así como la transformada de potencia de Fourier de los tejidos sanos presentan diferencias apreciables en comparación a los tejidos enfermos.

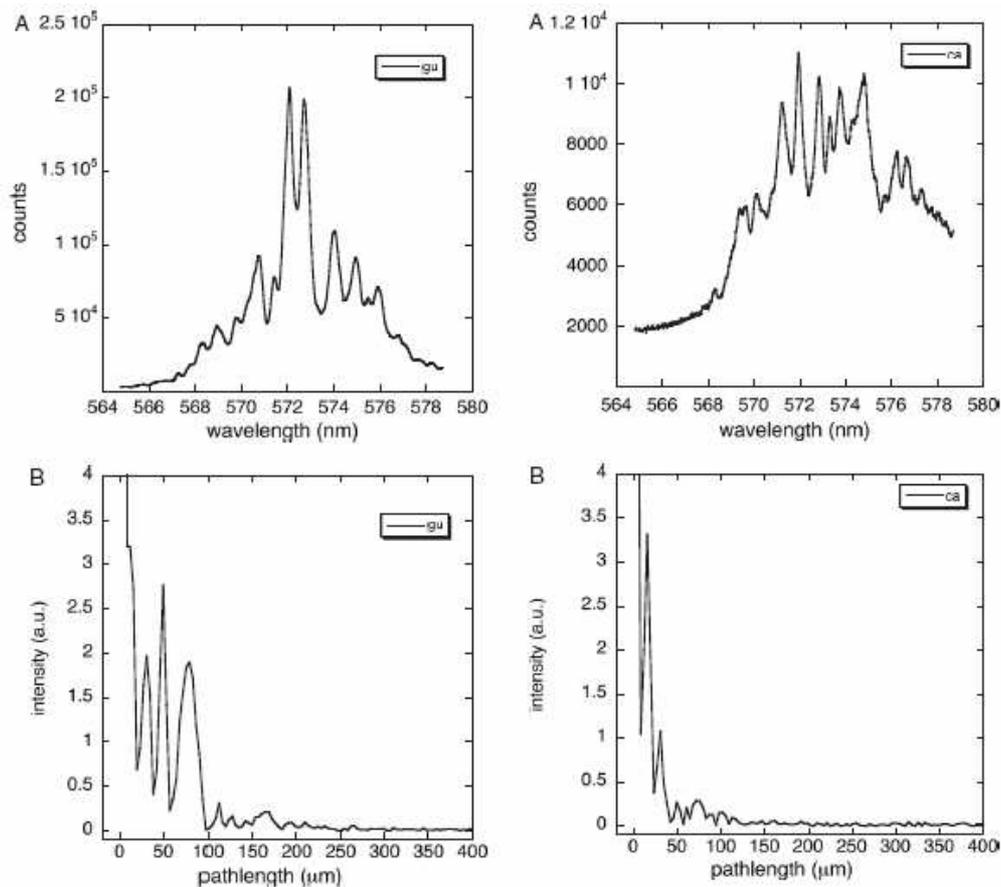


Figura 1.8. Emisión espectral (arriba) y transformada de potencia de Fourier(abajo) para tejido sano (izquierda) y tejido enfermo (derecha). Las gráficas fueron reportadas en la referencia [10].

Las características del tejido que permiten distinguir entre la emisión láser aleatoria de las muestras se encuentra aún en estudio. Algunas de las variables involucradas son el ordenamiento interno de las células, que funcionan como centros de esparcimiento en el tejido, así como la geometría y el cambio en índice de refracción de las células enfermas. En general, las aplicaciones relacionadas con los láseres aleatorios abarcan todas aquellas donde esté presente una estructura desordenada capaz de esparcir un haz de luz. Es por esto que los trabajos reportados sobre láseres aleatorios van cada día en aumento. Además, el efecto de láser aleatorio puede presentarse en una diversidad de formas, en distintas fases de agregación, con diferentes energías de bombeo y generarse a microescala.

1.3. EFECTO FOTOTÉRMICO

Cuando la materia absorbe energía de un haz de luz a través de transiciones electrónicas, los electrones pueden decaer a estados más bajos de forma radiativa o no radiativa. Tanto la fluorescencia como la fosforescencia están asociadas a decaimientos radiativos, mientras que los decaimientos no radiativos entregan la energía al medio en forma de fonones. Estos fonones son vibraciones cuantizadas en la estructura del medio donde se generan.

El fenómeno colectivo de fonones da lugar a perturbaciones locales de presión en el volumen de interacción luz-materia. A su vez, las perturbaciones de presión generan gradientes de temperatura que se transmiten a través del medio. A los cambios en presión y temperatura producidos por una fuente de luz debido a decaimientos no radiativos se le conoce como efecto fototérmico [21].

Los efectos fototérmicos fueron mostrados por primera vez por Alexander Graham Bell en 1880. La fuente de energía usada fue el sol que incidía en un volumen cerrado de gas. Un tono musical puro fue escuchado a través de un diafragma de membrana. A pesar de ser mostrado desde el siglo antepasado, el interés por el efecto fototérmico decayó por no poseer fuentes de excitación adecuadas ni medios de detección apropiados [22]. Fue hasta la evolución de la tecnología láser que la combinación de láseres pulsados como fuente de excitación y materiales piezoeléctricos como detectores brindó los elementos para estudios más profundos en el efecto fototérmico.

Entre las ventajas del análisis fototérmico sobre otras técnicas se tiene que permite estudiar procesos radiativos que son difíciles de analizar por métodos ópticos, como es el caso de aquellos que se traslapan espectralmente con la fuente de excitación. Asimismo, este tipo de análisis permite estudiar medios que tienen un coeficiente de absorción muy bajo o que por el contrario, son altamente absorbentes, dispersivos u opacos. Además, permite obtener información de procesos cinéticos y termodinámicos que ocurren durante la interacción. Otra ventaja es que la señal de excitación y la onda

térmica detectada son de naturaleza diferente, así que la relación señal a ruido es muy alta y en consecuencia su eficiencia de detección es también alta [23].

Algunos mecanismos de generación de señales foto térmicas son la electrostricción, la expansión térmica, cambios fotoquímicos, cambios de fase y la ruptura dieléctrica. Para todos los casos mencionados es posible, con un medio de detección adecuado, obtener señales fototérmicas vinculadas a la absorción de un haz de luz en el medio. Existen varios modelos para la generación de señales fototérmicas. En particular, se puede tomar en cuenta la electrostricción y la expansión térmica como mecanismos dominantes en la formación de gradiente de presión. Uno de estos modelos es el desarrollado por Lai y Young [22] para generación de ondas fototérmicas debidas a una fuente cilíndrica. En este modelo se describe a la intensidad del pulso láser con una función Gaussiana y la presión de la onda fototérmica $P_{pt}(r,t)$ en términos de funciones de Bessel, esto es:

$$P_{pt}(r,t) = W \tau_e^{-3/2} \frac{d\Phi_0(\xi)}{d\xi} \quad 1.18$$

Con:

$$W = \frac{\alpha\beta E}{8\pi^{1/2} C_p} \left(\frac{v}{r}\right)^{1/2} \quad 1.19$$

$$\tau_e = \left[\tau_p^2 + \left(\frac{r}{v}\right)^2 \right]^{1/2} \quad 1.20$$

$$\Phi_0(\xi) = |\xi|^{1/2} e^{-\xi^2/4} \left[\frac{\sqrt{2}}{\pi} K_{1/4} \left(\frac{\xi^2}{4}\right) + 2\Theta(\xi) I_{1/4} \left(\frac{\xi^2}{4}\right) \right] \quad 1.21$$

$$\xi = \frac{(t - r/v)}{\tau_e} = \frac{t'}{\tau_e} \quad 1.22$$

Aquí, W determina la amplitud del pulso térmico; τ_e es un factor de escala temporal que define el ancho y la amplitud del pulso; E es la energía del pulso láser; α es el coeficiente de absorción; β es el coeficiente de expansión volumétrica del medio; C_p es el calor específico a presión constante; v es la velocidad del sonido en el medio; r es la distancia al punto de observación; τ_p es una medida de la duración del pulso láser,

ξ es un tiempo de retardo normalizado; $K_{1/4}$ e $I_{1/4}$ son funciones de Bessel de argumento imaginario y Θ es la función escalón unitario.

De las ecuaciones 1.18-1.22, se puede concluir que la intensidad de la señal fototérmica que se genera en un medio líquido depende directamente del pulso de excitación en cuanto a su perfil temporal y su perfil espacial. Además, de las mismas ecuaciones se observa que una fuente con el haz expandido produce una señal fototérmica mas débil respecto de cuando el haz es enfocado, siempre que las condiciones generales se mantengas iguales. En resumen, en las ondas generadas la amplitud y la forma dependen de: la energía absorbida, del coeficiente de expansión térmica, de la velocidad del sonido en el medio considerado, del calor específico a presión constante del mismo y del perfil espacial y temporal del haz de excitación.

En los capítulos siguientes se presentan diferentes arreglos experimentales diseñados para observar los efectos de la concentración y el tamaño de las partículas que conforman el medio esparsor en un láser aleatorio. Se utiliza también la técnica de detección fototérmica como complemento a los datos de la emisión espectral. El objetivo de incluir la técnica fototérmica es estudiar el comportamiento de los procesos no radiativos en los láseres aleatorios cuando la concentración y tamaño de los centros de esparcimiento cambian. En particular se analizan el ancho medio espectral (FWHM), la longitud de onda de emisión láser y la densidad espectral de energía de la emisión láser aleatoria.

CAPÍTULO 2

ARREGLO EXPERIMENTAL Y CARACTERIZACIÓN DE MUESTRAS

En los sistema láser, el esparcimiento es un efecto generalmente no deseado, ya que induce pérdidas y en consecuencia afecta el umbral y la eficiencia de la emisión láser de salida. Sin embargo, en los láseres aleatorios el esparcimiento genera la realimentación necesaria para obtener selectividad espectral. Estos novedosos sistemas láser no son más que la superposición de un medio activo y un medio esparcador desordenado. Además, las características espectrales y espaciales de la emisión láser aleatoria quedan determinadas por la forma en la que la luz es esparcida dentro del medio aleatorio. En general, el esparcimiento depende del tamaño, geometría y material de los centros esparcadores, además de su cantidad por unidad de volumen. De esta manera, es posible desarrollar arreglos experimentales para estudiar el comportamiento de láseres aleatorios cuando las condiciones de los centros de esparcimiento del medio aleatorio cambian. El objetivo de este trabajo es estudiar el comportamiento de láseres aleatorios basados en tinte cuando varían las características del medio esparcador. El estudio se basa en análisis de medidas ópticas y fototérmicas por lo que el arreglo experimental debe brindar información de los procesos fototérmicos que ocurren en los láseres aleatorios para contrastar la información de efectos radiativos y no radiativos.

El medio activo usado en los experimentos de este estudio fue Rodamina 6G (R6G). La caracterización del medio activo y del medio esparcador así como el arreglo experimental se detallan en este capítulo. Las variables de estudio y las técnicas de adquisición de señales también se describen de forma breve en esta sección.

2.1. DESCRIPCIÓN DEL ARREGLO EXPERIMENTAL

El arreglo experimental utilizado se muestra en la figura 2.1. El láser de bombeo es un láser pulsado Nd:YAG marca Brio, con segundo armónico a 532 nm. Los pulsos láser tienen un ancho temporal de entre 3 y 6 ns. La frecuencia del láser fue fijada a 10 Hz, mientras que la energía por pulso puede ser ajustada entre los 13 μ J hasta los 6 mJ. Frente al láser de bombeo se coloca un separador de haz, con lo que una parte de la energía de bombeo incide en un fotodiodo como lo muestra la figura 2.1. El fotodiodo está conectado al osciloscopio como lo muestra la figura para sincronizar la adquisición de datos. Después del separador de haz se coloca una lente cilíndrica para expandir el haz de bombeo y tener mayor volumen de interacción. Para alojar las muestras se utiliza una celda de prueba de cuarzo con dimensiones de $1\text{cm}\times 1\text{cm}\times 5\text{cm}$.

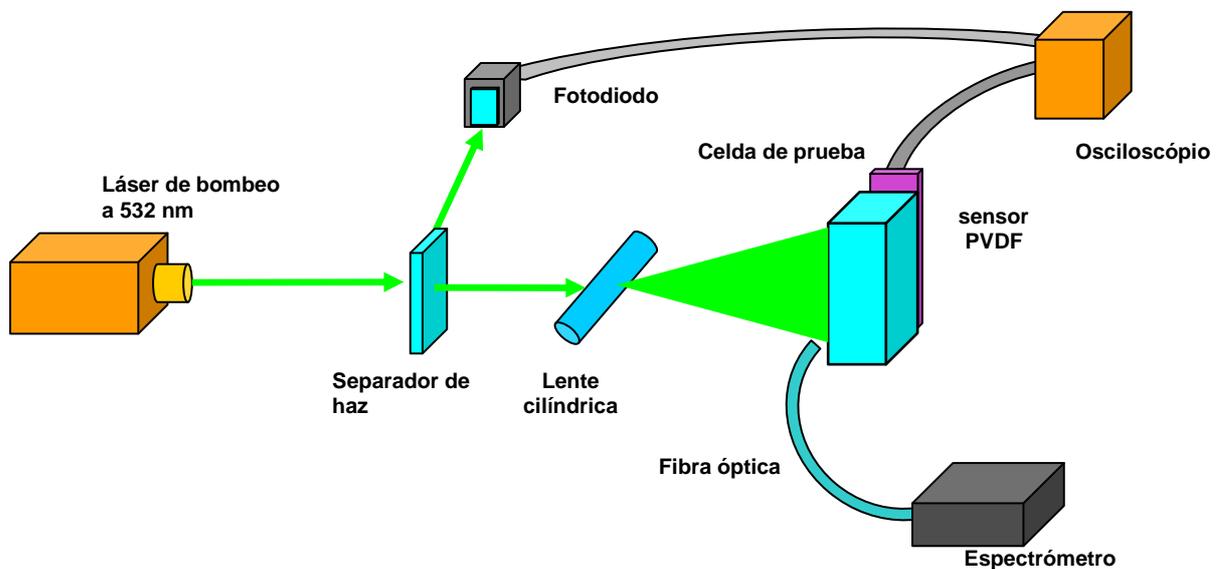


Figura 2.1. Arreglo experimental para estudiar láseres aleatorios basados en tinte.

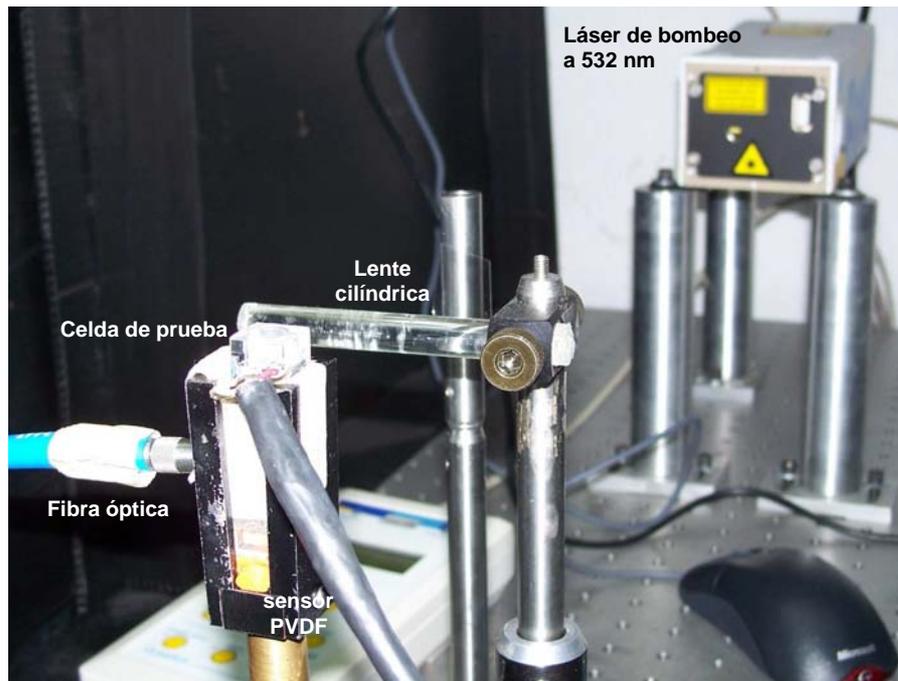


Figura 2.2. Fotografía del arreglo experimental para estudiar láseres aleatorios basados en tinte.

La figura 2.2 muestra una fotografía del arreglo experimental utilizado en este trabajo. En esta imagen se puede observar el láser de bombeo, la lente cilíndrica, la celda de prueba colocada en una montura metálica, ya fibra óptica y el sensor PVDF en una de las caras de la celda. El sensor fototérmico se coloca a un costado de la celda de prueba y consiste en una película de polivinilideno fluoruro (PVDF) con una carga resistiva de 50Ω . El PVDF es un material piroeléctrico, por lo que es sensible tanto a los cambios de presión como a la luz que incide en él [23].

El sensor fototérmico se conecta a osciloscopio para obtener la señal fototérmica de la muestra. El osciloscopio usado tiene un ancho de banda de 4 GHz (Tektronix, DPO 70000 series) con un muestreo de hasta 20 millones de muestras por segundo. Como se observa en la figura 2.1, se utiliza también una fibra óptica conectada a un espectrómetro de estado sólido (Ocean Optics HR4000) para capturar y analizar la emisión proveniente de las muestras.

2.1.1. Mediciones ópticas

En los experimentos realizados, el haz de luz que incide sobre la celda de prueba interactúa con la muestra antes de ser capturada por la fibra óptica. Cuando la muestra consiste en sólo un medio esparsor, la luz capturada por la fibra óptica es el resultado del esparcimiento del haz de bombeo en la muestra y su distribución espacial depende de las características de los centros de esparcimiento. Por otro lado, cuando la muestra incluye al medio activo, la luz capturada es el producto de la emisión del medio activo y su distribución espacial es en principio homogénea. En el caso de muestras con medio activo y medio esparsor, la luz que captura la fibra óptica es la generada por el efecto de láser aleatorio dentro de las muestras. Como se verá más adelante, esta emisión láser aleatoria se encuentra dentro del rango espectral de emisión del medio activo. Se ha mostrado en trabajos anteriores de láseres aleatorios que la distribución espacial de estos láseres puede contener una gran cantidad de modos localizados en áreas de unas cuantas micras [16]. Debido a que cada modo espacial tiene una longitud de onda específica, la luz capturada por la fibra contiene diversos modos espaciales con distintas longitudes de onda.

El espectrómetro tiene una resolución espectral aproximada de 0.2 nm. Para todos los experimentos el tiempo de integración fue fijado en 100 ms promediando 10 eventos en cada adquisición. A pesar de que las mediciones ópticas representan el promedio de todos los modos tanto en espacio, tiempo y longitud de onda de emisión, las diferencias de estos promedios entre láseres con medios esparsores distintos permite estudiar como se relaciona la emisión espectral con el medio esparsor.

2.1.2. Obtención de la señal fototérmica

Para registrar señales fototérmicas el osciloscopio se ajustó a una frecuencia de muestreo de 1.25 GS/s con un barrido de 4 μ s/div. La señal del osciloscopio se graba y posteriormente las señales se procesan por medios digitales. El procesamiento consiste en un filtro digital basado en la transformada rápida de Fourier. Las características óptimas del filtro para la obtención de la señal fototérmica se determinaron de forma experimental. Para todas las señales el filtro usado fue un filtro paso bandas con

frecuencias de corte de 1 MHz y 10 MHz respectivamente. La figura 2.3 muestra la señal fototérmica obtenida del osciloscopio y la señal después del filtrado.

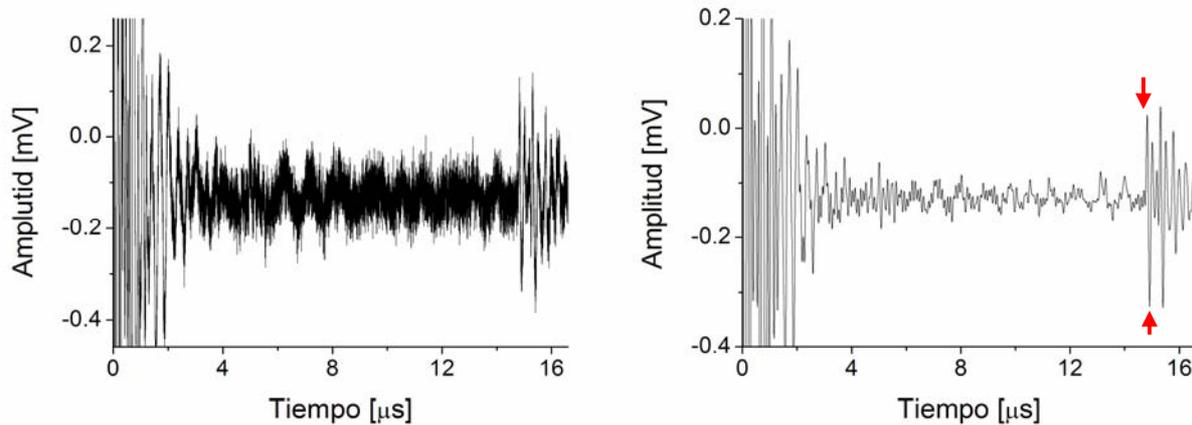


Figura 2.3. Izquierda: señal fototérmica típica obtenida del osciloscopio. Derecha: señal fototérmica filtrada. En la señal de la derecha se marcan con flechas los primeros picos con los que se realiza la medición fototérmica.

Con la señal filtrada se mide el primer pulso positivo y negativo de la señal, la diferencia entre ambos picos es proporcional a la absorción fototérmica de la muestra [21]. En las señales de la figura 2.3 se observan oscilaciones en los primeros instantes debido a la luz esparcida que llega directamente al sensor fototérmico. La señal fototérmica de interés se encuentra entre los 14 y 16 μs , que es el tiempo que tarda la onda térmica en recorrer la muestra y llegar al sensor fototérmico.

2.2. CARACTERIZACIÓN DEL MEDIO ESPARSOR Y DEL MEDIO ACTIVO

En esta sección se estudian las partículas esparsoras y el medio activo de manera independiente. El rango de concentraciones de las partículas esparsoras se elige de manera que sea semejante a las concentraciones reportadas en la literatura [18]. La caracterización de las partículas esparsoras consta del registro de luz esparcida por las partículas a una posición fija así como de la señal foto térmica que producen los pulsos

del láser de bombeo incidiendo sobre la muestra de medio esparsor. Por otro lado, la concentración de Rodamina 6G se elige en el rango reportado [24] para el cual la eficiencia del tinte es máxima. Además de exhibir una máxima fluorescencia, la concentración de R6G usada presenta una mínima señal foto térmica debido a que ambos procesos son complementarios. La caracterización de la R6G consiste en la obtención de la longitud de onda de emisión, la densidad de energía espectral y su ancho medio espectral (FWHM). El proposito de esta sección es obtener las características ópticas y fototérmicas de ambos medios de forma independiente para así compararlas con el comportamiento de la emisión láser aleatoria.

2.2.1. Caracterización de las partículas de SiO₂

Para todos los experimentos el medio esparsor usado fueron partículas de dióxido de silicio (SiO₂) con diámetros medios distintos y suspendidas en solución agua-etanol [25]. La elección de este material radica en su capacidad de esparcimiento en las longitudes de onda del rango visible, además del reciente estudio de los efectos de absorción que presenta el SiO₂ a escalas nanométricas [26]. Las partículas de SiO₂ son obtenidas a partir del metodo Stöber modificado en el Centro de Ciencias Aplicadas y Desarrollo Tecnológico (CCADET) UNAM [25]. Las partículas muestran una forma esférica como se observa en las imágenes SEM de la figura 2.4 obtenida con partículas con diámetro medio de 200 nm.

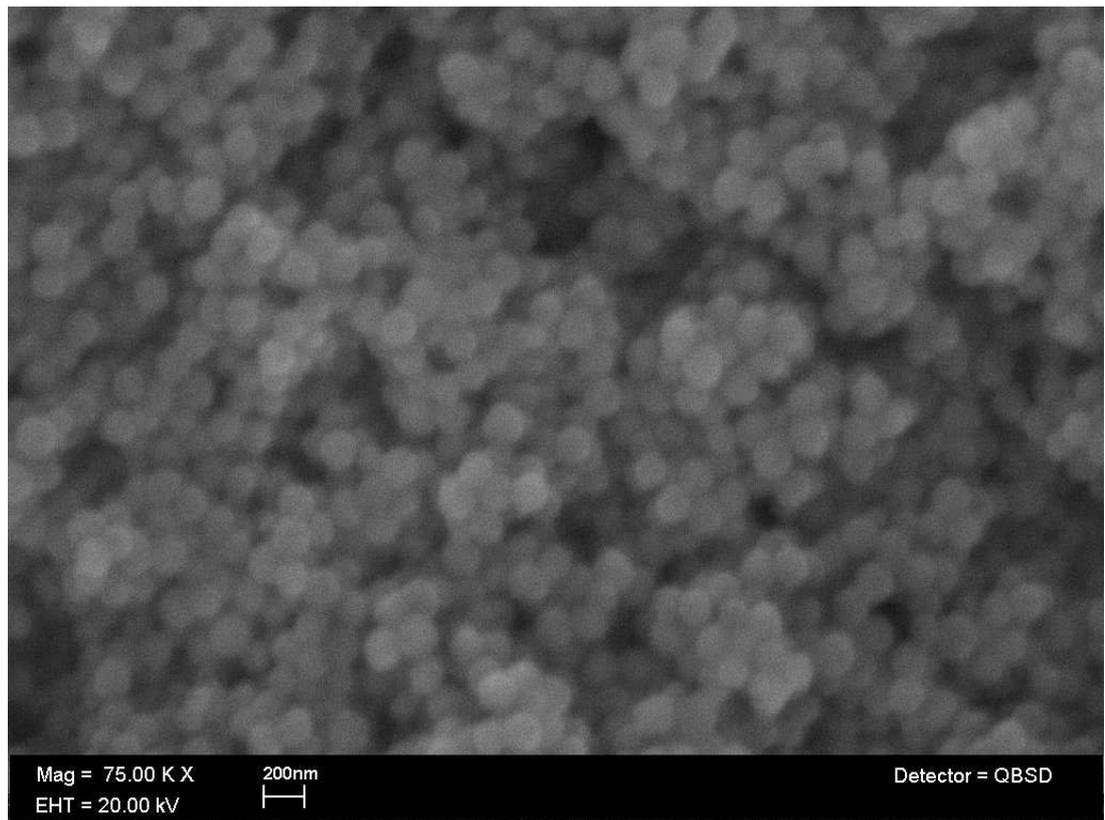


Figura 2.4. Imagen del microscopio de barrido electrónico para las partículas de SiO₂ con diámetro medio de 200 nm.

En general, el esparcimiento depende del tamaño de partícula, por lo que es de esperarse un cambio en las señales generadas con las muestras para distinto diámetro de partícula. Las partículas de SiO₂ usadas en estos experimentos tienen diámetros medios de 50, 100, 200, 400 y 600 nm. Para observar los efectos de la concentración de partículas en la emisión láser aleatoria se prepararon muestras con distintas concentraciones para cada diámetro de partícula. Cuatro concentraciones para cada tamaño de partícula (a,b,c y d) fueron preparadas. La tabla 2.1 muestra las distintas concentraciones en términos de la fracción de volumen. Estas concentraciones son del mismo orden de magnitud que las reportadas en la literatura [18]. La fracción de volumen se obtiene como la razón del volumen de las partículas de SiO₂ entre el volumen total de la muestra.

Tamaño de partícula [nm]	Fracción de volumen			
	a	b	c	d
50	5.66E-03	1.13E-02	2.26E-02	3.40E-02
100	5.84E-03	1.17E-02	2.33E-02	3.50E-02
200	4.52E-03	9.04E-03	1.81E-02	2.71E-02
400	5.19E-03	1.04E-02	2.08E-02	3.12E-02
600	4.52E-03	9.03E-03	1.81E-02	2.71E-02

Tabla 2.1. Fracción de volumen para las distintas concentraciones y diámetros de partícula.

Como se observa en la tabla 2.1, las concentraciones se preparan para que las fracciones de volumen sean semejantes. Esto permite comparar los efectos del tamaño de partícula teniendo la misma cantidad de material espesor.

Para caracterizar el medio espesor, cada muestra de la tabla 2.1 se coloca en la celda de prueba y es irradiada por el láser de bombeo. Las señales ópticas y fototérmicas se registran como fue mencionado en las secciones 2.1.1 y 2.1.2. La señal fototérmica brinda información acerca de la energía absorbida por las partículas. La fibra óptica colocada a un lado de la celda de prueba recolecta la luz que es esparcida por la muestra y da una medida del esparcimiento en la muestra. La figura 2.5 muestra la densidad espectral de energía del haz recolectado por la fibra contra la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

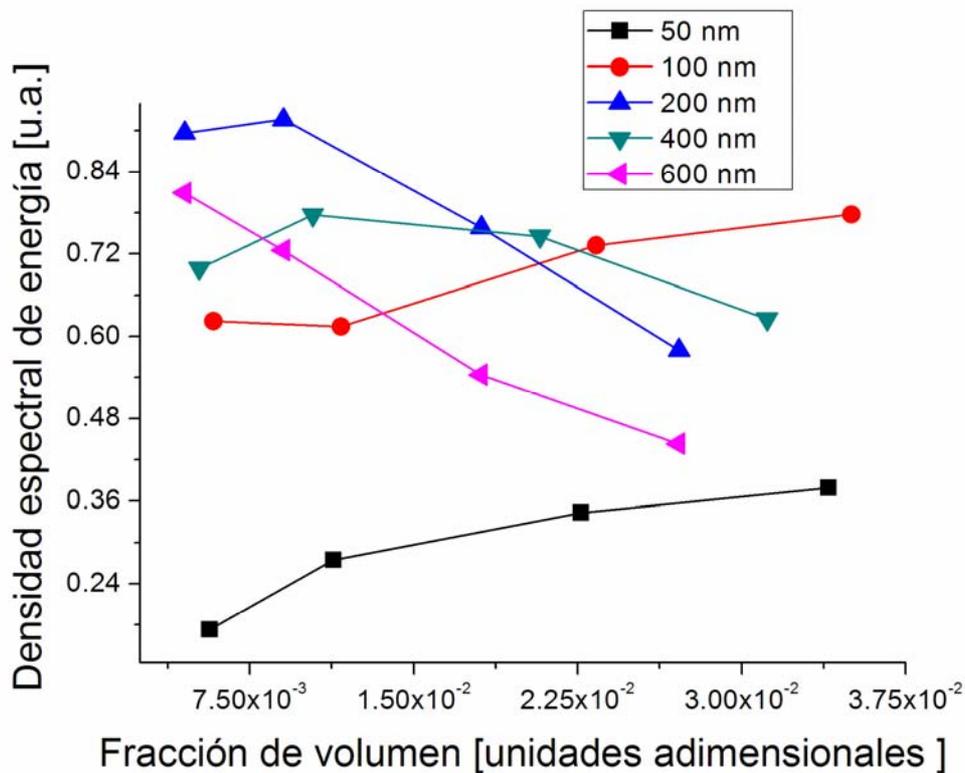


Figura 2.5. Densidad espectral de energía contra fracción de volumen para distintos tamaños de las partículas de SiO_2

La densidad espectral de energía se obtiene integrando la emisión espectral registrada en el espectrómetro. Debido a que el espectrómetro tiene una resolución aproximada de 0.2 nm, los errores son menores al 10% y las barras de error asociadas a las gráficas tienen el tamaño de los símbolos que representan los datos experimentales. Para tamaños de partícula pequeños (50 y 100 nm) se observa una tendencia creciente en la densidad espectral de energía cuando la fracción de volumen aumenta. Las partículas más grandes tienen un comportamiento decreciente en la densidad espectral de energía cuando la fracción de volumen aumenta. Esto está relacionado al camino libre medio que recorre la luz antes de salir de la muestra y a la profundidad de penetración que el haz tiene en la muestra [17].

Con los resultados de la figura 2.5 se puede decir que para cualquier tamaño de partícula existe una concentración para la cual el esparcimiento es máximo. Para concentraciones menores a este punto de máximo esparcimiento, al aumentar la fracción de volumen el esparcimiento también aumenta junto con el número de centros

esparsores que intervienen en el camino libre medio [17]. Para concentraciones mayores a la concentración de esparcimiento máximo, el esparcimiento disminuye debido a que la profundidad de penetración y el número de centros esparsores en el camino libre medio decrecen y el haz de luz interactúa menos con la muestra. Lo anterior quiere decir que para un tamaño de partícula dado, la concentración para la que se presenta mayor esparcimiento depende únicamente de la longitud de onda del haz incidente. Además, si el número de centros esparsores en el camino libre medio cambia, también la absorción del medio esparsores cambia y con ello la señal fototérmica.

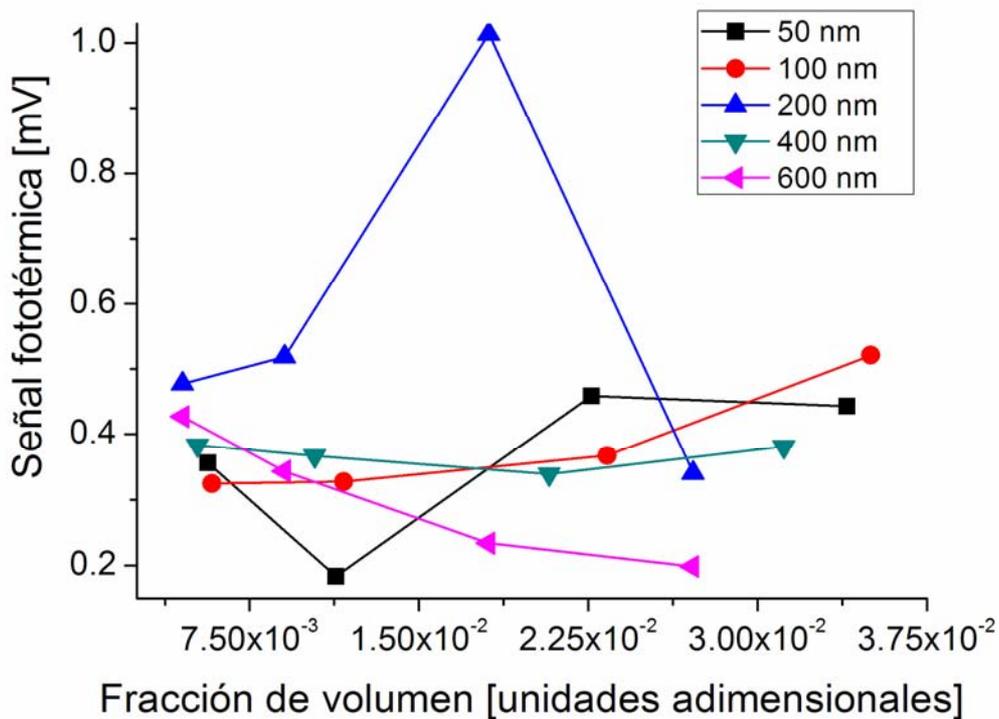


Figura 2.6. Señal fototérmica contra fracción de volumen para distintos tamaños de las partículas de SiO_2

La figura 2.6 muestra la amplitud de la señal fototérmica contra la fracción de volumen para las muestras de los distintos tamaños de partícula. Como en la figura 2.6, las barras de error se omiten debido a que son más pequeñas que los símbolos que representan los datos experimentales. En la figura, los tamaños de partícula pequeños muestran un comportamiento creciente cuando la fracción de volumen aumenta. Por el contrario, para las partículas con diámetro medio de 600 nm la tendencia es decreciente cuando la fracción de volumen aumenta. Esto confirma que la absorción es proporcional al número de esparsores por camino libre medio. La figura 2.5 muestra también

absorción preferencial para las partículas de 200 nm, mostrando la alta dependencia del tamaño de partícula en los efectos de absorción no radiativos [26]. Al comparar las gráficas 2.5 y 2.6 se observa que tanto el esparcimiento como la señal fototérmica son mayores para las partículas de 200 nm. Por otro lado las partículas de 400 nm muestran las menores variaciones tanto en esparcimiento como en señal fototérmica.

Tanto la parte óptica como la parte fototérmica serán importantes al compararlas con las mediciones de la emisión láser aleatoria. Para obtener la emisión láser aleatoria se añadirá a las muestras Rodamina 6G que será el medio activo que permita la emisión estimulada en el medio esparidor. Antes de mostrar los resultados de emisión láser aleatoria se describirá brevemente las características principales de la R6G.

2.2.2. Caracterización de la Rodamina 6G

La Rodamina 6G es un tinte orgánico ($C_{27}H_{29}ClN_2O$) fluorescente ampliamente usado como marcador en aplicaciones biológicas y medio activo en láseres de tinte. Es soluble en agua, metanol y etanol en concentraciones de aproximadamente 10^{-4} M. Entre los tintes orgánicos, la rodamina 6G presenta una de las mayores eficiencias cuánticas y un ancho medio espectral grande (~ 50 nm). Su emisión máxima ha sido reportada alrededor de los 566 nm y entre sus desventajas como medio activo está la rápida degradación química en el solvente.

En todos los experimentos de este trabajo se utilizó Rodamina 6G comercial (Sigma-Aldrich). La Rodamina fue preparada con etanol como solvente a concentraciones de 0.5, 0.75, 1 y 1.25 g/L. Estas concentraciones han sido reportadas como las concentraciones de máxima eficiencia en trabajos de láseres de tinte [22]. Como en la caracterización de las partículas de SiO_2 , la solución de Rodamina es colocada en la celda de prueba y se obtienen las mediciones como se mostró en la sección 2.2.1. De esta manera, se registró la densidad espectral de energía y se obtuvo el ancho medio espectral (FWHM) como el ancho de línea para el cual la emisión tiene la mitad de la máxima amplitud. Cada concentración de Rodamina 6G fue bombeada usando potencias por pulso entre $31 \mu J$ y $121 \mu J$. La figura 2.6 muestra la emisión espectral de la Rodamina 6G para distintas energías de bombeo.

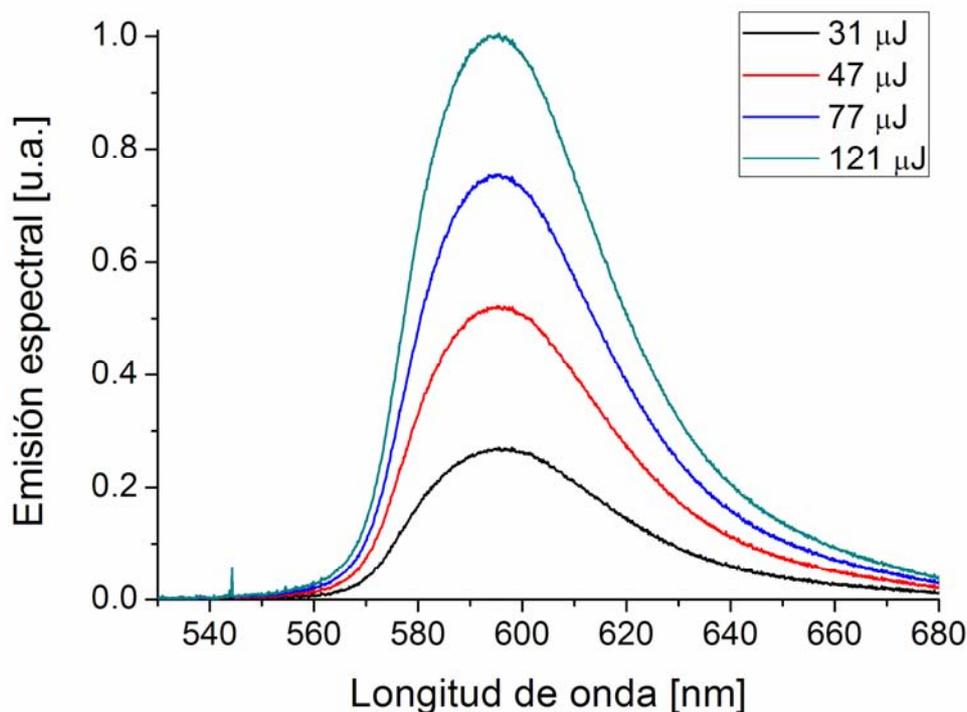


Figura 2.7. Emisión espectral de la Rodamina 6G para distintas energías de bombeo. La concentración de la Rodamina 6G es de 0.75 g/L.

La emisión espectral de la figura 2.7 está normalizada con respecto a la emisión con 121 μJ de energía de bombeo. Para todas las energías de bombeo la longitud de onda pico se encuentra en los 595 nm. El comportamiento del ancho medio espectral (FWHM) y la densidad espectral de energía en función de la energía de bombeo se muestra en la figura 2.8 para la misma concentración de Rodamina 6G que en la figura 2.6.

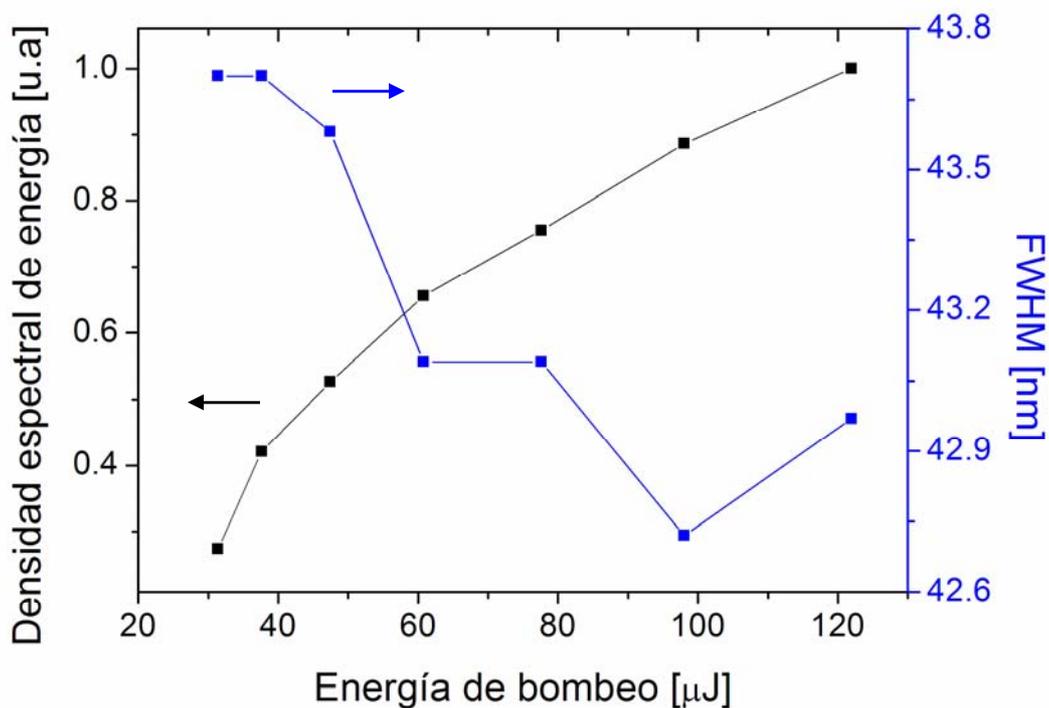


Figura 2.8. Densidad espectral de energía y FWHM en función de la energía de bombeo para una concentración de 0.75 g/l.

En la figura, la densidad espectral de energía está normalizada con respecto a la mayor energía de bombeo. Un comportamiento exponencial puede observarse para la densidad espectral de energía en función de la energía de bombeo. Como lo muestra la figura 2.8, el FWHM disminuye cuando la energía de bombeo aumenta. Sin embargo, los cambios del FWHM son de apenas 1 nm por lo que el angostamiento de la emisión es muy pequeño.

Otra característica importante en la R6G es su longitud de onda pico. Está varía dependiendo de la concentración de tinte en el solvente. La dependencia de la longitud de onda pico con la concentración puede verse en la figura 2.9.

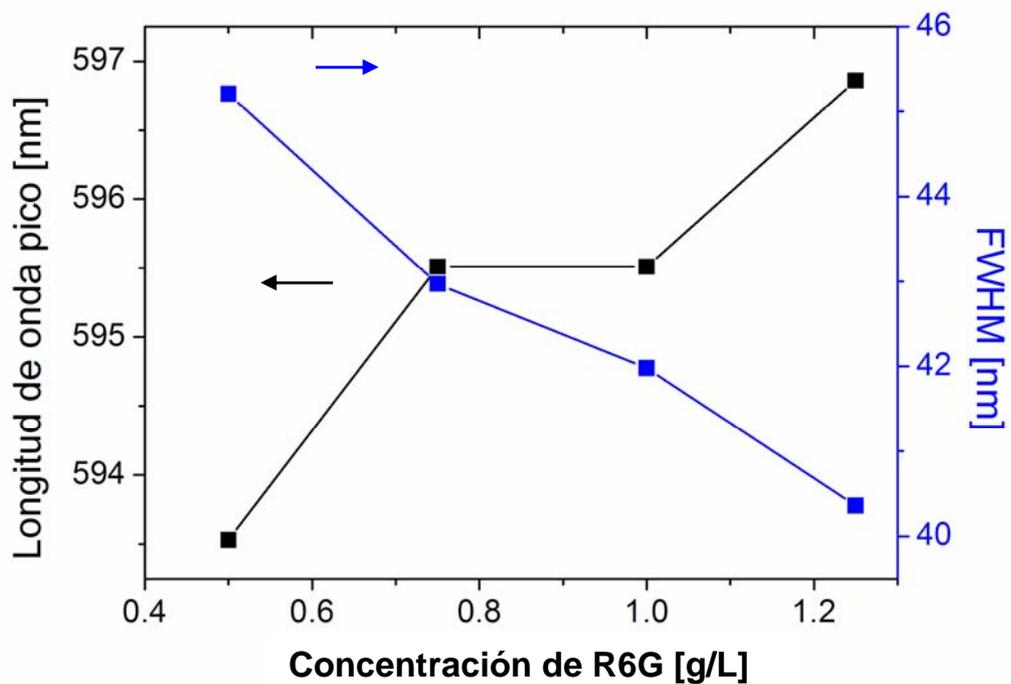


Figura 2.9. Longitud de onda pico y FWHM como función de la concentración de R6G. La energía de bombeo para todas las concentraciones de la figura es $121 \mu\text{J}$.

La longitud de onda pico tiene un cambio de hasta 3 nm en el rango de concentraciones de estos experimentos. Este tipo de sintonía con respecto a la concentración de tinte es bien conocida en láseres de tinte [24]. Además de la longitud de onda pico, la figura 2.9 muestra el FWHM para las mismas concentraciones. Los cambios en FWHM para diferentes concentraciones de R6G (6 nm) son mayores que para cambios en energía de bombeo (ver figura 2.8). El angostamiento en función de la concentración de R6G es del orden de 15%. A pesar de que la figura sugiere que la emisión espectral se angosta para concentraciones de R6G altas, la energía espectral disminuye para concentraciones saturadas de R6G.

Hasta ahora, se han estudiado el medio espesor y el medio activo de forma independiente. Para obtener emisión láser aleatoria es necesario de ambos elementos, por lo que las características de ambos medios influyen en el láser aleatorio resultante. En el siguiente capítulo se muestra el estudio de láseres aleatorios basados en los medios espesor y activo descritos anteriormente.

CAPÍTULO 3

LÁSERES ALEATORIOS DE TINTE BASADOS EN PARTÍCULAS DE SiO₂

En general, los sensores ópticos hacen uso de los cambios que tiene un haz de luz cuando interactúa con un material para medir alguna variable física. Recientemente, el estudio de láseres aleatorios para la detección de tejido biológico con cáncer plantea el análisis de la luz que se genera dentro de un material complejo como técnica óptica de detección [10,13]. El objetivo de esta técnica es distinguir diferencias estructurales en un medio complejo por medio de las características de la emisión láser aleatoria [27]. Sin embargo, esto sólo es posible cuando se tiene una descripción adecuada para entender los parámetros más importantes que determinan la emisión láser aleatoria. Actualmente, existen distintos acercamientos teóricos y un creciente interés por este novedoso tipo de láseres [2]. En este capítulo se estudian láseres aleatorios de tinte con partículas de SiO₂ como medio esparsor. El estudio se basa en mediciones ópticas y fototérmicas para distintas concentraciones y tamaños de partícula en el medio esparsor. Para lograr la emisión láser aleatoria se usa el medio activo y las partículas estudiadas en secciones anteriores. El objetivo de este capítulo es analizar los parámetros más importantes en la emisión láser aleatoria y relacionarlos con las características que presentan el medio activo y el medio esparsor por separado estudiadas en el capítulo anterior.

3.1. EFECTO LÁSER ALEATORIO

Para obtener emisión láser aleatoria, se utilizaron las concentraciones de partículas de SiO₂ mostradas en la tabla 2.1 mezcladas con R6G como medio activo. Las muestras de la tabla 2.1 fueron mezcladas con R6G para obtener concentraciones de tinte de 0.5, 0.75, 1.0 y 1.25 g/L en cada muestra de la tabla. El arreglo experimental usado para colocar las muestras, capturar la emisión y obtener la señal fototérmica es el mismo que se detalló en secciones anteriores. Cada muestra se mezcla con R6G para obtener la concentración de tinte más baja que es 0.5 g/L. Después, se hace incidir el haz de bombeo sobre la celda de prueba; en estos experimentos se realizaron pruebas con seis diferentes energías para el haz láser de bombeo. Estas energías son ajustadas para observar el comportamiento por arriba del umbral en cada láser aleatorio. La emisión láser aleatoria que se genera en la muestra se captura por medio de la fibra óptica y se analiza con el espectrómetro de estado sólido. Además, la señal fototérmica se obtiene a través del sensor de PVDF colocado como se muestra en la figura 2.1 y se registra la amplitud del primer pico como se detalló en la sección 2.1.2. Una vez registrados los datos ópticos y fototérmicos, se aumenta la concentración de R6G en la muestra para tener 0.75 g/L y se realiza la adquisición de datos correspondiente. El mismo procedimiento se lleva a cabo para las concentraciones de 1.0 y 1.25 g/L.

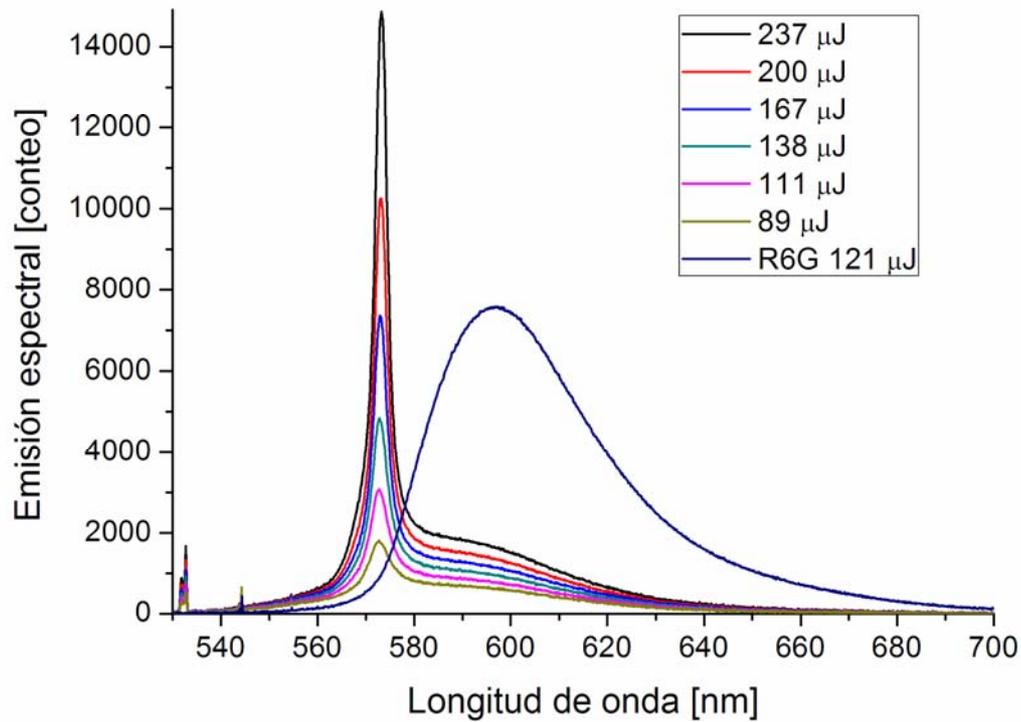
Para algunas de las muestras de medio esparsor se observó precipitación de agregados de partículas al mezclar las soluciones con la R6G. En las muestras con precipitación no se presentó emisión alguna. La tabla 3.1 resume las muestras para las cuales se presenta la emisión láser aleatoria (ELA) y para las que se presenta precipitación.

Tamaño de particular [nm]	Fracción de volumen			
	a	b	c	d
50	ELA	ELA	Precipitación, emisión solo para bajas concentraciones de R6G	Precipitación. Sin emisión
100	ELA	ELA	ELA	Precipitación, emisión solo para bajas concentraciones de R6G
200	ELA	ELA	ELA	ELA
400	ELA	ELA	ELA	ELA
600	ELA	ELA	ELA	ELA

Tabla 3.1. Resumen de las muestras en las que se presenta emisión láser aleatoria (ELA) o precipitación de agregados de partículas.

Como se observa en la tabla 3.1, los tamaños de partícula pequeños y las concentraciones altas son las condiciones favorables para la precipitación. La interacción de las moléculas de R6G con las partículas de SiO₂, o bien el fenómeno de “*quenching*” molecular, pueden ser la causa de la precipitación observada [28]. En general, el efecto de precipitación en nanopartículas debe ser estudiado como un problema independiente y su análisis está fuera del alcance de este trabajo.

Por otro lado, los sistemas láser son sistemas de umbral que presentan angostamiento en la emisión espectral, aumento en la densidad espectral de energía y mayor direccionalidad cuando se supera la energía de umbral [1]. Estas características deben estar presentes también en los láseres aleatorios. La figura 3.1 muestra los espectros de emisión para la muestra 3 con tamaño de partícula de 200nm (ver tabla 2.1) con una concentración de tinte igual a 1.25 g/L.

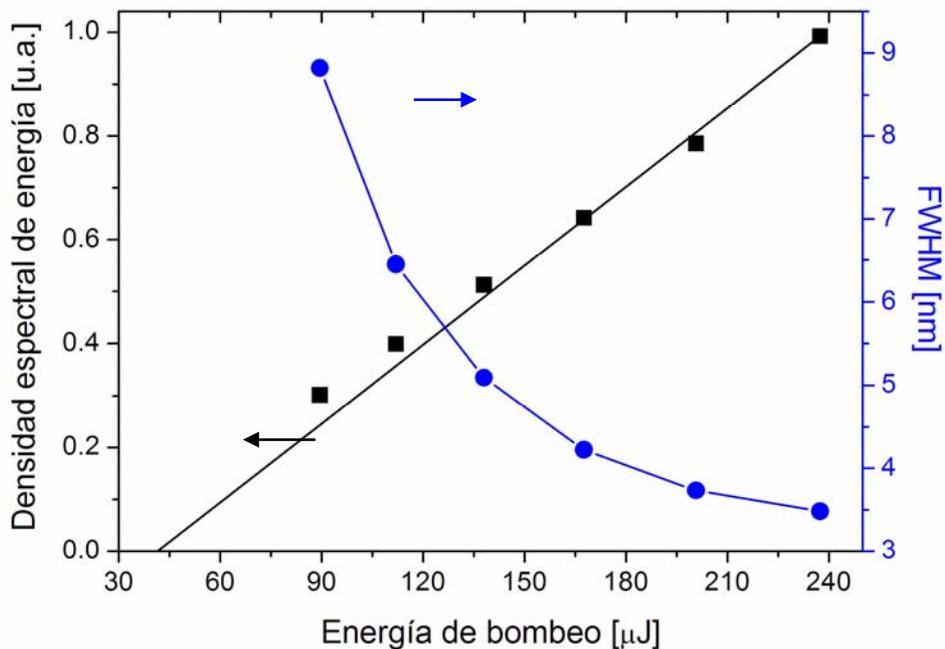


[JHC1]

Figura 3.1. Espectros de emisión para un láser aleatorio con distintas energías de bombeo y espectro de emisión de la R6G a una energía de 121 μJ . La emisión espectral se muestra en unidades de conteo. Una unidad de conteo corresponde a la energía óptica necesaria para generar un foto-electrón en el arreglo CCD del espectrómetro. El láser aleatorio está formado por la muestra 3a de la tabla 2.1. Tanto el láser aleatorio como la R6G tienen una concentración de 1.2 g/L.

Como se observa en la figura 3.1 el ancho medio espectral del láser aleatorio es mucho menor que el ancho espectral de la R6G. Además, se distingue el angostamiento de la emisión láser aleatoria cuando la energía aumenta. Es importante notar que la longitud de onda de emisión del láser aleatorio de la figura no cambia con las distintas energías de bombeo. Sin embargo, esta longitud de onda de emisión no se encuentra en el centro del espectro de emisión de la R6G. Es decir, el efecto de las partículas esparsoras en la R6G es distinto al efecto de superluminiscencia, en el cual, la emisión se angosta cerca de las longitudes de onda centrales de la emisión del medio activo [29]. Por su parte, la densidad espectral de energía en la R6G es mayor que en la emisión láser aleatoria. Lo anterior sugiere que en la emisión láser aleatoria, la energía de bombeo que no es

convertida a luz se absorbe por las partículas esparsoras por medios no radiativos. En otras palabras, la emisión láser aleatoria presenta menor eficiencia pero mayor selectividad espectral. Este comportamiento se observa de una mejor manera en una gráfica de ancho medio espectral (FWHM, de las siglas de *Full Width at Half Maximum*) y densidad espectral de energía contra energía de bombeo. La figura 3.2 muestra el comportamiento espectral del láser de la figura 3.1 en función de la energía de bombeo.



[JHC2]

Figura 3.2. Densidad espectral de energía y FWHM del láser aleatorio formado con la muestra 3a y a una concentración de R6G de 1.2 g/L. La línea continua representa el ajuste lineal para los tres puntos de mayor energía. El umbral calculado con esta aproximación lineal es de 41.4 μJ .

En la figura 3.2, la densidad espectral de energía muestra una tendencia más lineal para energías de bombeo elevadas. Además, en la figura se observa una reducción de FWHM de hasta 60% en la emisión láser aleatoria con incrementos en la energía de bombeo. El comportamiento anterior es característico de los sistemas láser. La línea continua de la figura 3.2 es la recta que representa el ajuste lineal para los tres puntos con mayor energía de bombeo. El coeficiente de determinación para el ajuste lineal es igual a 0.988. Por su parte, el umbral calculado mediante tal aproximación es de 41.4 μJ .

Dado que las concentraciones de R6G usadas en este estudio están en el rango de concentración óptima [24], los efectos fototérmicos capturados por el sensor fototérmico se deben principalmente a la luz absorbida por las partículas esparzoras. Esta luz absorbida por las partículas está relacionada con la diferencia en densidad espectral de energía entre la emisión aleatoria y el espectro de luminiscencia de la R6G que se observa en la figura 3.1. La amplitud de la señal fototérmica en función de la energía de bombeo para el láser aleatorio de la muestra 3a se puede observar en la figura 3.3.

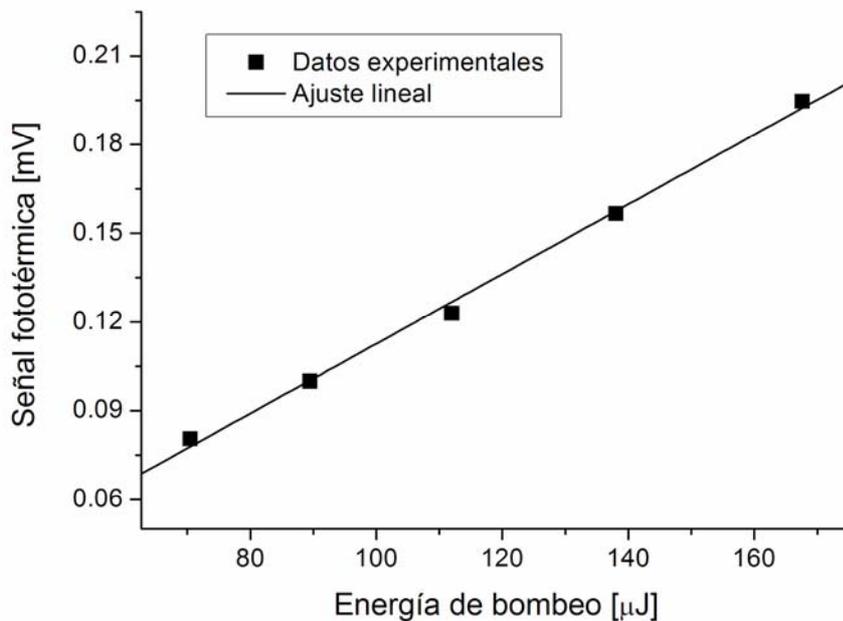


Figura 3.3. Señal fototérmica contra energía de bombeo para el láser aleatorio de la muestra 3 para un tamaño de partícula de 200nm. La línea continua representa el ajuste lineal de los datos experimentales [JHC3]. En la figura se muestra un dato de energía menor que en la figura 3.1 y se omiten los puntos de mayor de energía en los experimentos para observar el comportamiento lineal de la señal fototérmica entre el umbral y el régimen de saturación.

Para un sistema láser ideal, toda la energía que se suministra al sistema es convertida en emisión láser. Para los sistemas reales lo anterior no ocurre y la pendiente de eficiencia óptica es menor a la unidad. Eso quiere decir que la energía que no se convierte en emisión láser representa las pérdidas.

Generalmente, estas pérdidas están relacionadas a procesos no radiativos. Si se desprecian otros efectos, la eficiencia óptica sumada con la pendiente de pérdidas de la curva de energías debe ser igual a la unidad. Es decir: $K_{nr}\mu_{nr} + K_r\mu_r = 1$. Aquí, μ_{nr} representa la pendiente de los efectos no radiativos, mientras que μ_r representa la eficiencia óptica, que es la pendiente de la curva de energías para los efectos radiativos. Los factores K_{nr} y K_r son constantes de ajuste. En el caso de los láseres aleatorios estudiados, la energía que es absorbida por las partículas hace menos eficiente a la emisión láser aleatoria. La diferencia entre la energía de bombeo y la energía de emisión da como resultado la energía de pérdidas. Si se desprecian los efectos de reabsorción, y teniendo en cuenta el comportamiento lineal de la densidad espectral de energía de la emisión láser aleatoria, se puede deducir el comportamiento lineal de la señal fototérmica. Esta linealidad entre la señal fototérmica y la energía de bombeo puede observarse en la figura 3.3. La línea continua de la figura se obtiene mediante el ajuste lineal de los datos experimentales. Por lo tanto, la pendiente del ajuste está relacionada con las pérdidas debidas al efecto de absorción de las partículas.

Los resultados presentados en esta sección muestran los argumentos necesarios para considerar las mezclas de partículas de SiO₂ y R6G como láseres aleatorios. El estudio continúa en las siguientes secciones mostrando los cambios en la emisión láser aleatoria para diferentes concentraciones de R6G, y diferentes tamaños y concentraciones de partículas esparsoras.

3.2. CAMBIOS POR CONCENTRACIÓN DE TINTE

El rango de concentraciones de R6G (0.5, 0.75, 1.0 y 1.25 g/L) tiene variaciones en concentración molar del orden de 4×10^{-4} mol/lit y es el rango donde se presenta la mayor eficiencia cuántica [24]. Por lo anterior, es de esperar cambios muy pequeños en las rectas de energía de bombeo contra densidad espectral de energía de los láseres aleatorios estudiados. En contraste, la longitud de onda de emisión y el FWHM pueden presentar cambios importantes cuando la

concentración de tinte varía. La figura 3.4 muestra la longitud de onda de emisión en función de la concentración de R6G para distintos tamaños de partícula.

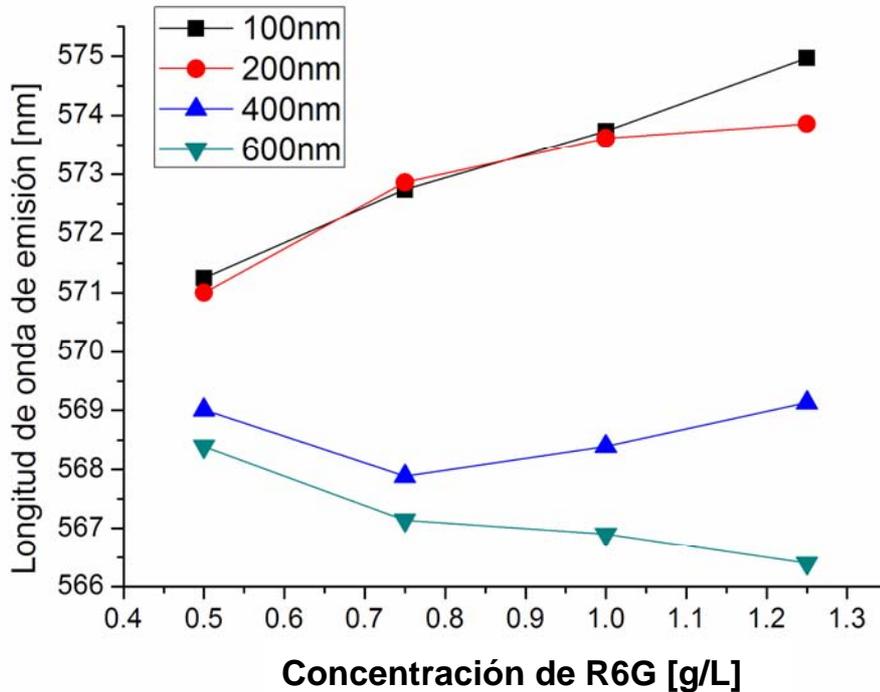


Figura 3.4. Longitud de onda de emisión en función de la concentración de R6G para láseres aleatorios con distintos tamaños de partículas esparsoras. La fracción de volumen de los láseres de la figura es 1×10^{-2} .

En la figura 3.4 no se muestran los datos correspondientes a las partículas de 50 nm debido a que únicamente para la mitad de las concentraciones de R6G (0.5 y 0.75 g/L) se obtuvo emisión láser aleatoria. Las concentraciones de R6G restantes (1.0 y 1.25 g/L) presentaron precipitación. La figura 3.4 muestra distintos cambios en la longitud de onda de emisión dependiendo del tamaño de partícula del medio esparsor. Esto quiere decir que en los láseres aleatorios es posible lograr sintonía no sólo por la concentración de tinte, sino también por medio del tamaño de partícula del medio esparsor. Lo anterior es análogo a cambiar la fuerza de esparsamiento en soluciones coloidales y está acorde a lo reportado para cambios en los índices de refracción de las partículas esparsoras y la solución en que se encuentran [16]. Al igual que en la figura 2.5 del capítulo 2, la figura 3.4 muestra comportamientos diferentes para partículas pequeñas y

partículas grandes. Aquí, las partículas con diámetros pequeños muestran mayores cambios en la longitud de onda de emisión que las soluciones con partículas grandes. Los cambios en longitud de onda de emisión son comparables a los reportados en trabajos de láseres de tinte para variaciones mayores en el tinte láser [30].

La figura 3.5 muestra la longitud de onda de emisión en función de la concentración de R6G para distintas concentraciones de partícula. En los láseres aleatorios de la figura, el tamaño de partícula permaneció fijo con 200 nm de diámetro medio. Esto complementa el comportamiento de la longitud de onda de emisión de la figura 3.4, donde la fracción de volumen es constante y del orden de 1×10^{-2}

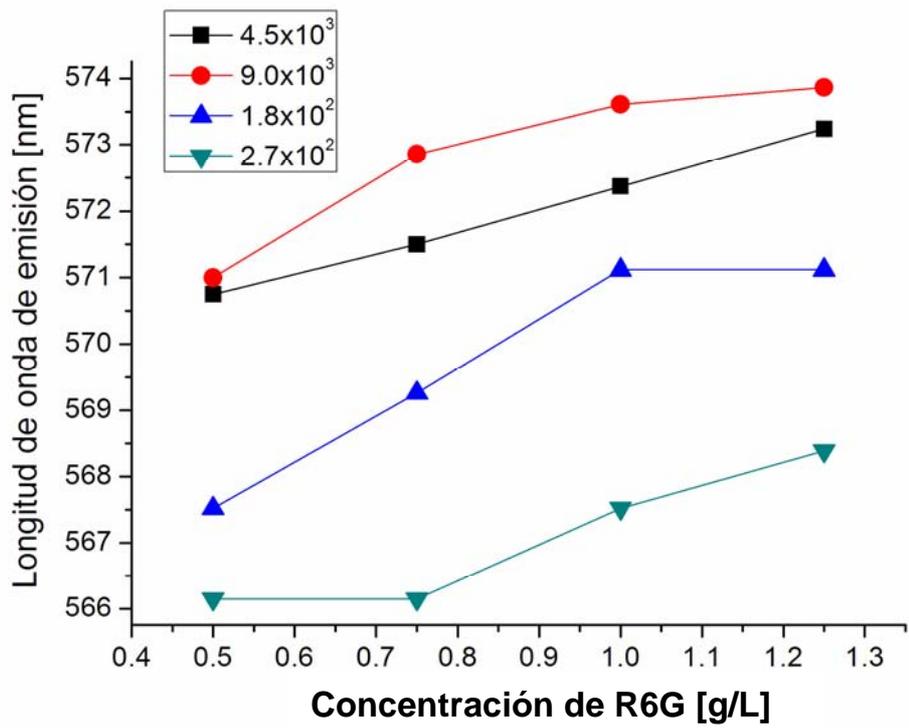


Figura 3.5. Longitud de onda de emisión en función de la concentración de R6G para láseres aleatorios con distintas fracciones de volumen. El tamaño de partícula en el medio espesor de los láseres de la figura es de 200 nm.

La figura muestra que en general la longitud de onda de emisión tiende a longitudes de onda mayores cuando la concentración de R6G aumenta. La mayor

intonía se obtiene con la concentración c , que corresponde a una fracción de volumen de 1.81×10^{-2} . Sin embargo, el comportamiento más lineal se observa en la concentración a , que es la concentración de partículas más baja. En general, la sintonía por concentración de R6G se obtiene no sólo para diferentes tamaños de partícula, si no también para distintas fracciones de volumen del medio esparsor. Esto apunta hacia un comportamiento más complejo que la sintonía por estados vibro rotacionales en el medio activo. Las siguientes secciones centran la atención en los cambios de longitud de onda de emisión y parámetros del FWHM con respecto al tamaño y concentración de las partículas esparsoras en el medio aleatorio.

3.3. CAMBIOS POR CONCENTRACIÓN Y TAMAÑO DE PARTÍCULA EN EL MEDIO ESPARSOR

La concentración de partículas esparsoras en una solución coloidal afecta el camino de la luz dentro del medio. En particular, la longitud de penetración, el camino libre medio y el número de centros de esparcimiento en el recorrido de la luz son parámetros dependientes de la concentración [17]. En los láseres aleatorios, el esparcimiento múltiple está presente al mismo tiempo que los procesos de absorción y emisión del medio activo. Lo anterior representa un problema muy complejo en su análisis teórico formal. En este trabajo, el estudio se limita a describir las observaciones experimentales de los láseres aleatorios con diferentes características en el medio esparsor. Los modelos teóricos de los láseres aleatorios así como su análisis numérico están fuera del alcance de este trabajo.

Para observar los efectos que tiene la concentración y tamaño de partículas en la emisión láser aleatoria, se analizó la longitud de onda de emisión para los distintos láseres realizados (tabla 2.1). La figura 3.6 muestra el comportamiento de la longitud de onda de emisión en función de la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

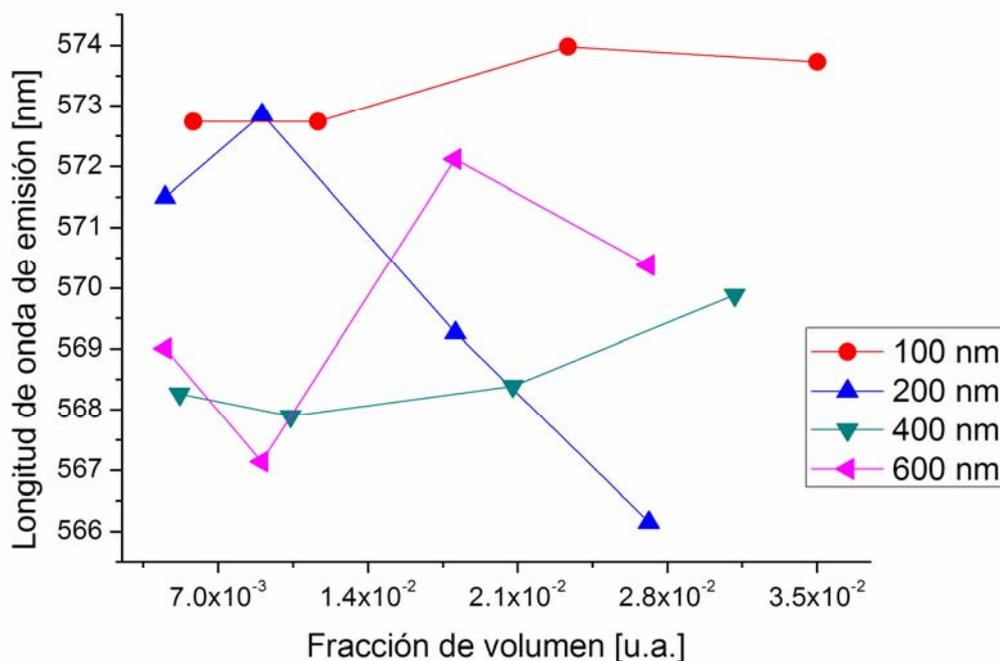


Figura 3.6. Longitud de onda de emisión en función de la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

La figura muestra que es posible sintonizar el láser aleatorio por medio de la concentración de partículas esparsoras. La mayor sintonía se logra con las partículas de 200 nm de diámetro medio. Este tamaño de partícula coincide con el tamaño para el cual se observan las mayores señales fototérmicas, como lo muestra la figura 2.5 del capítulo anterior. Esto puede deberse a la relación de la señal fototérmica con el camino libre medio y la fuente de calor equivalente [24]. Una de las formas en que la señal fototérmica genera mayor energía es con el aumento de la localización de la fuente de calor equivalente. Al aumentar la concentración de partículas, se logra disminuir el volumen de la fuente de calor equivalente y paralelamente la emisión estimulada recorre un camino menor antes de salir del medio aleatorio. El camino que recorre la luz en el medio aleatorio es análogo al viaje redondo de la luz en una cavidad óptica como un resonador Fabry-Perot.

Los tamaños con 100 y 400 nm muestran menores variaciones en la longitud de onda de emisión, que también corresponden con variaciones pequeñas en las señales fototérmicas de la figura 2.5. Este comportamiento puede ser

importante en aplicaciones donde el medio aleatorio cambia su concentración y se busca medir alguna característica diferente del láser aleatorio sin que la longitud de onda de emisión cambie. Los cambios mayores en longitud de onda son de aproximadamente 7 nm, y están dentro del mismo orden de magnitud que los reportados en la literatura variando el índice de refracción de las partículas [16].

Entre las características más importantes de los sistemas láser están el umbral de emisión y la eficiencia. El umbral es la energía necesaria para superar las pérdidas en el láser y que las condiciones de oscilación se cumplan. La eficiencia es la razón de energía emitida en forma de luz láser con respecto a la energía suministrada en el bombeo. Ambos parámetros se pueden obtener de forma gráfica como la abscisa al origen y la pendiente de la curva energía de salida contra energía de bombeo. Las figuras 3.7 y 3.8 muestran, respectivamente, los umbrales y las pendientes (calculados por medio de un ajuste lineal) en función de la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

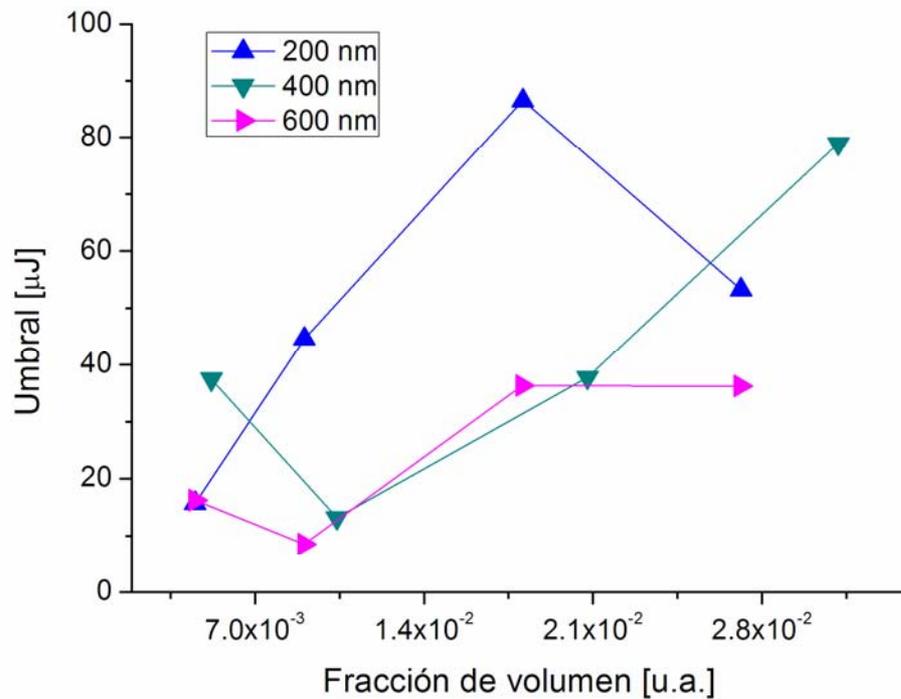
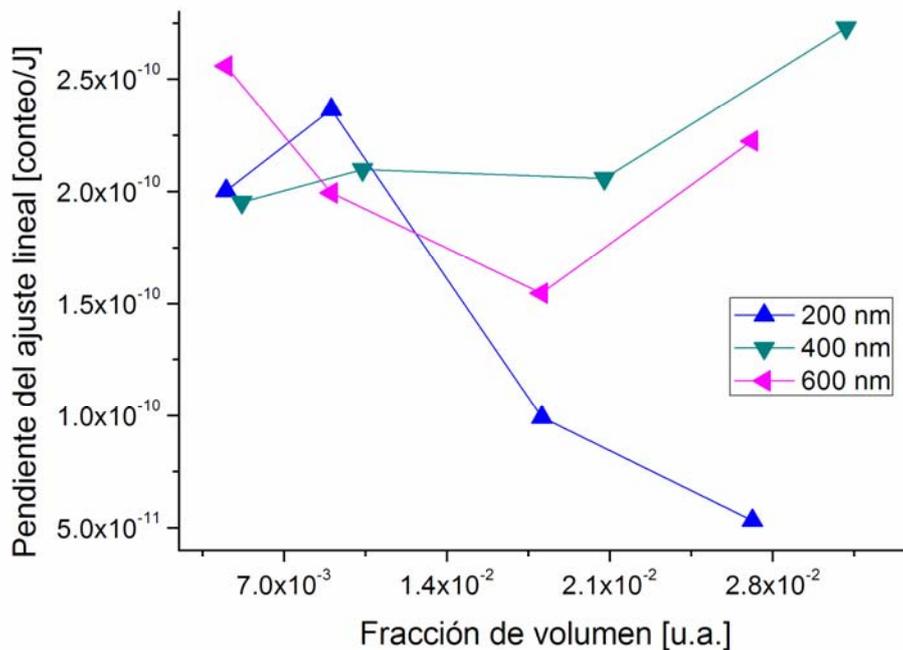


Figura 3.7. Umbral de emisión contra fracción de volumen para distintos tamaños de partícula. El umbral fue calculado mediante un ajuste lineal con los 3 datos experimentales con mayor energía de bombeo.



[JHC4]

Figura 3.8. Pendiente del ajuste lineal contra fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

El ajuste para cada láser se realiza con los 3 puntos de mayor energía como en la figura 3.2. Al tomar los 3 puntos con mayor energía se garantiza que el láser se encuentra por encima de la región de umbral. Además el factor de determinación para todos los casos de encuentra entre 0.94 y 0.99. Como es de esperarse, los umbrales de la figura 3.7 muestran una tendencia a aumentar cuando la concentración de partículas crece. En general las partículas introducen pérdidas en el sistema y por lo tanto se requiere de más energía para superar las pérdidas y que la acción láser se lleve a cabo. Sin embargo, para los láseres con 200 nm en el diámetro de partícula, el umbral muestra una disminución para la concentración más alta. Esto puede estar asociado al comportamiento observado para este tamaño de medio espesor (sección 2.2.1) donde se se muestra la misma tendencia para la señal fototérmica (ver fig. 2.6). Un umbral menor para concentraciones saturadas se puede explicar al relacionarlo con un volumen de interacción menor debido a una longitud de penetración decreciente para concentraciones elevadas.

En cualquier sistema láser, entre mayor sea la pendiente de la curva de energías mayor será la eficiencia. En la figura 3.8 se observan que la pendiente decrece con la concentración de partículas para un tamaño de 200 nm. Al igual que para el umbral, la concentración de partículas introduce pérdidas que hacen menos eficiente al láser y la pendiente disminuye. Sin embargo, para los tamaños de 400 y 600 nm la tendencia es creciente, es decir, el láser aumenta su eficiencia al aumentar la concentración de partículas. Lo anterior muestra que en estos sistemas aleatorios, el esparcimiento múltiple al contrario de ser un efecto no deseado mejora las características del **láser**[JHC5]. Como se verá más adelante, la pendiente de la señal fototérmica muestra comportamientos similares al comportamiento de la pendiente de la curva de energías. Esto es distinto a lo que se presenta en láseres convencionales, donde la disminución de eficiencia produce mayores efectos no radiativos. Algunos efectos que no han sido considerados aquí como la reabsorción y el esparcimiento térmico podrían ser útiles al explicar este comportamiento.

En las figuras 3.7 y 3.8 se muestran también los datos correspondientes a los tamaños de partícula de 200, 400 y 600 nm. Las muestras con un tamaño de partícula de 50 nm presentan precipitación y las de 100 nm se encuentran en el régimen de saturación. Este régimen se observa como el cambio de pendiente en la energía espectral de energía. A pesar de que el régimen de saturación comienza a presentarse para las energías elevadas de estos experimentos, es suficiente para arrojar umbrales negativos al realizar el ajuste lineal con los puntos de mayor energía. La figura 3.9 muestra la densidad espectral de energía contra la energía de bombeo para el láser aleatorio formado con partículas de 100 nm y una fracción de volumen de 2.3×10^{-2} .

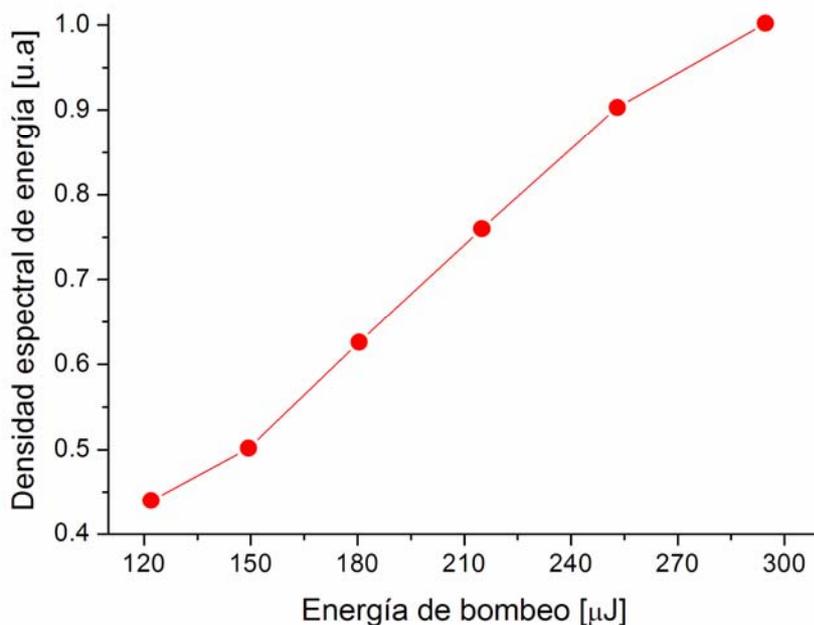


Figura 3.9. Gráfica de la densidad espectral de energía contra energía de bombeo del láser aleatorio correspondiente a la concentración 2c. Los puntos de mayor energía tienen un comportamiento lineal con menor pendiente.

La gráfica de densidad espectral de energía contra energía de bombeo muestra una ligera tendencia a la saturación para las energías de bombeo mayores a $240 \mu\text{J}$. Este comportamiento es característico de los láseres con partículas de 100 nm para todas las concentraciones de los experimentos. La rápida saturación puede estar vinculada a una mayor eficiencia o a un volumen de interacción menor por unidad de energía de bombeo.

Otro parámetro fundamental en el desempeño de un sistema láser es el ancho medio espectral (FWHM) de la emisión láser. Este parámetro está asociado con la coherencia del láser y en general es independiente del umbral y la eficiencia. En los experimentos se observa una dependencia del ancho medio espectral con la energía de bombeo. La figura 3.10 muestra el FWHM contra la energía de bombeo para la concentración correspondiente a la muestra 3c y concentración de tinte de 0.75 g/L .

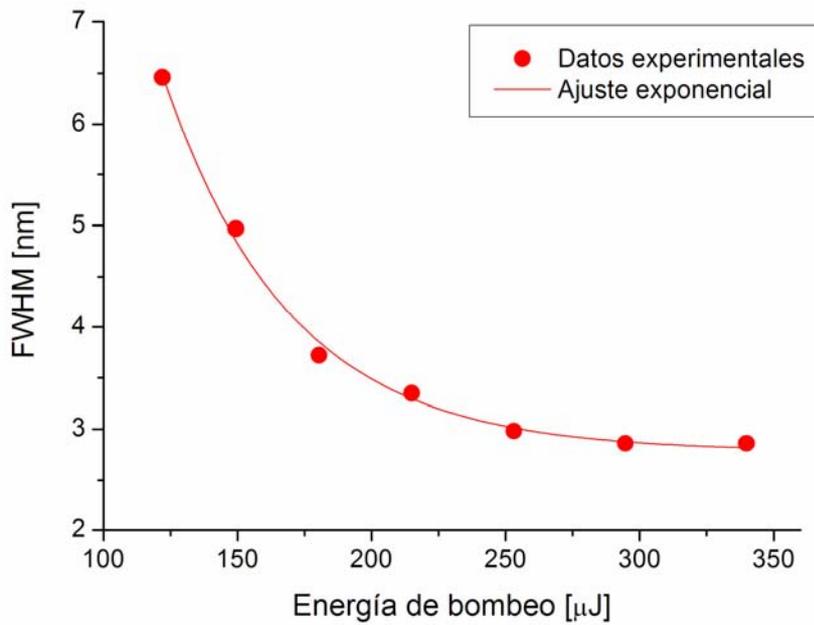


Figura 3.10. FWHM contra energía de bombeo del láser aleatorio correspondiente a la concentración 3c. La línea continua representa un ajuste exponencial.

En general, los datos experimentales se acercan bien a un comportamiento de decaimiento exponencial. Para obtener parámetros de este comportamiento, se usó un ajuste exponencial de la forma:

$$E_{out} = FWHM_0 + Ae^{-\gamma E_{pump}}$$

En este ajuste E_{out} es la densidad espectral de energía capturada y E_{pump} es la energía de bombeo suministrada al sistema. El valor A es una constante de escala del ajuste. Además, la constante $FWHM_0$ es el valor asintótico del comportamiento exponencial y γ es un factor de decaimiento que en este caso es una medida del angostamiento de la emisión por unidad de energía de bombeo. Ambos parámetros están relacionados con la coherencia del láser; el ancho medio espectral cero $FWHM_0$ indica que tan angosto puede ser el láser antes de saturarse mientras que el factor de angostamiento γ indica que tan rápido la emisión láser se acerca al valor $FWHM_0$. Las figuras 3.11 y 3.12 muestran los parámetros anteriores con respecto a la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

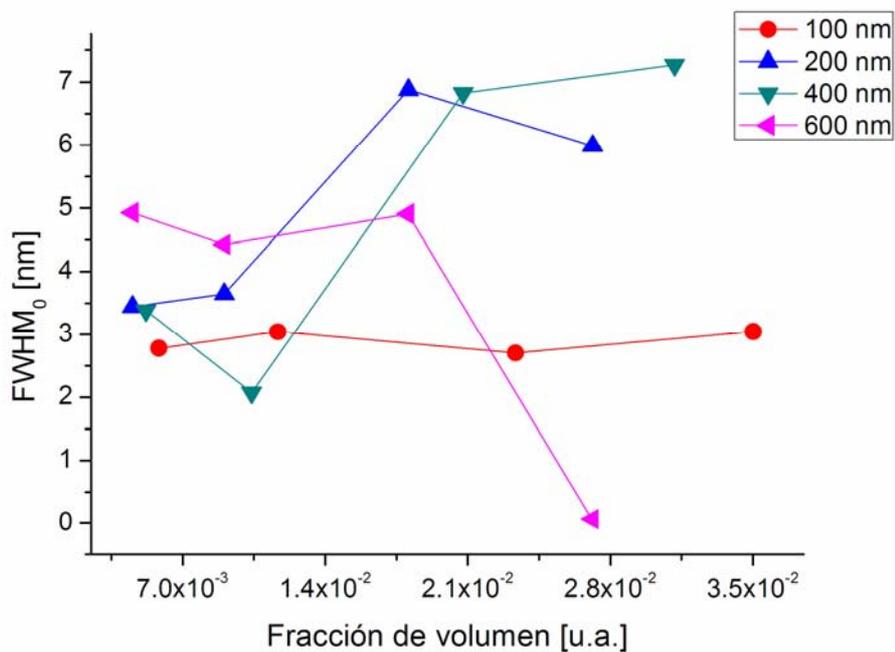


Figura 3.11. $FWHM_0$ contra fracción de volumen para distintos tamaños de partícula.

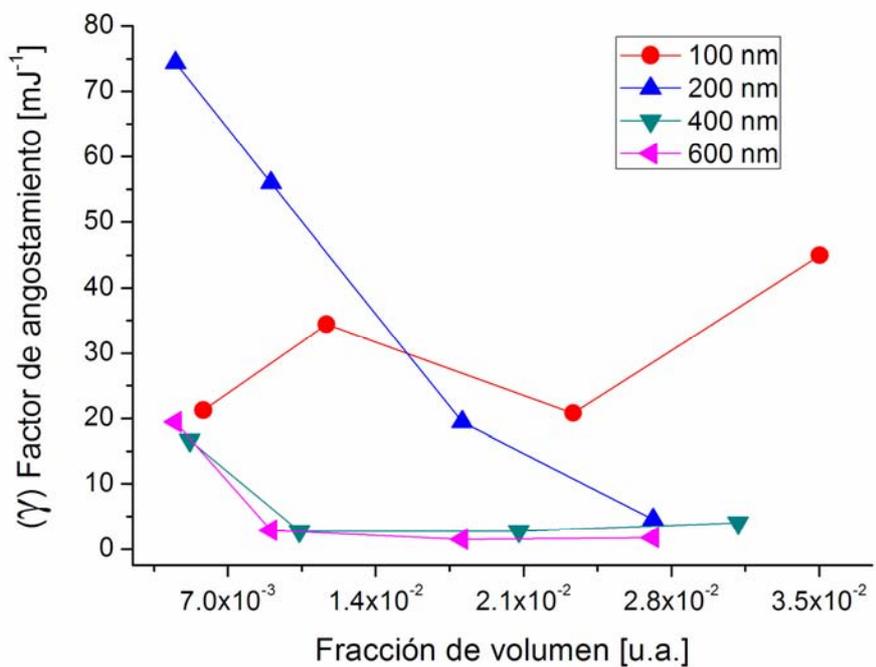


Figura 3.12. Factor de angostamiento γ contra fracción de volumen para distintos tamaños de partícula [JHC6].

A excepción de los láseres con 100 nm, los datos restantes presentan

cambios importantes en el $FWHM_0$. Sin embargo es difícil identificar una relación entre el $FWHM_0$ y la fracción de volumen o el factor de angostamiento. El láser aleatorio con menor $FWHM_0$ se obtuvo para la concentración mayor con las partículas de 600 nm. A pesar de esto, el láser tiene un factor de angostamiento muy pequeño y se requiere de mucha energía para lograr acercarse al $FWHM_0$. Por otro lado la mayor sensibilidad del factor de angostamiento con respecto a la fracción de volumen se obtiene para el medio esparsor con partículas de 200 nm. A pesar de tener los factores de angostamiento mayores, este comportamiento no se mantiene para todas las concentraciones de partículas.

En general, el ancho medio espectral de un sistema láser es dependiente de las pérdidas, como por ejemplo, las pérdidas de los espejos en un arreglo Fabry-Perot. En un láser sin espejos, como es el caso de los láseres aleatorios, las pérdidas pueden deberse a la luz que es absorbida por las partículas esparsoras [JHC7] [26]. Estas relaciones pueden estudiarse mediante experimentos más cuidadosos que busquen determinar con mayor precisión como se relaciona el ancho medio espectral con el camino libre medio y los modos aleatorios dentro del medio esparsor.

Como propuesta alternativa a las mediciones ópticas, se ha estudiado la señal fototérmica para contrastar la información y brindar un primer paso en el estudio de las relaciones entre las pérdidas por esparcimiento y absorción con las características de la luz láser. Con excepción de los láseres con partículas de 100 nm, el comportamiento de la señal fototérmica en función de la energía muestra una tendencia lineal, como se ve en la figura 3.3. Para caracterizar este comportamiento se calculó la pendiente de la curva por medio de un ajuste lineal. Las pendientes del ajuste lineal de la señal fototérmica se muestran en la figura 3.13 en función de la fracción de volumen para distintos tamaños de partícula

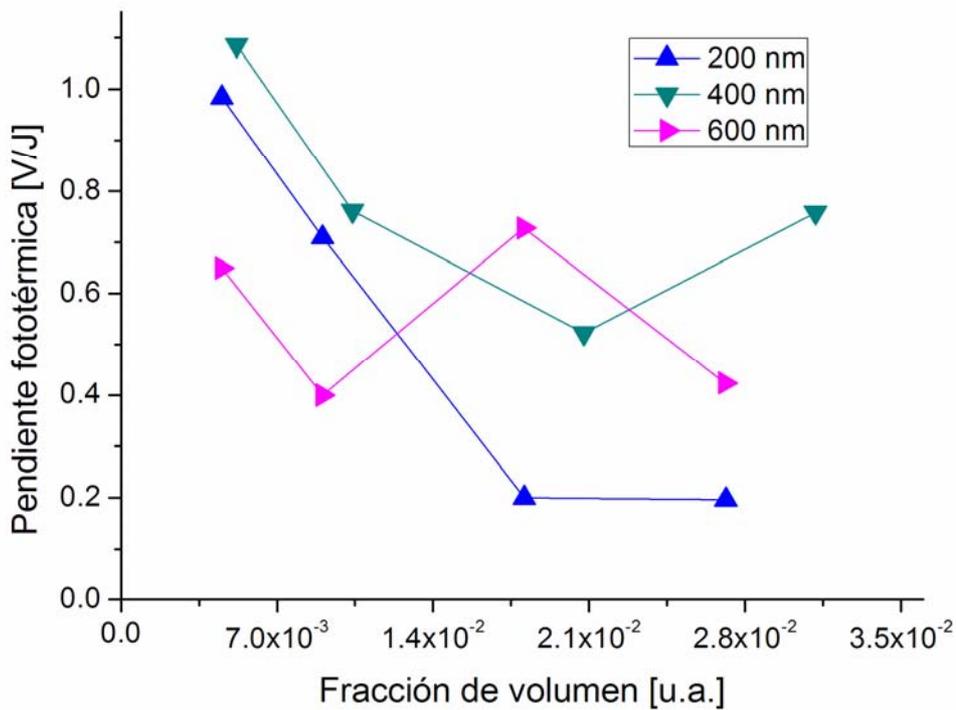


Figura 3.13. Pendiente de la señal fototérmica contra fracción de volumen para distintos tamaños de partícula. La pendiente fototérmica es calculada como la pendiente del ajuste lineal de la curva señal fototérmica contra energía de bombeo

Es importante notar el parecido de la figura 3.13 con las figuras 3.6 y 3.8. Esto quiere decir que la eficiencia óptica y la pendiente fototérmica guardan cierta proporcionalidad entre ellas al menos en el régimen lineal de emisión. Más interesante aún es la relación entre la pendiente fototérmica y la longitud de onda de emisión. Los datos parecen indicar que la pendiente fototérmica y la longitud de onda de emisión siguen el mismo comportamiento independientemente de la fracción de volumen o el tamaño de partícula. Este resultado puede tomarse como punto de inicio para estudios más profundos de las relaciones entre los efectos no radiativos y el desempeño de los láseres aleatorios, tanto en forma experimental como teórica.

Como en figuras anteriores, en la figura 3.13 se muestran los datos de los láseres basados en partículas de 200, 400 y 600 nm; la falta de luminiscencia en los láseres con partículas de 50 nm y la saturación de los láseres a base de partículas de 100 nm es la razón de no incluirlos en las gráficas. El efecto de la saturación en

la señal fototérmica se muestra en la figura 3.14.

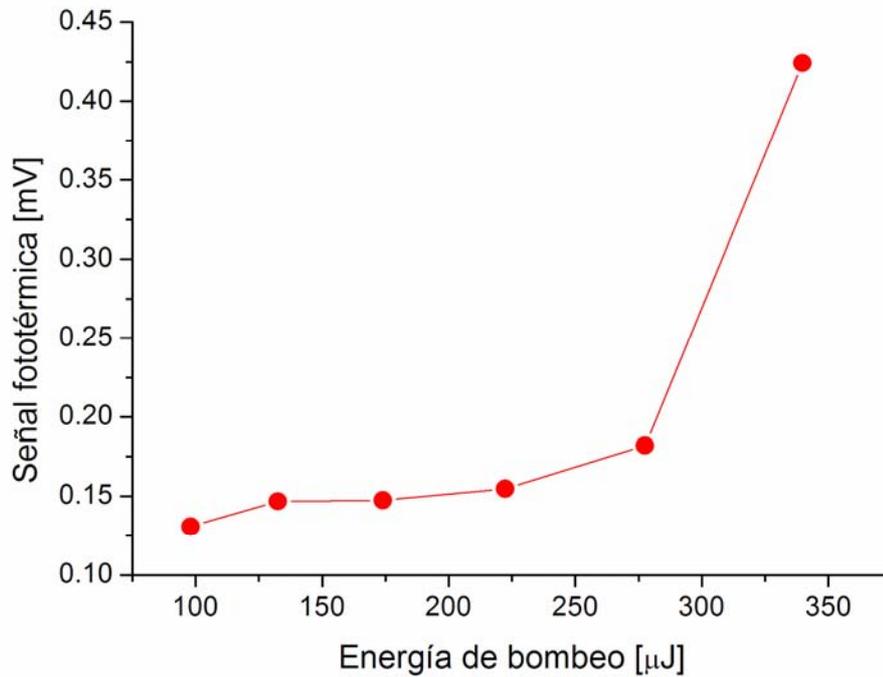


Figura 3.14 [JHC8]. Señal fototérmica contra energía de bombeo para un láser aleatorio que presenta régimen de saturación para las energías de bombeo más altas [JHC9]. Los datos de la figura corresponden a un láser aleatorio basado en partículas de 100 nm con una fracción de volumen de 1.17×10^{-2} .

La gráfica de la figura 3.14 muestra que el punto con mayor energía no sigue el comportamiento lineal de los puntos con menor energía. Esto se debe a que cuando el láser se satura, la energía que no es convertida en emisión láser, se pierde por procesos no radiativos y contribuye a la señal fototérmica. Nuevamente, este comportamiento es propio únicamente de los láseres con partículas esparsoras de 100 nm.

3.4. MEZCLAS CON DISTINTO TAMAÑO DE PARTÍCULA

Los medios esparsos complejos como el tejido biológico se caracterizan no sólo por sus centros esparsos aleatorios, sino por una distribución en los tamaños de sus centros de esparcimiento. Para estudiar los efectos de distintos tamaños de partícula en el medio esparsor de un láser aleatorio se realizaron distintas mezclas con las muestras preparadas anteriormente. En particular, se usaron las muestras correspondientes a las concentraciones que corresponden a los tamaños de 100 y 600 nm como lo muestra la tabla 3.1.

Tamaño de partícula [nm]	Fracción de volumen		
	a	b	c
100	5.84×10^{-2}	1.17×10^{-2}	2.33×10^{-2}
600	4.52×10^{-2}	9.03×10^{-3}	1.81×10^{-2}

Tabla 3.1 Tamaños de partícula y concentraciones usadas para los láseres aleatorios basados en mezclas de distintos tamaños de partícula.

Con el fin de que la fracción entre los tamaños de partícula se mantuviera con los menores cambios posibles se mezclaron las muestras 100a-600a, 100b-600b y 100c-600c. Además de fijar la fracción de volumen, las mezclas se realizaron para obtener 25%, 50% y 75% de las partículas de 100 nm. Posteriormente, se realizaron las mediciones como en las secciones anteriores. La figura 3.15 muestra la longitud de onda de emisión en función de la concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm.

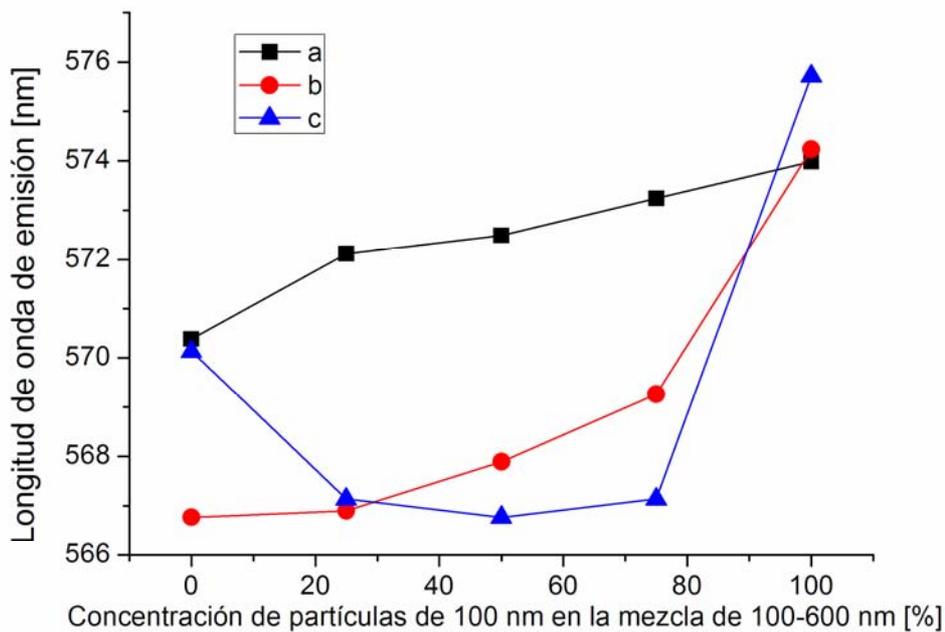


Figura 3.15. Longitud de onda de emisión contra concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm. Las curvas a,b y c representan distintas concentraciones de partículas y corresponden a las fracciones de volumen de la tabla 3.1. [JHC10]

La gráfica de la figura 3.15 se puede interpretar de manera similar a una gráfica para mezclas binarias en aleaciones metálicas. Adicionalmente a las mediciones de las mezclas, en la figura 3.15 y consecutivas se incluyen los datos para los láseres con partículas de sólo 100 nm y sólo 600 nm que corresponden a los puntos de 0% y 100%. Las diferentes curvas en la figura son los datos obtenidos para distintas concentraciones de partículas *a*, *b* y *c* correspondientes a la tabla 2.1. Para las concentraciones *a* y *b* las mezclas proporcionan longitudes de onda intermedias entre las longitudes de onda de emisión de las partículas de 100 y 600 nm independientes. Por otro lado, se observa que es posible obtener longitudes de onda menores para la concentración *b*. Esto es parecido al efecto observado con las partículas de 200 nm ilustrado en la figura 3.6. El rango de variación de longitud de onda vuelve a coincidir con lo reportado anteriormente en la literatura con trabajos teóricos que varían el índice de refracción de las partículas esparsoras [16].

Al igual que en la sección anterior, se calculó el umbral y la pendiente de la

curva de energías mediante un ajuste lineal, mientras que para caracterizar el comportamiento del ancho medio espectral se usó un ajuste exponencial. Las figuras 3.16 y 3.17 muestran el umbral y la pendiente del ajuste lineal para las distintas proporciones de partículas y las 3 concentraciones de partículas estudiadas.

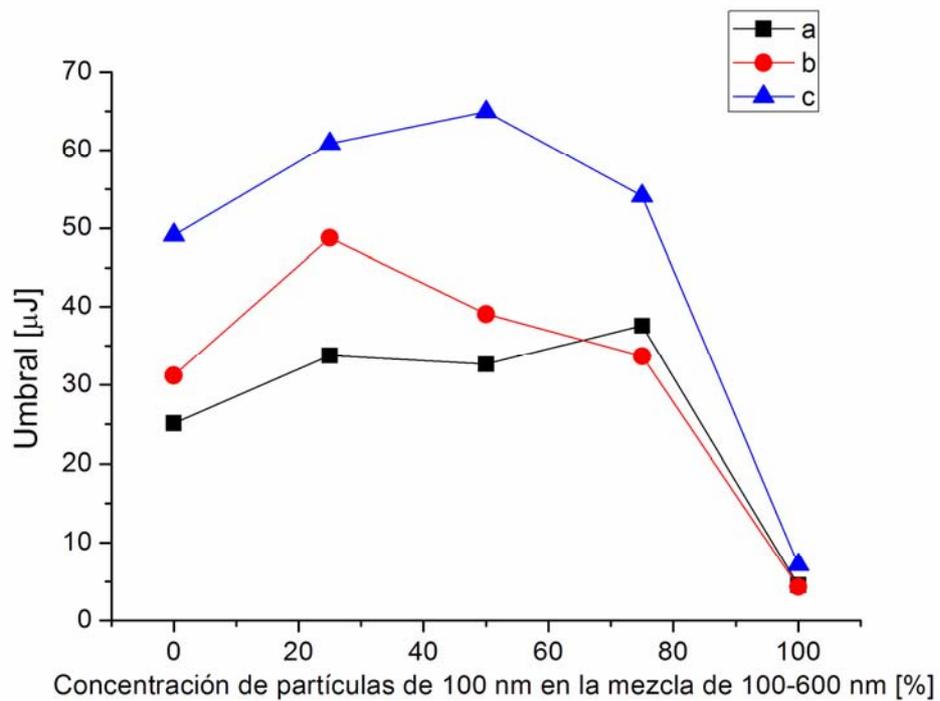
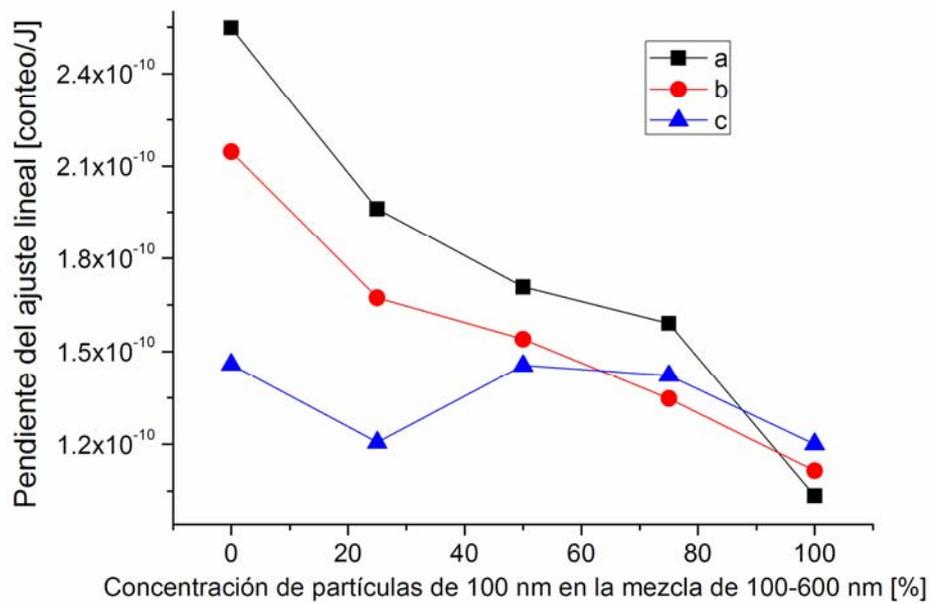


Tabla 3.16. Umbral contra concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm



[JHC11]

Figura 3.17. Pendiente del ajuste lineal contra concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm

El comportamiento de las curvas de la figura 3.16 se mantiene para las tres concentraciones. Se observa que el umbral incrementa arriba del obtenido para una concentración de 100% de partículas de 100 nm; el valor del umbral después decae a un valor menor correspondiente a 100% de partículas de 600 nm. En general, los umbrales altos en sistemas láser están relacionados con eficiencias bajas. Esto se puede observar al comparar las figuras 3.16 y 3.17. Los umbrales mayores corresponden a las pendientes menores y viceversa. La figura 3.17 muestra una rápida tendencia a los valores de las partículas de 600 nm. Esto hace menos eficiente al láser y la pendiente del ajuste lineal decrece.

Las curvas de $FWHM_0$ y factor de angostamiento contra proporción de partículas de 100 nm se muestran en las figuras 3.18 y 3.19.

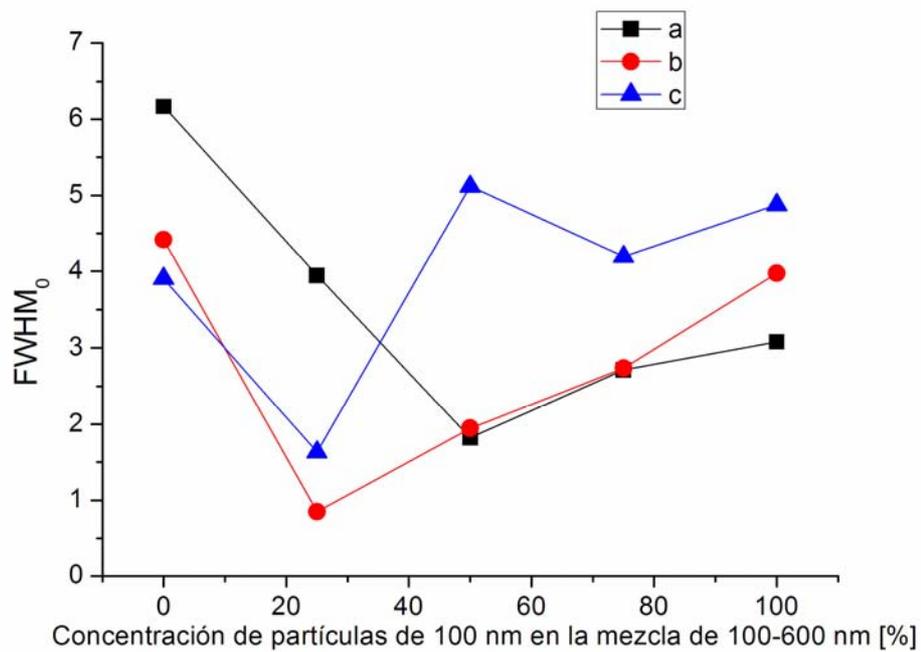


Tabla 3.18. FWHM₀ en función de la concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm

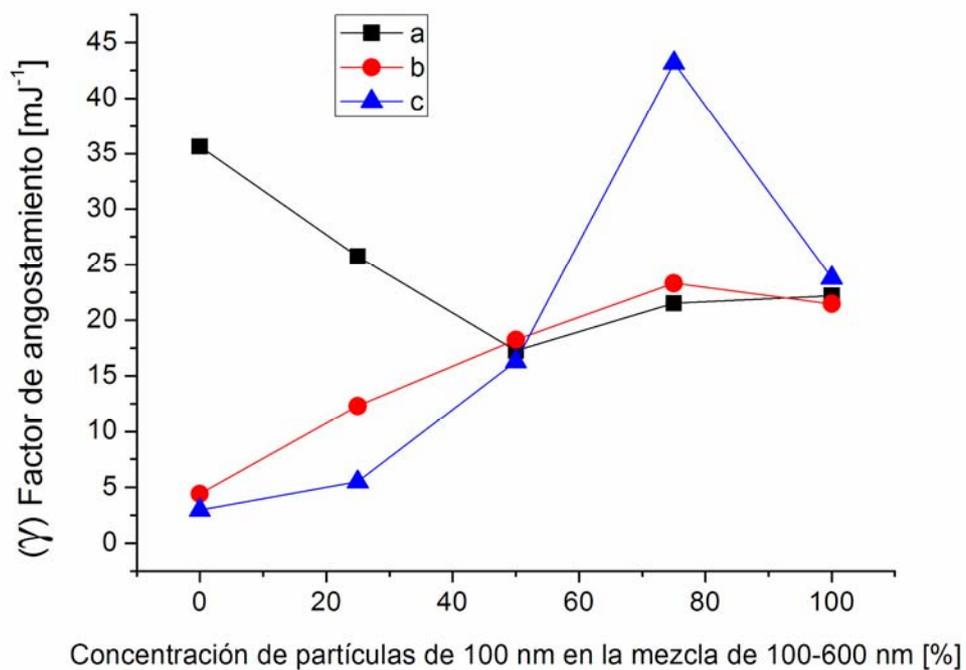


Figura 3.19. Factor de angostamiento contra concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm

De forma semejante al comportamiento del umbral, el $FWHM_0$ presenta valores menores en las mezclas que en los láseres basados en partículas de tamaño único. Esto permite tener láseres más angostos al mezclar dos tamaños de partícula distintos. La figura 3.19 muestra que es posible con las concentraciones b y c, obtener láseres que se angostan con menor energía de bombeo. Al analizar las figuras 3.16, 3.17, 3.18 y 3.19 se puede concluir que la mezcla de partículas mejora las características del ancho medio espectral pero disminuye la eficiencia de emisión láser.

Finalmente, en la figura 3.20 se muestra la relación entre la pendiente de la señal fototérmica obtenida a partir del ajuste lineal en función de la proporción de partículas de 100 nm.

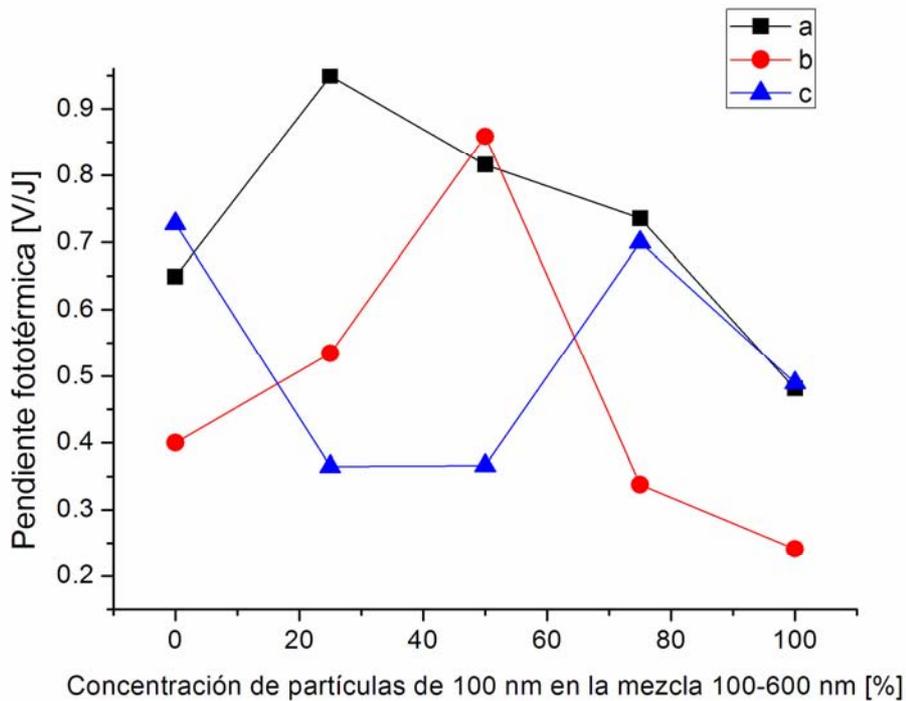


Figura 3.20. Pendiente de la señal fototérmica contra concentración de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm

En la figura 3.20 se distinguen dos comportamientos; en uno de ellos la pendiente fototérmica crece con la adición de partículas de 100 nm en la mezcla y después decrece hasta el valor del láser con partículas únicamente de 600 nm. Este comportamiento se presenta para las concentraciones a y b, mientras que para la

concentración c , la pendiente fototérmica disminuye con la adición de partículas de 100 nm, para después aumentar y llegar al valor final del láser con partículas únicamente de 600 nm [JHC12]. Esto quiere decir que para las concentraciones a y b las pérdidas se incrementan en los láseres aleatorios con mezclas de partículas. Para estas mismas concentraciones, la pendiente del ajuste lineal de la curva de energías (ver figura 3.17) tiene un comportamiento lineal y muestra que la eficiencia disminuye en los láseres con mezcla de partículas. Sin embargo, el comportamiento del láser aleatorio con mezcla de partículas y concentración c muestra cierta correspondencia entre las pendientes de los efectos radiativos con los no radiativos. La figura 3.21 muestra ambas pendientes en función de la proporción de partículas de 100 nm en la mezcla.

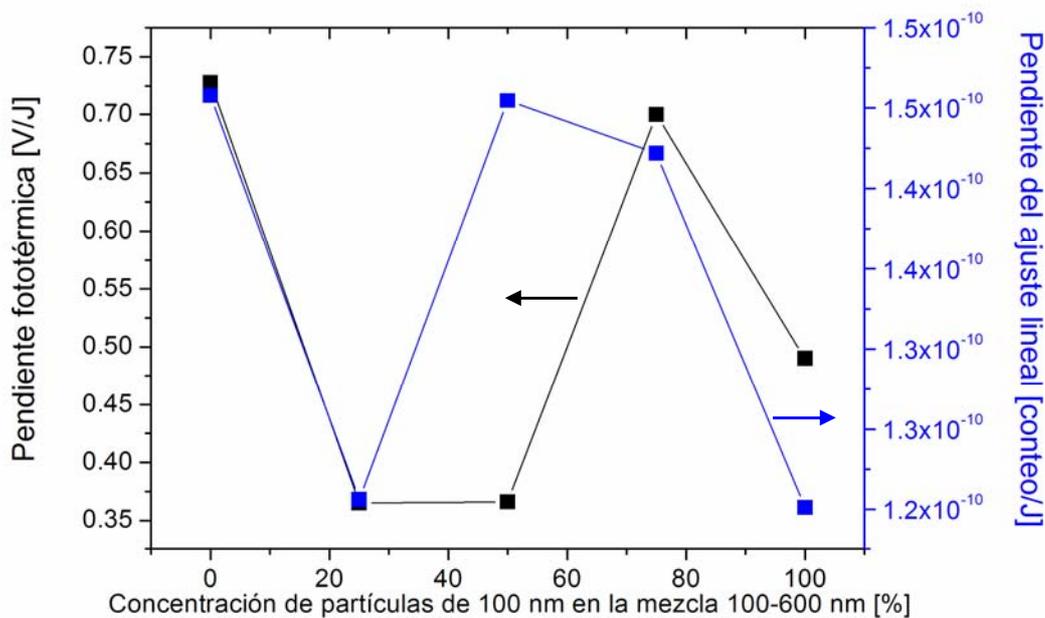


Figura 3.21. Pendiente de la señal fototérmica y pendiente del ajuste lineal en función de la proporción de partículas de 100 nm en la mezcla de 100-600 nm. La concentración para ambas curvas es la fracción de volumen c correspondiente a la tabla 3.1

La figura muestra que el comportamiento en ambas pendientes es similar para todas las proporciones de partículas excepto para la proporción 50%-50%. En este punto la pendiente de la señal fototérmica muestra un mínimo mientras que la pendiente de la energía radiativa muestra un máximo. Esto indica que el láser

aleatorio con una proporción de 50%-50% en la mezcla de 100-600 nm tiene una eficiencia mayor y pérdidas menores que con las otras proporciones de partículas.

En este capítulo se han mostrado los resultados del estudio de láseres aleatorios de tinte basados en partículas de SiO₂. En general se han estudiado los cambios en las características de algunos parámetros de la acción láser cuando existe variación en el medio esparsor y en el medio activo. Estos resultados pueden ser tomados como primera aproximación hacia sistemas aleatorios más complejos. En el siguiente capítulo se exponen las principales conclusiones de este estudio, además del trabajo a futuro y sus posibles aplicaciones.

CAPÍTULO 4

CONCLUSIONES

Se ha mostrado experimentalmente que el esparcimiento múltiple dentro de un medio activo puede generar angostamiento del espectro de emisión. Además, la luz que se emite de esta forma presenta un umbral de energía en su emisión, angostamiento dependiente de la energía de bombeo y longitud de onda de emisión distinta a la longitud de onda de emisión del medio activo. Lo anterior señala directamente hacia la acción láser aleatoria. En la emisión láser aleatoria, la función de los espejos de un láser convencional usados para lograr realimentación coherente es reemplazada por el esparcimiento múltiple y desordenado de centros esparsores de luz. Los resultados obtenidos en este trabajo han mostrado que es posible cambiar las características de emisión de un láser aleatorio según las condiciones del medio esparsores a las que sea expuesto. En los experimentos se lograron sintonías de hasta 7 nm y emisiones con ancho medio espectral de hasta 3 nm. En todos los parámetros de la emisión láser estudiados se observaron cambios cuando la concentración o el tamaño de partículas se modificaron. Estas características están relacionadas con el camino que recorre la luz en el medio activo antes de salir de la estructura aleatoria. En general, las características del haz láser aleatorio como la longitud de onda de emisión, el ancho medio espectral y el umbral de emisión dependen de la concentración y tamaño de partículas del medio esparsores. Tanto el número de partículas por unidad de volumen como el diámetro medio de las partículas modifican el camino aleatorio que la luz recorre dentro del material láser y por lo tanto, las características de la luz láser cambian.

La sintonía de los láseres aleatorios por medio de cambios en la concentración de partículas por unidad de volumen es un resultado particularmente importante de este trabajo. La sintonía se logra en un rango de aproximadamente 7 nm, que está dentro del orden de magnitud reportado en trabajos teóricos de láseres aleatorios en los cuales se modifica el índice de refracción de las partículas esparsores. La sintonización del láser mediante este mecanismo parece tener distintos regímenes de operación de acuerdo al

tamaño de partícula del medio esparsor. Como se observó en la figura 3.6, para tamaños de partícula de 100 y 400 nm, la sensibilidad de la longitud de onda de emisión con respecto a la fracción de volumen es mucho menor a la que muestran los láseres aleatorios basados en partículas de 200 y 600 nm. Lo anterior puede explicarse considerando efectos como las resonancias de Mie, que se presenta como una modulación del coeficiente de transmisión del medio en función de la longitud de onda [31]. Cuando existen resonancias de Mie en el medio esparsor, los láseres aleatorios presentan cambios mayores en la longitud de onda de emisión [JHC1] cuando el diámetro de las partículas esparsoras cambia. Por ejemplo, se han logrado sintonías de hasta 34 nm en láseres aleatorios cuando las partículas esparsoras cambian su diámetro de 200 a 1220 nm [31]. Sin embargo, para determinar las resonancias de Mie es necesario obtener los espectros de transmisión para cada concentración del medio esparsor, y además se requiere de un mayor contraste entre los índices de refracción de las partículas y el medio activo. Por otro lado, el tamaño y la concentración de las partículas esparsoras influyen directamente en la eficiencia del láser. Los resultados experimentales muestran que la eficiencia aumenta cuando la fracción de volumen de las partículas crece (figura 3.8), y esto indica que puede existir una concentración para la cual el láser aleatorio funciona de manera óptima. Sin embargo, los resultados aquí presentados no pueden ser concluyentes debido a que los comportamientos, en general, no muestran una tendencia definida.

Hasta ahora, no ha sido posible encontrar una relación directa entre los parámetros de desempeño del láser y las características del medio esparsor. Esto muestra lo complejo de la emisión estimulada en un medio aleatorio. Por la naturaleza del efecto láser aleatorio, la emisión estimulada se puede generar en volúmenes tan pequeños como unas décimas de micras cúbicas [16]. Esto quiere decir que las mediciones realizadas corresponden no a un solo resonador aleatorio, sino al promedio en tiempo, espacio y longitud de onda del conjunto de resonadores aleatorios generados en el volumen de interacción. A pesar de lo complejo de estos sistemas, los experimentos de este trabajo han mostrado que el ensamble estadístico de la emisión aleatoria también sufre cambios observables tanto por medios ópticos como por medios térmicos. Además, estos experimentos indican una clara orientación para futuros experimentos que busquen estudiar mejor la emisión láser aleatoria. Para un mejor estudio de la emisión láser aleatoria, los experimentos muestran que es necesario un

control en el volumen de interacción bombeo-medio láser; se requiere también una caracterización del medio esparsor que incluya espectros de transmisión, y también mayor resolución espectral para el análisis de la luz capturada. En cuanto a los efectos fototérmicos, es deseable también utilizar una técnica con mayor sensibilidad para adquirir las señales generadas por los efectos no radiativos en los láseres aleatorios.

Los resultados obtenidos con el análisis de las señales fototérmicas muestran que aunque los efectos radiativos y los no radiativos son complementarios, su comportamiento con respecto a las características del medio esparsor es muy similar. Esto puede observarse al comparar las figuras 3.8 y 3.13, donde se muestran las pendientes de los procesos radiativos y de los no radiativos con semejanzas notorias. Este vínculo puede ser muy importante en aplicaciones donde no sea posible capturar la emisión láser aleatoria de manera directa. Además, los resultados muestran que existe cierta relación entre la señal fototérmica y la longitud de onda de emisión. La longitud de onda de emisión y la pendiente fototérmica de las figuras 3.6 y 3.13 muestran un comportamiento muy parecido con respecto al tamaño y concentración de las partículas esparsoras. Esto indica que la señal fototérmica puede dar información del tamaño del resonador aleatorio o bien de un promedio del conjunto de resonadores. Lo anterior puede deberse también a una relación entre las pérdidas en el láser y la longitud de onda de resonancia en la cavidad aleatoria. Esta relación puede darse mediante la competencia de estados vibro rotacionales en el medio activo cuando existen cambios en las pérdidas del medio láser. Esto puede ser análogo a la sintonía por concentración de tinte, en donde distintas concentraciones de tinte resultan en distintas eficiencias y emisiones centradas en distintas longitudes de onda. En general, los efectos fototérmicos han sido muy poco estudiados en los sistemas láser y en el contexto de los láseres aleatorios aún no existen otros reportes de su estudio riguroso. Por lo anterior, incluir la técnica fototérmica en este trabajo adquiere especial importancia. Los siguientes trabajos de láseres aleatorios mediante técnicas fototérmicas pueden incluir análisis espectral de la señal fototérmica, además de varios sensores distribuidos en la muestra con el fin de obtener perfiles espaciales de la propagación fototérmica.

Los experimentos de láseres aleatorios basados en la mezcla de dos tamaños distintos de partículas esparsoras representa un mejor acercamiento al estudio de sistemas altamente complejos como el tejido biológico. Los resultados muestran

comportamientos no lineales para el ancho medio espectral ($FWHM_0$) y el umbral de emisión en función de la proporción de partículas en las mezclas. Por otro lado, la longitud de onda de emisión y la pendiente de la curva de energías muestran un comportamiento con mayor linealidad. Esto muestra el aumento de complejidad en el efecto láser aleatorio cuando los tamaños de las partículas esparsoras son distintos. El comportamiento altamente no lineal de los láseres con mezclas de tamaño de partículas puede deberse al acoplamiento y competencia entre resonadores aleatorios debidos a distintos ensambles de partículas. Esto podría ser semejante al comportamiento de láseres convencionales con tres espejos. Cuando existen dos cavidades acopladas con ganancia en un sistema láser, los efectos de emisión estimulada compiten entre los modos de ambas cavidades y en general, la descripción de estos sistemas se torna mucho mas compleja. Sin embargo, este tipo de experimentos son importantes para comprender como la sensibilidad de estos sistemas a una pequeña proporción de partículas de tamaño distinto en la mezcla puede ser de gran utilidad en la detección temprana de crecimiento anómalo en tejido biológico [JHC2] [10, 13].

Los experimentos aquí presentados pueden ser de gran utilidad en aplicaciones biomédicas. Actualmente se estudia en distintos grupos de investigación en el mundo la posibilidad de caracterizar estructura biológica compleja a través de los parámetros de la emisión láser aleatoria [2]. En experimentos recientes realizados en el Instituto de Investigaciones en Materiales se ha logrado observar el efecto láser aleatorio usando como matriz esparsora una muestra de pericardio bovino, así como hidroxiapatita sintetizada en el mismo Instituto. En estos experimentos, los materiales son preparados en una solución de etanol y Rodamina 6G a una concentración de 1g/L. Después, las muestras son irradiadas con pulsos láser de bombeo a una longitud de onda de 532 nm y la emisión láser aleatoria es capturada con un arreglo muy similar al que se utilizó en este trabajo. Las figuras 4.1 y 4.2 muestran los espectros de emisión correspondientes al pericardio bovino y a la hidroxiapatita para distintas energías de bombeo.

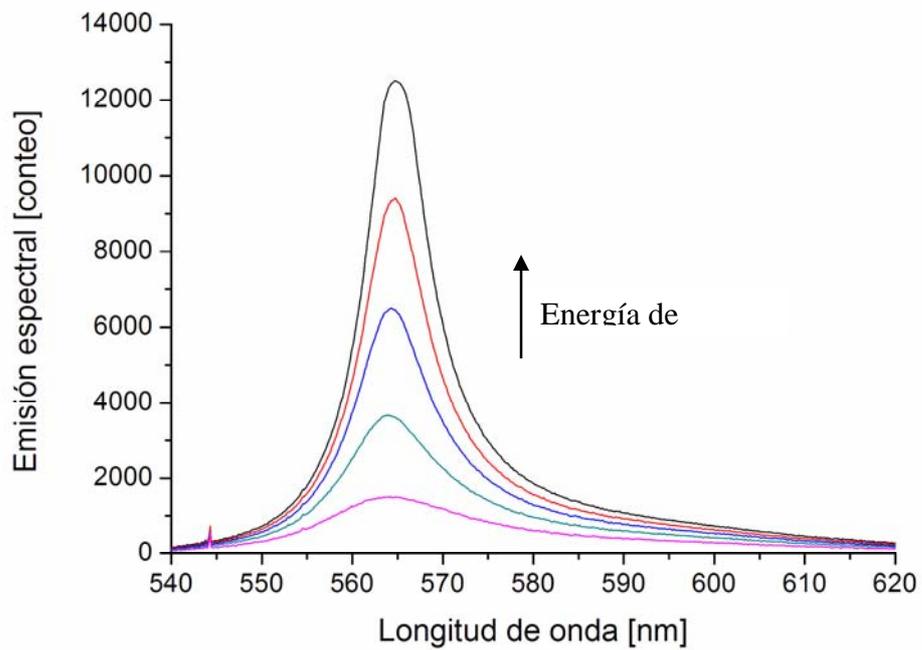


Figura 4.1. Espectros de emisión de pericardio bovino con solución de R6G para diferentes energías de bombeo.

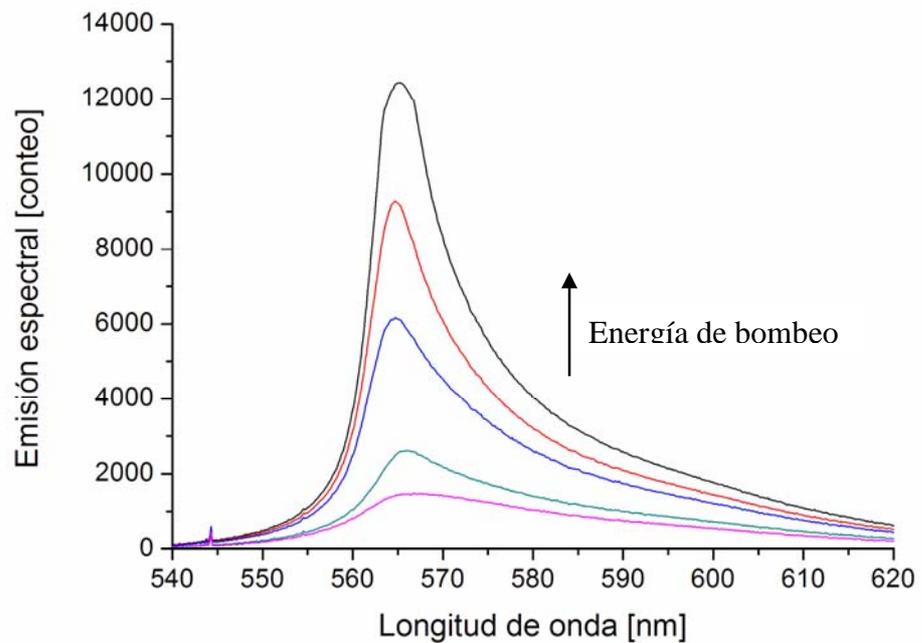


Figura 4.2. Espectros de emisión de hidroxiapatita con solución de R6G para diferentes energías de bombeo.

Como se puede observar en las figuras, la emisión espectral en ambos casos

tiene un ancho medio espectral menor que la emisión de fluorescencia de la R6G. Para ambos casos, el FWHM de la emisión espectral con mayor energía de bombeo es del orden de 10 nm. Este valor es mayor comparado con los resultados de los láseres aleatorios basados en SiO₂ presentados en secciones anteriores. Estos experimentos preliminares indican que tejidos como el pericardio bovino, el tejido oseó y otros más pueden ser usados como medio esparsor en láseres aleatorios. Además, estos últimos resultados muestran que no sólo se presenta angostamiento espectral, sino que la forma de la emisión espectral muestra claras diferencias entre el tejido de pericardio y la hidroxiapatita. La figura 4.3 muestra los espectros de emisión para el tejido de pericardio y para la hidroxiapatita con la mayor energía de bombeo utilizada.

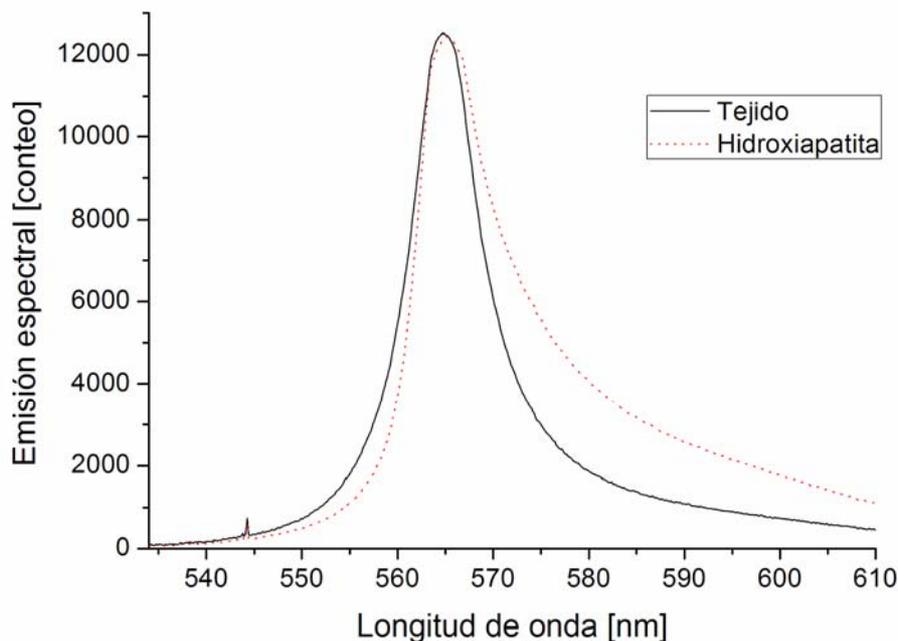


Figura 4.3. Espectros de emisión de pericardio de bovino y de hidroxiapatita preparadas en una solución de R6G.

En la figura se observa que ambas emisiones espectrales están centradas en la misma longitud de onda que está aproximadamente a 565 nm. A pesar que las dos emisiones espectrales tienen la misma longitud de onda de emisión, la emisión con base en el tejido de pericardio muestra mayor simetría. Por otro lado, la emisión a partir de hidroxiapatita muestra ensanchamiento para longitudes de onda mayores. Esto indica que el análisis de la emisión láser aleatoria puede ser útil para caracterizar materiales

complejos con base en su estructura esparsora.

En fechas muy recientes se ha publicado un estudio muy parecido al expuesto aquí [32]. Una de las diferencias esenciales entre los trabajos es el uso de partículas de Aluminio en lugar de SiO_2 como se presenta aquí. Esto genera que el medio esparsor en el caso del Aluminio absorba más cantidad de luz y los láseres sean menos eficientes. Además, como lo muestra este trabajo, la eficiencia de los láseres aleatorios puede ser estimada a través de la señal fototérmica, por lo que se tendría una señal fototérmica mayor para los láseres aleatorios basados en Aluminio. Por otro lado, los láseres aleatorios basados en distintos tamaños de partículas no ha sido reportado hasta la fecha.

La técnica de emisión láser aleatoria tiene el potencial de ser usada en la caracterización de flujos micrométricos así como en el estudio de fluidos bifásicos, en donde el mecanismo de esparcimiento múltiple puede ser generado por flujos de burbujas. Hasta ahora, existen aún muchas cosas por resolver en el complejo estudio de la emisión láser aleatoria. Sin embargo, hay ya una importante tendencia hacia las aplicaciones basadas en este fenómeno. Los estudios futuros en láseres aleatorios deben proporcionar elementos suficientes para considerar a la emisión láser aleatoria una alternativa real en problemas como la caracterización de materiales o el diagnóstico de tejido. De cualquier forma, la emisión estimulada dentro de un medio aleatorio abre una nueva línea de investigación ya sea en el área de la ciencia básica o como en el área de las aplicaciones biomédicas.

REFERENCIAS

1. Saleh, B., Teich, M., *“Fundamentals of Photonics,”* Second Edition, John Wiley & Sons, USA, 2007, pp 540.
2. Diederik S. Wiersma, “Random lasers explained,” *Nature Photonics*, vol. 3, pp. 246-247, 2009.
3. Qinghai Song, Zhengbin Xu, Seung Ho Choi, Xuanhao Sun, Shumin Xiao, Ozan Akkus, Young L. Kim, “Detection of nanoscale structural changes in bone using random lasers,” *Optics Letters*, vol. 35, no. 15, pp. 2624-2626, 2010.
4. Qinghai Song, Shumin Xiao, Zhengbin Xu, Vladimir M. Shalaev, Young L. Kim, “Random Laser spectroscopy for nanoscale perturbation sensing,” *Nature Photonics*, vol. 2, no. 11, pp. 2278-2281, 1999.
5. Malte C. Gather, Seok Hyun Yun, “Single-cell biological lasers,” *Physical Review Letters*, Junio, 2011.
6. H. Cao, Y. G. Zhao, “Random Laser Action in Semiconductor Powder,” *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 11, pp. 2278-2281, 1999.
7. C. R. Lee, S. H. Lin, C.H. Guo, S. H. Chang, T. S. Mo y S. C. Chu, “All-optically controllable random laser based on a dye-doped polymer-dispersed liquid crystal with nano- sized droplets,” *Optics Express*, vol. 18, no. 3, pp. 2406-2412, 2010
8. Y. L. Chen, C. L. Chen, H. Y. Lin, C. W. Chen, Y. F. Chen, Y. Hung, C. Y. Mou, “Enhancement of random lasing based on the composite consisting of nanospheres embedded in nanorods template,” *Optics Express*, vol. 17, no. 15, pp. 12706-12713, 2009.
9. Xiangyang Ma, Peiliang Chen, Dongsheng Li, Yuanyuan Zhang, Deren Yang, “Electrically pumped ZnO film ultraviolet random lasers on silicon substrate,” *Applied Physics Letters*, vol. 91, no 25, pp. 1109-1111, 2007.
10. Polson, R. C. Varden, Z. V. “Random lasing in human tissues,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, no. 7, pp. 1289–1291, 2004
11. Anthony E. Siegman, *“Lasers,”* University Science Books, Cap. 13, 1986.
12. Hong Fu, H. Haken, “Semiclassical theory of dye lasers: the single-frequency and multifrequency steady states of operation,” *Journal of Optical Society of America B*, vol. 5, no. 5, pp. 899-908, 1988.
13. Polson, R. C. Varden, Z. V. “Cancerous tissue mapping from random lasing emission spectra,” *Journal of Optics*, vol. 12, no. 2, pp. 4010-4014, 2010
14. Yujie Chen, Johannes Herrnsdorf, Benoit Guilhabert, Yanfeng Zhang, Ian M. Watson, Erdan Gu, Nicolas Laurand, Martin D. Dawson, “Colloidal quantum dot random laser,” *Optics Express*, vol. 19, no 4, pp. 2996-3002, 2011.
15. Diederik S. Wiersma, Stefano Cavaleri, “Temperature-controlled random laser action in liquid crystal infiltrated systems,” *Physical Review E*, vol. 66, no. 5, pp. 123-128, 2002.

16. J. Andeasen, A. A. Asatryan, L. C. Botten, M. A. Byrne, H. Cao, L. Ge, L. Labonté, P. Sebahh, A. D. Stone, H. E. Türeci and C. Vanneste, "Modes of random lasers," *Advances in Optics and Photonics*, vol. 3, no 1, pp. 88-127, 2011.
17. Tahereh Mokhtari, Christopher M. Sorensen, Amit Chakrabarti, "Multiple-scattering effects on static light-scattering optical structure factor measurements," *Applied Optics*, vol 14, no 36, pp. 7858-7861, 2005.
18. J Kitur, G Zhu, M Bahoura, M A Noginov, "Dependence of the random laser behavior on the concentrations of dye and scatterers," *Journal of Optics*, vol. 12, no 2, pp. 4009-4013, 2010.
19. Xunya Jiang, C. M. Soukoulis, "Time dependent theory for random lasers," *Physical Review Letters*, vol. 85, no 1, pp. 70-73, 2000
20. Song-Liang Chua, Yidong Chong, A. Douglas Stone, Marin Soljacic, Jorge Bravo-Abad, "Low-threshold lasing action in photonic crystal slabs enabled by Fano resonances," *Optics Express*, vol. 19, no. 2, pp. 1539-1562, 2011.
21. C. K. N. Pattel, A. C. Tam, "Applications of photoacoustic sensing techniques," *Review of Modern Physics*, vol. 58, no. 2, pp. 381-431, 1986
22. H. M. Lai, K. Young, "Theory of the pulsed optoacoustic technique," *Journal of Acoustic Society of America*, vol. 72, no. 6, pp. 2000-2007, 1982.
23. S. Marchetti, M. Giorgi, R. Simili, "A simple, broad band, large size, sensitive, calibrated, PVDF light detector," *Infrared Physics and Technology*, vol. 37, no. 2, pp. 239-243, 1996.
24. Crescencio García-Segundo, "Fotofísica en medios condensados: caracterización de láseres de colorante," Tesis doctoral, INAOE, 1996.
25. Roberto Sato-Berrú, José M. Saniger, José Flores-Flores, María Sanchez-Espíndola, "Simple method for the controlled growth fo SiO₂ spheres," por publicar.
26. Rosa Quispe-Sicha, Crescencio García-Segundo, Roberto Sato-Berrú, José Flores-Flores, Bartolomé Reyes Ramírez, Nidiyare Hevia Montiel, Fernando Arámbula Cosio, "Implementation of the Polyvynil-alcohol mixed with nano-particles as a near representation of biological tissue: ultrasonic and photothermal study," *Proceedings of 1st international congress on instrumentation and applied sciences*, México, 2010.
27. Ana Martínez Vázquez, *coordinadora*, "Cien preguntas y cien respuestas sobre materiales." Primera edición, Editorial Terracota, México, 2011, pp 160.
28. Masaki Torimura, Shinya Kurata, Kazutaka Yamada, "Fluorescence-Quenching Phenomenon by Photoinduced Electron Transfer between a Fluorescent Dye and a Nucleotide Base," *Analytical Sciences*, vol. 17, pp. 155-160, 2001.
29. V. V. Sherstnev, A. Krier, G. Hill, "High tenability and superluminescence in InAs mid-infrared light emitting diodes," *Journal of Physics D: Applied Physics* , vol. 35, pp. 196-198, 2002.

30. T. W. Hansch, "Repetitively Pulsed Tunable Dye Laser for High Resolution Spectroscopy," *Applied Optics* , vol. 11, no. 4 pp. 895-898, 1972.
31. Stefano Gottardo, Riccardo Sapienza, Pedro D. García, Alvaro Blanco, Diederik S. Wiersma, Cefe Lopez "Resonance-driven random lasing," *Nature Photonics* , vol. 2, pp. 429-432, 2008.
32. Liling Yang, Guoying Feng, Jiayu Yu, Ke Yao, Guoliang Deng, Shouhuan Zhou "Effective Random Laser Action in Rhodamine 6G with Al Nanoparticles," to be published in *Applied Optics*, 2011.

BIBLIOGRAFÍA

- Saleh, B. and Teich, M., “Fundamentals of Photonics,” John Wiley & Sons, USA, 1997.
- Hetch, E. y Zajac, A., “Óptica,” Fondo Interamericano, S.A., EUA, 1997.
- Siegman, “Lasers,” University Science Books, 1986.