

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

INSTITUTO DE FÍSICA

# **Caracterização Ótica de Sistemas Espalhadores por Retroespalhamento Coerente**

Henrique Rublescki Mezzomo

Trabalho de Conclusão de Curso apresentado para a obtenção do grau de Bacharel no Curso de Física.

Orientador: Prof. Dr. Ricardo Rego Bordalo Correia

Porto Alegre - RS

Janeiro de 2018

# Resumo

Neste trabalho buscou-se descrever a teoria e a técnica dos chamados fenômenos de retroespalhamento coerente. Será descrita a origem física do fenômeno e algumas aplicações atuais que demonstram o alcance do mesmo. Além disso, será relatada experiência de laboratório de montagem de um experimento de retroespalhamento coerente, onde por meio da interação de luz coerente com uma suspensão com partículas aleatoriamente dispersas foi obtido a intensidade refletida na direção de retroespalhamento. Em seguida, será descrita a coleta e tratamento dos dados obtidos para suspensões de nanoesferas e nanotubos de  $Ta_2O_5$ . Dentro das perspectivas de futuros tópicos de pesquisa foi discutida a alteração do sistema pela adição de uma fonte de luz coerente pulsada que permita obter mais informações sobre o sistema.

# Abstract

In this work, i aim to depict the technique and theory of the so called enhanced backscattering phenomena. The physical origin of the phenomena will be discussed and a few current applications which show the range of the phenomena will be shown. The experimental setup of a measurement of enhanced backscattering will be discussed, where for the interaction of coherent light with a suspension of randomly distributed particles the backscattered light intensity was obtained. Lastly, the data acquisition and analysis for a colloidal suspension of  $Ta_2O_5$  nanotubes and nanospheres will be showed. Within the perspective of future research topics it was discussud to alter the system by adding a continuous coherent pulsed light source which allow us to obtain more information about the system be made.

# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>5</b>
1.1	Livre Caminho Médio . . . . .	6
1.2	Origem do Restroespalhamento Coerente . . . . .	8
1.2.1	Cone de Restroespalhamento . . . . .	10
<b>2</b>	<b>Estado da Arte</b>	<b>15</b>
2.1	Experimentos Clássicos . . . . .	15
2.1.1	Montagem por van Albada e Lagendijk . . . . .	15
2.1.2	Montagem por Wolf e Maret . . . . .	17
2.2	Restroespalhamento Coerente de luz Raman . . . . .	20
2.3	Restroespalhamento Coerente por Átomos Frios . . . . .	22
<b>3</b>	<b>Medidas de Restroespalhamento Coerente da Luz em Diferentes Sistemas</b>	<b>24</b>
3.1	Montagem Experimental . . . . .	24
3.2	Medidas e Análise de Dados . . . . .	28
3.3	Adaptação Para Feixe de Supercontínuo . . . . .	30
<b>4</b>	<b>Conclusões e Discussões</b>	<b>35</b>
	<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>36</b>

# Capítulo 1

## Introdução

Buscamos neste trabalho descrever determinados regimes de interação entre a luz e matéria que nos permite por meio de montagens experimentais relativamente simples obter informações referentes a essa interação.

A interação da luz com a matéria pode basicamente ser definida em dois fenômenos: absorção e espalhamento. A absorção ocorre quando a matéria absorve totalmente o quanta de radiação incidente, podendo ela reemitir parte da energia desta radiação em outro comprimento de onda. O espalhamento inelástico ocorre quando apenas parte da energia do quanta é absorvida, tendo uma mudança no comprimento de onda da radiação. No caso do espalhamento elástico, a luz incide sobre uma partícula e é espalhada mantendo o mesmo comprimento de onda, mas sua direção pode ser modificada.

Em sistemas espalhadores podemos encontrar diferentes regimes de espalhamento como o espalhamento único, onde a luz sofre um único espalhamento ao passar pela amostra e o espalhamento múltiplo, quando a luz sofre vários eventos de espalhamento. Nas próximas seções definiremos as condições destes diferentes regimes.

É claro que o tipo de interação não irá depender apenas da radiação. Diferentes materiais terão diferentes respostas e poderão ser analisado em diferentes regimes de interação entre a luz e a matéria. Materiais metálicos sólidos em volume ("bulk matter") irão interagir de forma diferente com radiação do que, por exemplo, nanopartículas desse mesmo material. Os diferentes estados do material darão origem a diferentes fenômenos que podem ser explorados para obtenção de características do mesmo.

O fenômeno físico que dá origem ao chamado retroespalhamento coerente abordado nesse trabalho é dito localização fraca da luz. Nele, o fato de luz coerente propagar em um meio com grande número de partículas aleatoriamente dispersos faz com que exista uma intensidade luminosa refletida na direção de incidência da luz maior do que a prevista pela

teoria de propagação clássica. Esse tipo de fenômeno foi estudado primeiramente em relação à propagação de elétrons em metais com alto grau de impurezas. Fenômenos análogos aos descritos neste trabalho para a luz, foram previstos e observados para esses sistemas, onde foram observadas correções a condutividade elétrica de metais por conta desses fenômenos.

Tanto elétrons, descritos quanticamente por ondas de probabilidade, quanto a luz, descrita pelas equações de Maxwell, portanto como onda, estão sujeitos a esse tipo de fenômeno quando propagando em meios onde ocorrem um grande número de espalhamentos e os centros espalhadores estão aleatoriamente distribuídos. Podemos ver que o fenômeno de localização fraca não é característico de sistemas quânticos, como se pensou ao observar esse tipo de fenômenos para elétrons, mas sim característico de entes cuja propagação é descrita por uma equação de onda.

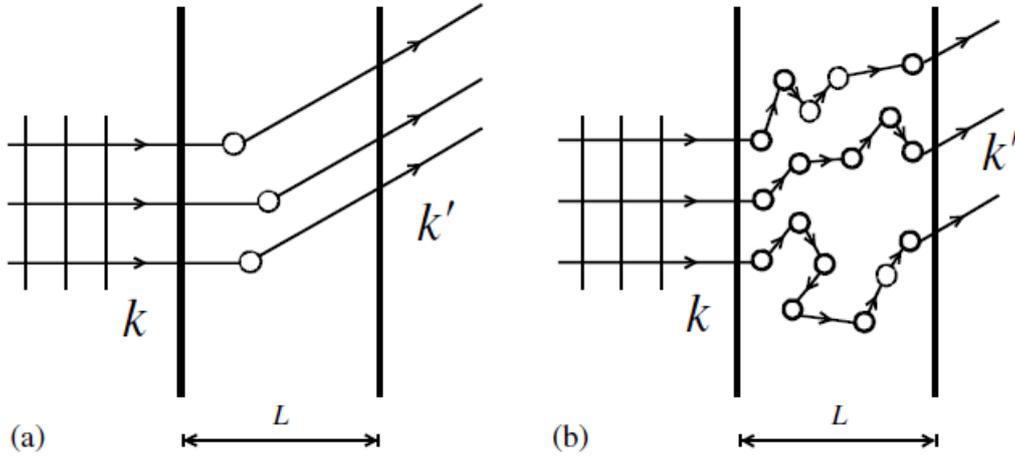
Buscamos neste trabalho, descrever efeitos da interação elástica de radiação eletromagnética coerente com partículas dispersas aleatoriamente num meio, de modo a fazer uma caracterização de propriedades óticas desta solução coloidal.

## 1.1 Livre Caminho Médio

Os diferentes regimes de espalhamento são caracterizados por algumas relações entre grandezas características dos sistemas e da luz incidente. No caso de distribuições aleatórias, buscamos obter valores médios que nos forneçam informações sobre o sistema. Quando uma onda plana incide sobre uma amostra pouco espalhadora, isto é, com baixa densidade de partículas, sua intensidade será atenuada exponencialmente ao se propagar uma distância  $z$  dentro da amostra, além de também ser dependente do livre caminho médio de espalhamento ( $l_s$ ) conforme a equação 1.1.1,

$$I(z) = I(0) \exp\left(\frac{-z}{l_s}\right). \quad (1.1.1)$$

O livre caminho médio de espalhamento  $l_s$  é a distância média entre dois eventos consecutivos de espalhamento que a luz sofre dentro da amostra. Para determinarmos o regime de espalhamento que se encontra o sistema, devemos fazer comparações e estabelecer relações entre o livre caminho médio de espalhamento ( $l_s$ ), o livre caminho médio de transporte ( $l_t$ ), o comprimento do meio ( $L$ ) onde estão dispersos os espalhadores e o comprimento de onda da luz  $\lambda$ . No caso do espalhamento único em que o processo de espalhamento esteja dentro da relação  $L \ll l_s$ , observamos que o fóton terá uma probabilidade muito pequena de ser espalhado, como apresentado na figura 1.1(a). Ainda na figura 1, podemos observar que a



**Figura 1.1:** Espalhamento único a) e múltiplo b).Retirado de [2]

grandeza  $l_s$  está relacionada a concentração de partículas espalhadoras ( $\rho$ ), além de também estar relacionada a sua seção de choque diferencial de espalhamento ( $\sigma_s$ ) da forma  $l_s = \frac{1}{\rho\sigma_s}$ .

Na figura 1b apresentamos a situação em que  $L \lesssim l_t$ . Podemos observar que apesar da luz sofrer múltiplos espalhamentos o regime ainda é balístico. Nesta situação, a luz sofre múltiplos espalhamentos aleatórios, mas deixa o sistema antes que ela perca totalmente a informação de onde veio. Neste regime, a grandeza que se torna importante para caracterizar o regime de espalhamento é o livre caminho médio de transporte ( $l_t$ ). O livre caminho médio de transporte ( $l_t$ ) é distância na qual o fóton perde a informação de sua direção original de incidência (Fig 1.2). O mesmo está relacionado ao livre caminho médio de espalhamento pela relação

$$l_t = \frac{l_s}{1 - \langle \cos\theta \rangle}, \quad (1.1.2)$$

onde  $\langle \cos\theta \rangle$ , é o valor médio do cosseno do ângulo entre as direções de espalhamento e incidência. Na equação 1.1.2 podemos observar que quando  $\langle \cos\theta \rangle = 0$ ,  $l_s = l_t$ . Quando  $\langle \cos\theta \rangle \neq 0$ , o livre caminho médio de transporte será maior que o livre caminho médio de espalhamento.

Quando o sistema estiver sob a condição em que  $\lambda < l_t < L$ , dizemos que o sistema está sob o regime difusivo, pois perdeu a informação referente a sua direção de incidência já que o mesmo percorreu dentro da amostra uma distância maior que  $l_t$ , a propagação do fóton no meio se encontra no regime difusivo com espalhamento múltiplo dos fótons. Neste regime a luz segue um modelo de "random walk" através do sistema caracterizado pelo coeficiente de

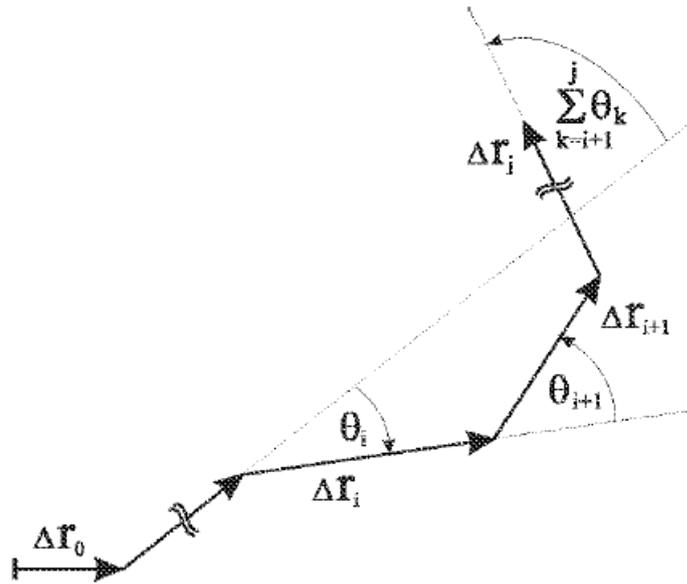


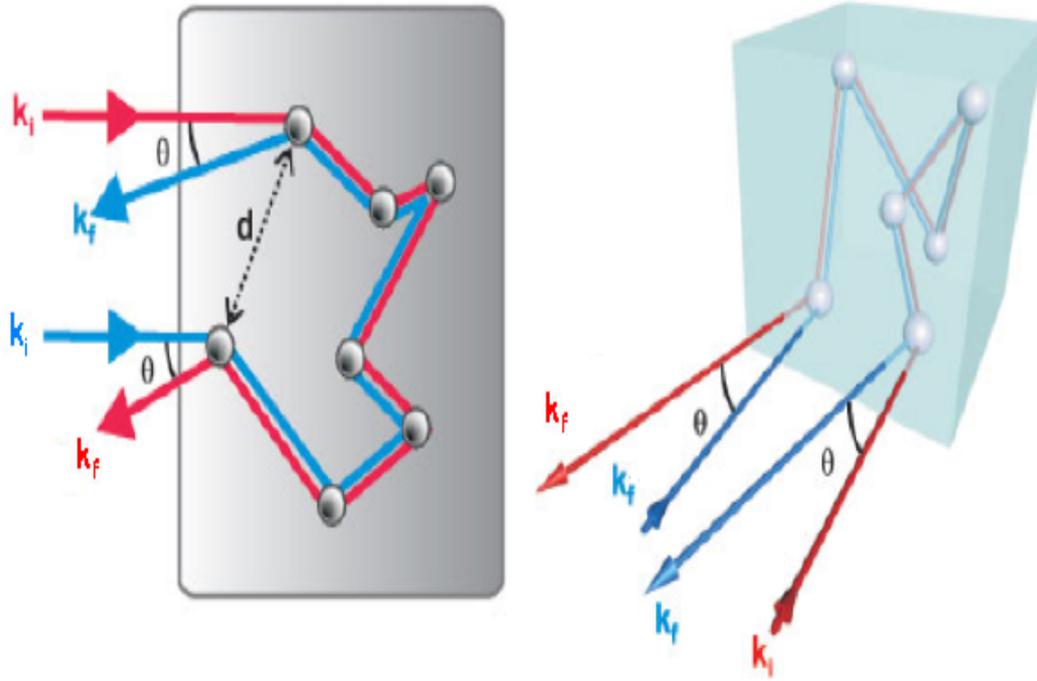
Figura 1.2: Livre caminho de transporte da luz. Figura retirada de [1]

difusão  $D$ . Neste regime podem surgir fenômenos coerentes, em especial, a localização fraca da luz. Esse fenômeno ocorre quando dois fótons percorrerem o mesmo caminho de forma reversa (figura 1.3). O último regime de espalhamento é conhecido como localização de Anderson, neste regime a luz é localizada espacialmente e obedece o critério de Ioffe-Regel dado por  $l_t \sim \lambda/2\pi$ .

## 1.2 Origem do Restroespalhamento Coerente

No regime difusivo temos a localização fraca da luz, e sob essa condição temos o fenômeno chamado de retroespalhamento coerente. Este fenômeno surge da propagação de radiação eletromagnética coerente num meio turbido, onde temos uma grande quantidade de partículas aleatoriamente dispersas. O fato de haver uma simetria de reversão temporal dá origem a fenômenos de interferência que não ocorrem no regime de propagação balística da luz.

O fenômeno que gera o sinal de retroespalhamento coerente pode ser visto na figura 1.3 onde podemos ver que os vetores que descrevem a propagação de duas ondas com momentos reversos, isto é, ondas que percorrem o mesmo trajeto em direções contrárias e portanto percorrem o mesmo caminho óptico dentro da amostra. Considerando que ambas ondas sofreram um número  $n$  de espalhamentos tal que  $k_i$  é espalhado pelos centros espalhadores  $r_1, r_a, r_b, \dots, r_2$ , e após o último espalhamento é descrito por  $k_f$ , uma outra onda incide com



**Figura 1.3:** Fenômeno de espalhamento de ondas com momento reversos dando origem a retroespalhamento coerente

vetor  $k_i$  e sofre o espalhamento no caminho exatamente contrário  $r_2, ..r_b, r_c, r_1$ , sendo também descrito por  $k_f$  após o último espalhamento. Teremos, portanto, que as ondas  $k_f$  de ambas sequências de espalhamento estarão em fase quando espalhadas pela última vez. A propagação da luz entre dois pontos pode ser descrita por [2]

$$A(k_i, k_f) = \sum_{r_1, r_2} f(r_1, r_2) e^{i(k_i \cdot r_1 - k_f \cdot r_2)} \quad (1.2.1)$$

onde  $f(r_1, r_2)$  é amplitude complexa que corresponde a propagação entre dois eventos de espalhamento localizados em  $r_1$  e  $r_2$ . A intensidade será dada por

$$|A(k_i, k_f)|^2 = \sum_{r_1, r_2} f(r_1, r_2) f^*(r_2, r_1) e^{i(k_i r_1 - k_f r_2)} e^{i(k_i r_2 - k_f r_1)} \quad (1.2.2)$$

e teremos portanto

$$|A(k_i, k_f)|^2 = \sum_{r_1, r_2} |f(r_1, r_2)|^2 [1 + e^{i(k_i + k_f)(r_1 - r_2)}] \quad (1.2.3)$$

onde teremos um primeiro termo de intensidade relativo a parte incoerente e um segundo termo que dependerá da relação entre  $k_i$  e  $k_f$ . Para vetores  $k_i$  e  $k_f$  sem relação, a diferença de

fase será aleatória, e irá contribuir de forma incoerente. No caso em que  $k_i + k_f = 0$ , teremos o caso do retroespalhamento, onde  $\theta$  o ângulo em relação a direção de retroespalhamento é zero. Podemos ver então que a intensidade será o dobro na direção de retroespalhamento.

### 1.2.1 Cone de Retroespalhamento

As ondas de momento reverso percorrerão um caminho ótico idêntico entre o primeiro e último espalhamento. Como podemos ver na figura 1.4 haverá uma diferença de fase entre as ondas com momentos reversos por conta da diferença de caminho existente entre a onda emitida na direção de retroespalhamento pelos centros espalhadores localizados em  $r_2$  e  $r_1$  que será dada por  $(d_2 - d_1)$ , que conseqüentemente gerará uma diferença de fase entre as ondas dada por

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda}(d_2 - d_1). \quad (1.2.4)$$

Essa diferença de fase pode ser escrita como na equação 1.2.3 e teremos portanto

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda}(\vec{k}_f + \vec{k}_i) \cdot (\vec{r}_n - \vec{r}_1) \quad (1.2.5)$$

Essa expressão pode ser simplificada fazendo certas considerações sobre o sistema analisado, temos que  $|\vec{r}_n - \vec{r}_1|$  é expresso por  $R$ , a distância entre o primeiro e último espalhador, enquanto  $\alpha$  é o ângulo entre o vetor  $\vec{k}_f + \vec{k}_i$  e  $\vec{r}_n - \vec{r}_1$  e

$$|\vec{k}_f + \vec{k}_i| = 2k \left| \text{sen} \left( \frac{\theta}{2} \right) \right| \quad (1.2.6)$$

obtendo a expressão

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2 \text{sen} \left( \frac{\theta}{2} \right) R \cos \alpha \quad (1.2.7)$$

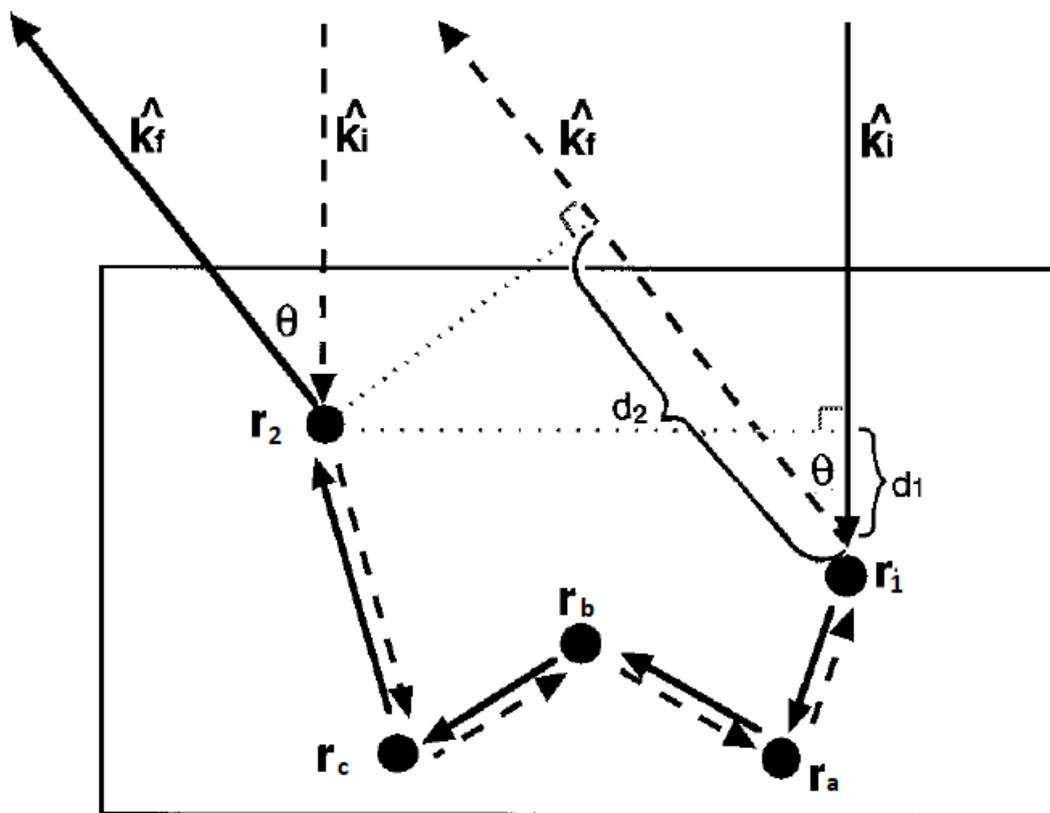
Para pequenos ângulos em torno da direção de retroespalhamento, podemos aproximar  $\text{sen} \frac{\theta}{2} = \frac{\theta}{2}$  e chegamos a expressão

$$\Delta\phi \approx \frac{2\pi}{\lambda} \theta R \quad (1.2.8)$$

onde usamos o fato de que numa suspensão coloidal densa  $\cos \alpha \approx 1$  pois, em uma solução coloidal densa  $\vec{k}_f + \vec{k}_i$  e  $\vec{r}_n - \vec{r}_1$  serão aproximadamente paralelos. O valor da separação quadrática média, no regime de difusão de fótons é dada por

$$\langle R^2 \rangle = 6Dt = 6 \left( \frac{cl_t}{3} \right) t \quad (1.2.9)$$

onde  $D$  é a constante de difusão,  $t$  o tempo de característico da caminhada aleatória do fóton



**Figura 1.4:** Série de espalhamentos que percorrem caminhos reversos com  $\vec{k}$  de incidência na amostra dada por  $\vec{k}_i$  e de saída da amostra de  $\vec{k}_f$ . Retirado de [9]

e  $c$  a velocidade de propagação do fóton no meio. Temos, portanto, que a diferença de fase será

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda}\theta\sqrt{2l_t s} \quad (1.2.10)$$

onde  $s$  é o caminho total percorrido pelo fóton dentro da amostra durante os sucessivos espalhamentos e é dado por  $s = ct$ . Para que as ondas com momentos reversos interfiram de forma construtiva, sua diferença de fase deve ser pequena. Essa condição pode ser expressa por  $\frac{\Delta\phi}{2\pi} \ll 1$ . Haverá um ângulo crítico a partir do qual essa condição será respeitada e a coerência entre as onda mantida, que será dada por

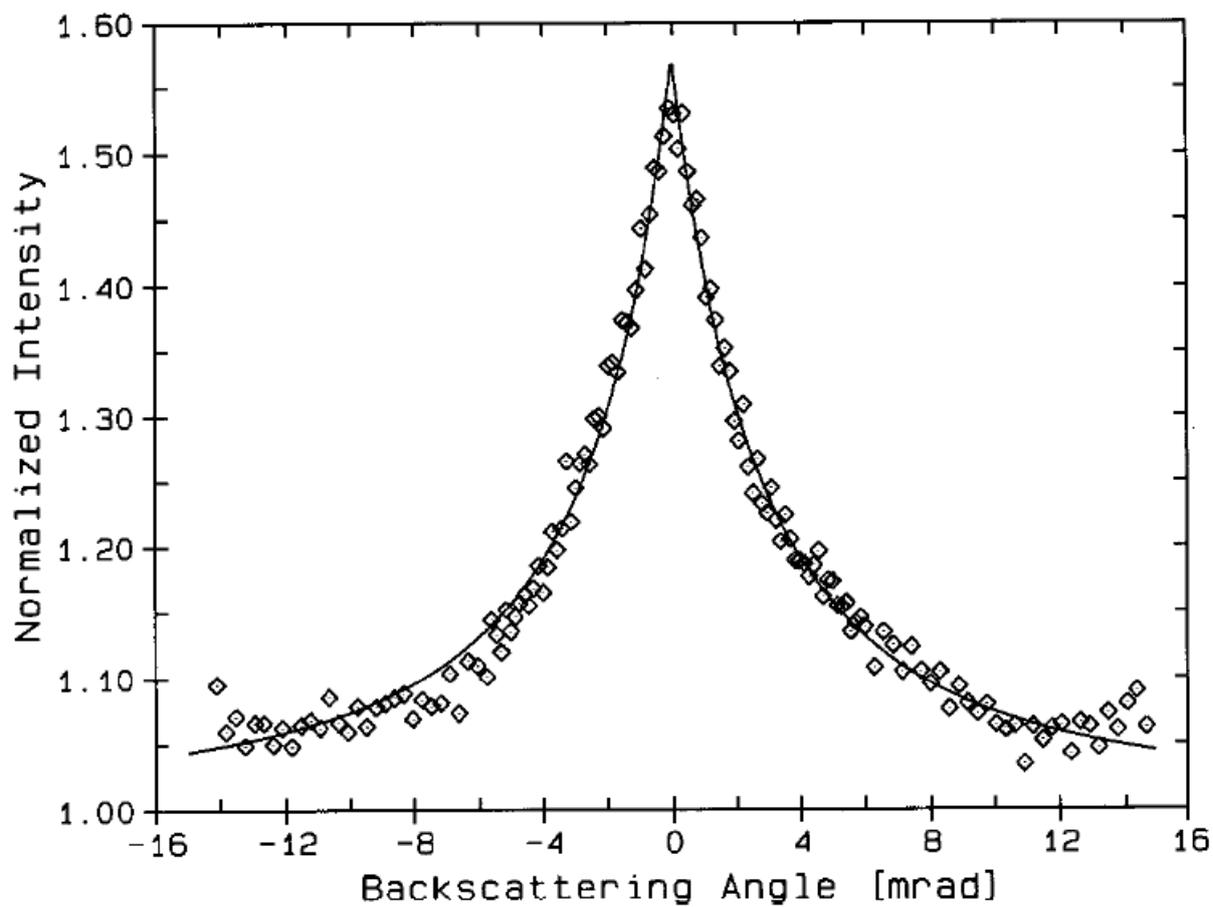
$$\theta_c \approx \frac{\lambda}{\sqrt{2l_t s}} \quad (1.2.11)$$

Podemos ver pela equação 1.2.11 que a condição de coerência entre as ondas reversas, conforme descrito, irá depender do caminho percorrido pelas mesmas dentro da amostras. Quanto maior for a distância percorrida pelo fóton dentro da amostra, menor será o ângulo em torno da direção de retroespalhamento na qual teremos a interferência construtiva pelas ondas que percorrem caminhos reversos. Teremos portanto um ângulo crítico dado pelo menor  $s$  possível, onde a partir desse ângulo não temos mais a ocorrência do fenômeno de coerência que será dado por  $s = l_t$  e portanto

$$\theta_c \approx \frac{\lambda}{l_t\sqrt{2}}. \quad (1.2.12)$$

Para ângulos menores do que  $\theta_c$ , um número cada vez maior de trajetórias maiores irão interferir de forma construtiva, para ângulo  $\theta$  menores que  $\theta_c$  um número cada vez maior de trajetórias que são mais longas ( $l_t < s$ ) irão interferir construtivamente tendo um aumento gradual da intensidade até a chegada a  $\theta = 0$ , onde todos as trajetória percorridas pelo fóton e que contam com um caminho reverso estarão em fase, inteferindo construtivamente, obtendo um máximo na intensidade na exata direção de retroespalhamento em  $\theta = 0$ . Essa relação de fase fornece o chamado cone de retroespalhamento, que pode ser visto na figura 1.5 .

A obtenção experimental desse sinal permite a determinação da grandeza  $l_t$ , ao obtermos a intensidade de luz refletida em pequenos ângulos em relação a direção de incidência. Essa grandeza pode ser determinada aproximadamente pela relação 3.2.1 ou utilizando a equação



**Figura 1.5:** Figura típica de cone de retroespalhamento para uma suspensão coloidal. Retirado de [9]

teórica obtida na referência [2] dada por

$$I(\theta) = \frac{3}{16\pi} \left[ \frac{7}{3} + \frac{1}{\left(1 + \frac{2\pi|\theta|l}{\lambda}\right)^2} \left(1 + \frac{1 + e^{-\frac{8\pi|\theta|l}{3\lambda}}}{\frac{2\pi|\theta|l}{\lambda}}\right) \right]. \quad (1.2.13)$$

Deve-se mencionar que a equação 1.2.13 só é válida para a mesma polarização do feixe incidente.

# Capítulo 2

## Estado da Arte

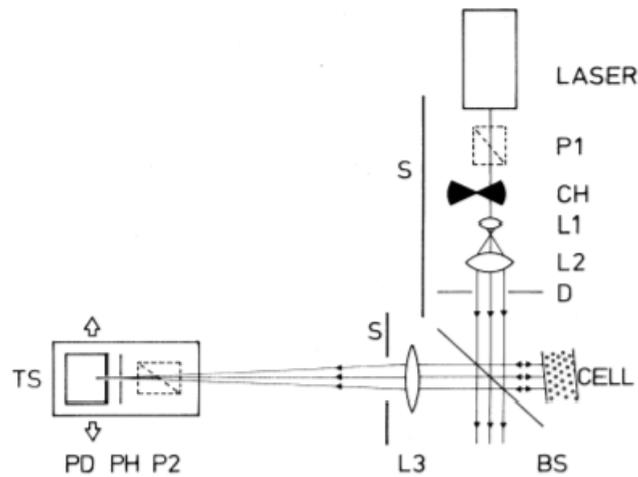
Buscamos nessa seção descrever as primeiras montagens experimentais realizadas ainda na década de 80 que obtiveram as primeiras evidências experimentais da localização fraca da luz. Apresentaremos os artigos originais e os diferentes experimentos que encontram-se no estado da arte da técnica.

### 2.1 Experimentos Clássicos

#### 2.1.1 Montagem por van Albada e Legendijk

Na figura 2.1 podemos ver a montagem descrita no artigo de van Albada e Legendijk[3]. Esse experimento, assim como o de Wolf e Maret 2.3 foram os primeiros a serem realizados que não apenas obtiveram o sinal de retroespalhamento como forneceram uma explicação para o fenômeno por meio da interferência construtiva entre ondas que percorrem caminhos contrários. O experimento pode ser descrito da seguinte maneira: um feixe de LASER de HeNe é expandido por uma montagem telescópica, representadas na figura 2.1 pelas lentes L1 e L2. A primeira lente L1 expande o feixe, enquanto a segunda lente colima o mesmo ao ser posicionado a uma distância  $f_2$  (distância focal da lente 2) de L1. O feixe expandido e colimado incide então num divisor de feixes representado em 2.1 por BS. Parte do feixe incide sobre uma amostra numa cubeta. Busca-se então detectar a luz retroespalhada pela amostra de modo a obter o sinal do cone de retroespalhamento.

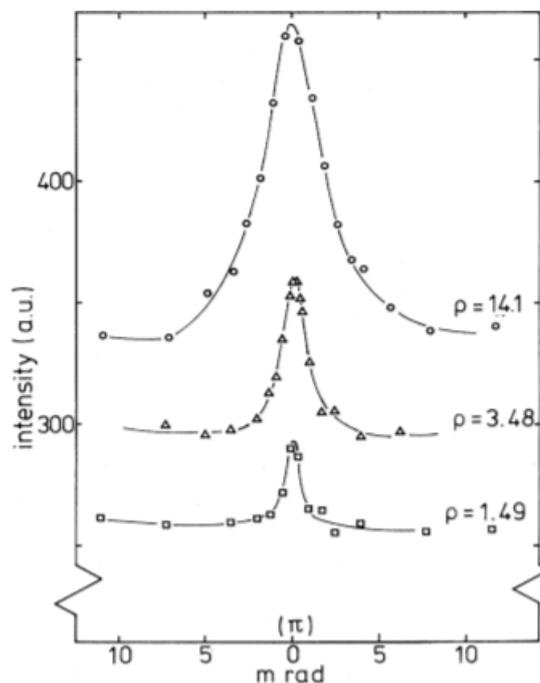
Essa montagem é extremamente sensível ao alinhamento dos componentes óticos. Nesta montagem, o divisor de feixes deve ser ajustado de forma a estar no ângulo correto para transmitir a luz retroespalhada de modo a ser recebida no detector. Isso foi realizado pelos autores por meio de utilização de uma íris, onde é possível obter uma abertura de diâmetro



**Figura 2.1:** Montagem experimental para observação do cone de retroespalhamento da luz. Retirado de [3]

muito pequeno, onde é realizada a incidência do centro do feixe, e a luz que ultrapassa esse componente, na posição D na figura 2.1. Para realizar esse ajuste com maior facilidade, a cubeta é então substituída por um espelho e a reflexão da luz selecionada pela iris é enviada ao detector por meio de ajustes na posição do divisor de feixes.

Por meio desta montagem e processo de alinhamento, os autores obtiveram os resultados descritos pela 2.2. As amostras utilizadas foram soluções aquosas de esferas de poliestireno, que foram utilizadas pelo fato de praticamente não absorverem luz visível e terem um bom contraste de índice com o líquido. Foram então preparadas diversas amostras com diferentes concentrações simbolizadas na figura 2.2 por  $\rho$ . Podemos ver que os resultados obtidos dão suporte a ideia de que a largura angular do cone é inversamente proporcional a  $l$ , já que os cones com maior concentração possuirão  $l$  menor e ocorre um aumento da largura angular do mesmo. Foi também relatado nesse artigo que enquanto a luz fora do cone tinha polarização aleatória, na região compreendida pelo cone, ocorre uma manutenção parcial da polarização da luz incidente.

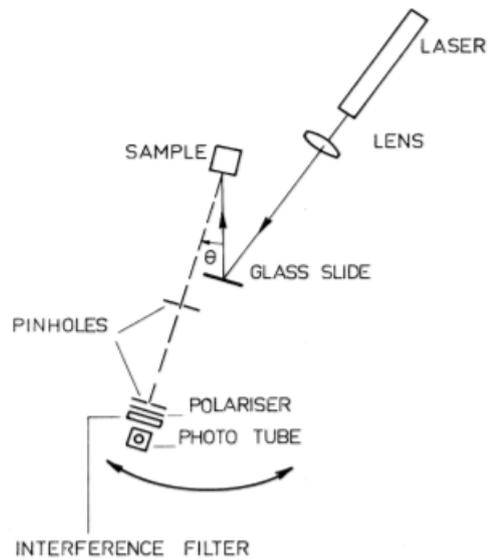


**Figura 2.2:** Resultados obtidos pela montagem experimental da referência [3]

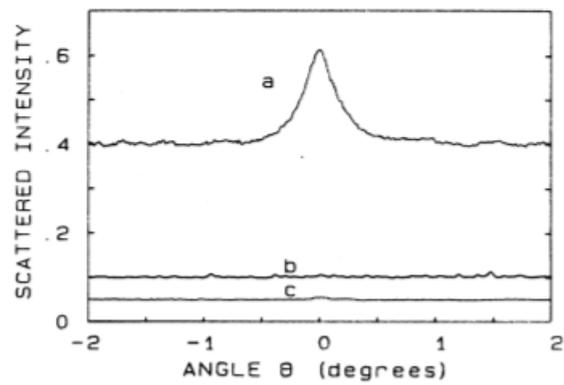
### 2.1.2 Montagem por Wolf e Maret

O experimento descrito no artigo por Wolf e Maret [8] se tratou da primeira observação experimental do fenômeno de retroespalhamento coerente. A montagem experimental foi feita de acordo com a imagem 2.3 Luz polarizada gerada por um LASER de argônio passa por uma lente de modo a reduzir a divergência do feixe. Parte do feixe é refletido por um pedaço fino de vidro. A amostra está contida dentro de uma cubeta de quartzo. Duas irises foram colocadas entre a amostra e o detector, nos locais indicados como pinholes na imagem 2.3, que definiam a resolução angular de detecção da montagem. Um polarizador pode ser colocado após o último furo e antes da detecção de modo a investigar o comportamento da polarização da luz retroespalhada. Os resultados obtidos por esse experimento, são resumidos nas imagens 2.4, 2.5 e 2.6

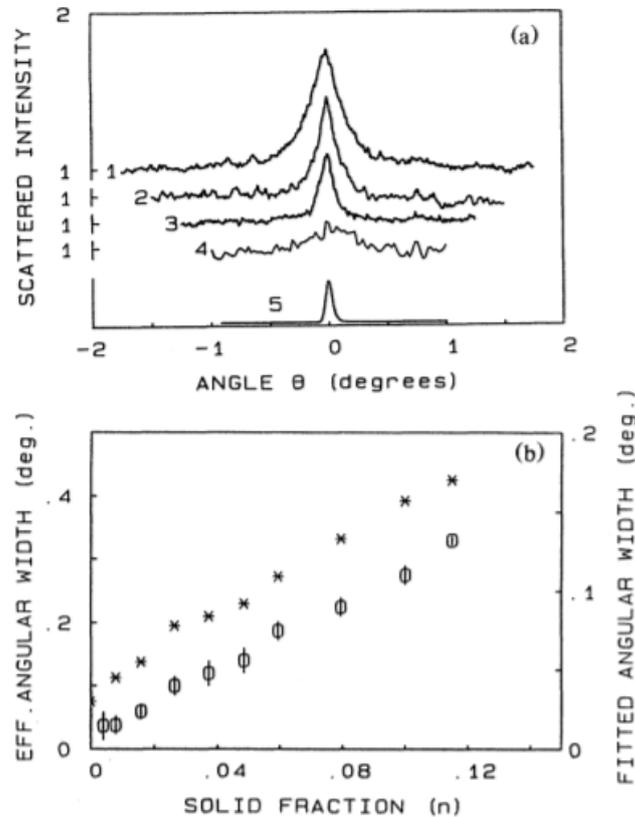
A figura 2.4 mostra 3 curvas diferentes para intensidade registrada na direção de retroespalhamento da luz que incide na amostra. A curva c se trata da luz recebida quando temos apenas a cubeta vazia enquanto a curva b se trata do sinal recebido quando a cubeta foi preenchida com água. Finalmente, a curva a mostra o sinal recebido quando temos uma solução de esferas de poliestireno, registrando então o retroespalhamento coerente. As curvas b e c foram feitas para evidenciar que o sinal obtido quando temos uma suspensão



**Figura 2.3:** Montagem experimental para observação de cone de retroespalhamento coerente. Retirado de [8]



**Figura 2.4:** Intensidade espalhada em relação ao ângulo  $\theta$  em relação a direção de retroespalhamento. Retirado de [8]

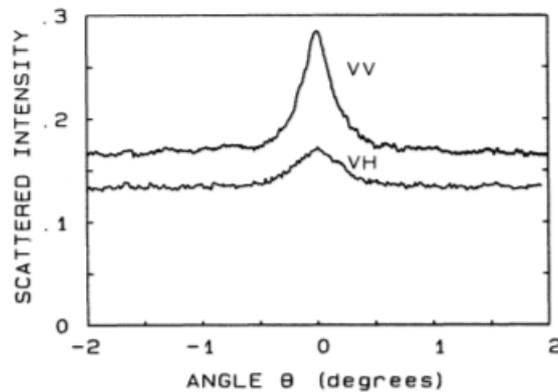


**Figura 2.5:** Cone de retroespalhamento para diversas concentrações de esferas no gráfico superior e relação entre a largura angular efetiva do cone e a concentração de esferas no inferior. Retirado de [8]

coloidal dentro da cubeta, corresponde realmente a efeitos trazidos pelas partículas dispersas e não por algum efeito de difração ou reflexão do sistema cubeta + água.

Na figura 2.5, no gráfico a), temos as curvas 1,2,3 e 4 que são os sinais obtidos para diferentes concentrações, sendo 1 a maior e 4 a menor, onde já não é mais possível observar a formação do cone de retroespalhamento por conta da baixa concentração da amostra. O gráfico b) informa a relação entre a grandeza dita como largura efetiva ( $W_{eff}$ ) definida como a proporção da área sob o pico e a intensidade incoerente. Podemos então ver a relação entre essa grandeza e a concentração na 2.5, onde os dados dessa relação são representados pelos círculos. Fica clara a relação entre a grandeza  $W_{eff}$  e a concentração de esferas na amostras, fornecendo evidências fortes de que o pico realmente ocorre por conta do retroespalhamento coerente.

Nesse artigo, foi também analisada a polarização da luz retroespalhada. Podemos ver na figura 2.6 duas curvas, uma com o analisador posicionado na direção vertical e outra com o analisador na posição vertical. Podemos ver que a luz do cone de retroespalhamento é



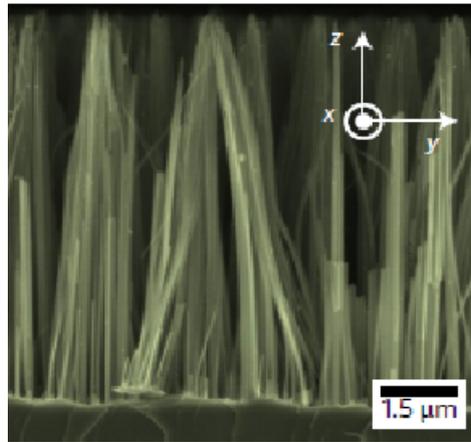
**Figura 2.6:** Curvas para diferentes posições do analisador posicionado antes do detector. Retirado da referência [8]

espalhada em sua maior parte com a mesma polarização do feixe incidente, mostrando que a polarização é parcialmente conservada no fenômeno de retroespalhamento coerente.

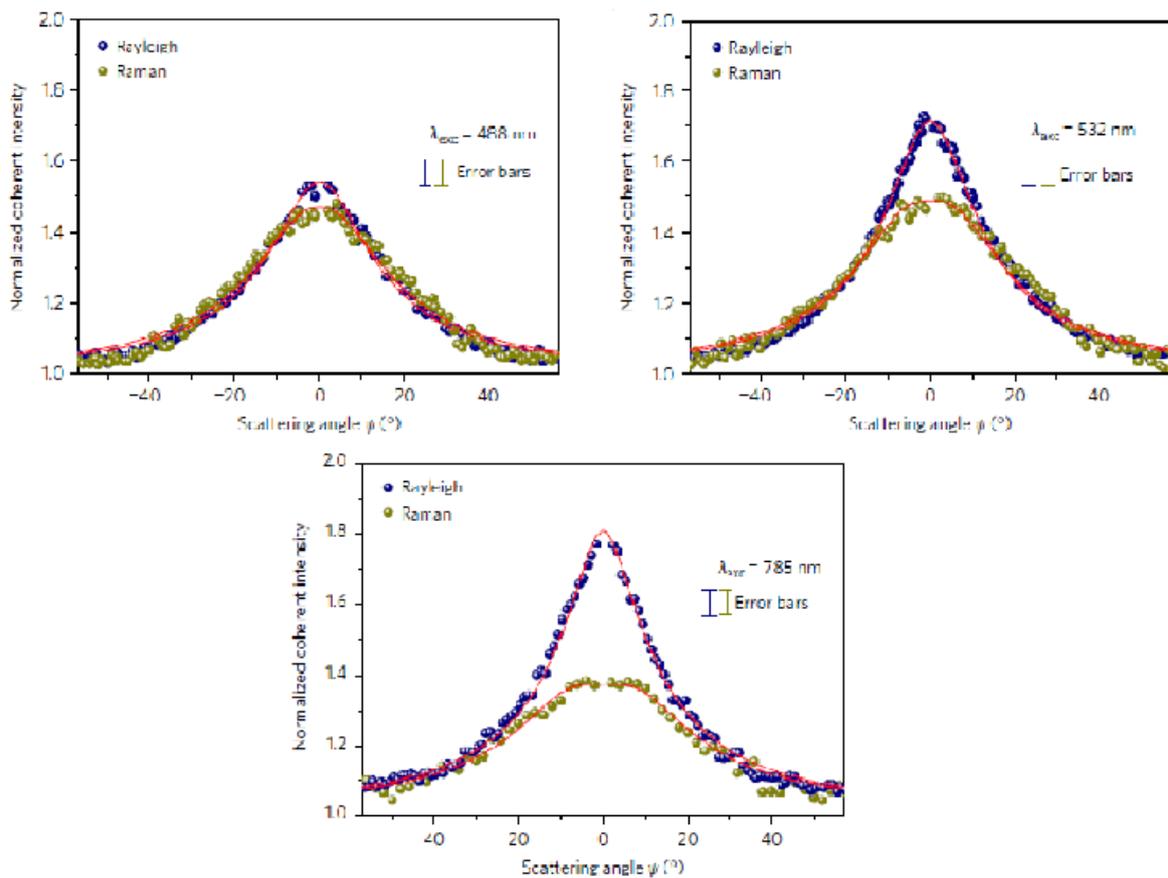
## 2.2 Restroespalhamento Coerente de luz Raman

Em um artigo recente publicado na revista Nature Photonics por Fazio et al.[4], foi reportado pela primeira vez a observação do cone de retroespalhamento de luz Raman. A princípio, se pensa na excitação de fônons por meio de incidência de luz em um material sólido como um efeito inelástico, que acabaria por quebrar a simetria temporal que gera o efeito de retroespalhamento coerente. Haverá, entretanto, coerência da luz que excita a amostra e a luz inelasticamente espalhada, desde que considerados tempos e distâncias de coerência característicos deste tipo de espalhamento. Neste artigo, é demonstrado que a natureza coerente do espalhamento Raman pode ser estudada macroscopicamente pela observação do cone de retroespalhamento.

No trabalho citado, foi realizada uma montagem experimental onde é observada a luz espalhada por uma amostra contendo nanofios de Silício conforme a figura 2.7. Para analisar o espalhamento de luz dessa amostra, foi obtido primeiramente o sinal de espalhamento elástico. Para fazer a mesma medição para o efeito inelástico, a amostra foi excitada por luz coerente em 3 diferentes comprimentos de onda,  $\lambda = 488, 532$  e  $785\text{nm}$ . O sinal de retroespalhamento coerente para os 3 diferentes valores de  $\lambda$  podem ser vistos na figura 2.8. Podemos ver que conforme o aumento de  $\lambda$ , ocorre uma diminuição da intensidade relativa para o espalhamento Raman. Os dados apresentados neste artigo são evidências



**Figura 2.7:** Imagem microscópica da amostra da nanofios de Silício usado no experimento. Retirado de [4]

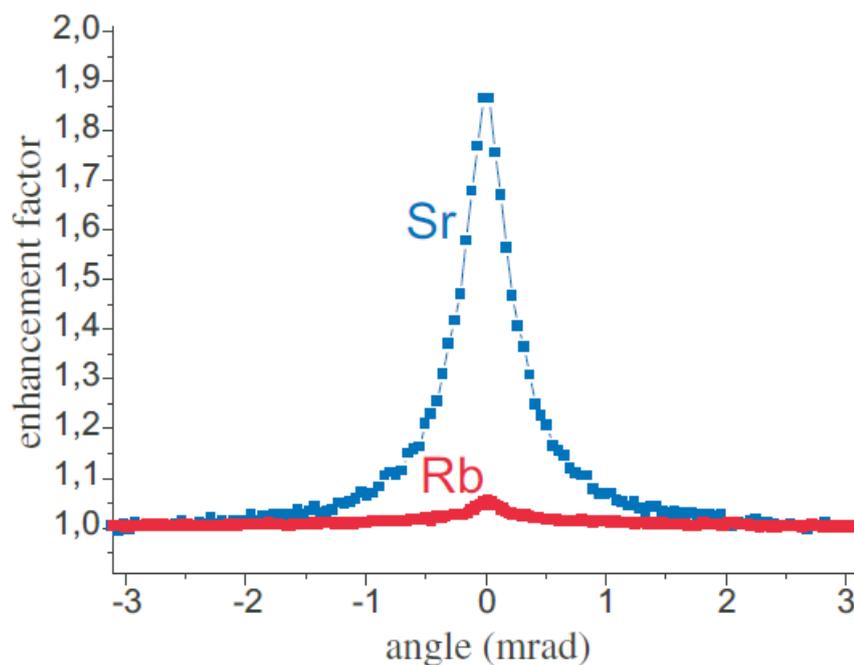


**Figura 2.8:** Dados experimentais obtidos para espalhamento elástico(azul) e inelástico(amarelo). Retirado de [4]

relevantes de que a luz espalhada neste sistema sofre interferência construtiva na direção de retroespalhamento, fato esse observado pela primeira vez.

## 2.3 Restroespalhamento Coerente por Átomos Frios

No artigo por Labeyrie et al. [6], é descrita a observação do fenômeno de retroespalhamento coerente por átomos que são resfriados a temperaturas de miliKelvin por técnicas de resfriamento a laser. Nesse experimento, os autores analisaram amostras de Estrôncio(Sr) e Rubídio(Rb), de modo a compará-los utilizando o conhecimento da estrutura eletrônica de ambos para observar os efeitos que os diferentes níveis de energia atômicos causam no efeito de retroespalhamento coerente.



**Figura 2.9:** Sinal de cone de retroespalhamento obtido para átomos frios de Estrôncio e Rubídio. Retirado de [6]

Os resultados podem ser vistos na figura 2.9. A diferença observada na intensidade relativa obtida para os dois conjuntos de átomos diferentes são explicadas pelo fato do Rb possuir um nível fundamental degenerado, fazendo com que ocorram diversas transições elástica e inelástica, quebrando parte da simetria das ondas com momento reverso ao alterar

o caminho percorrido. Já o átomo Sr possui um nível fundamental não-degenerado, fazendo com que haja um número menor de transições, quebrando a simetria do sistema um número menor de vezes, causando portanto um aumento maior da intensidade retroespalhada do que no átomo de Rb.

## Capítulo 3

# Medidas de Retroespalhamento Coerente da Luz em Diferentes Sistemas

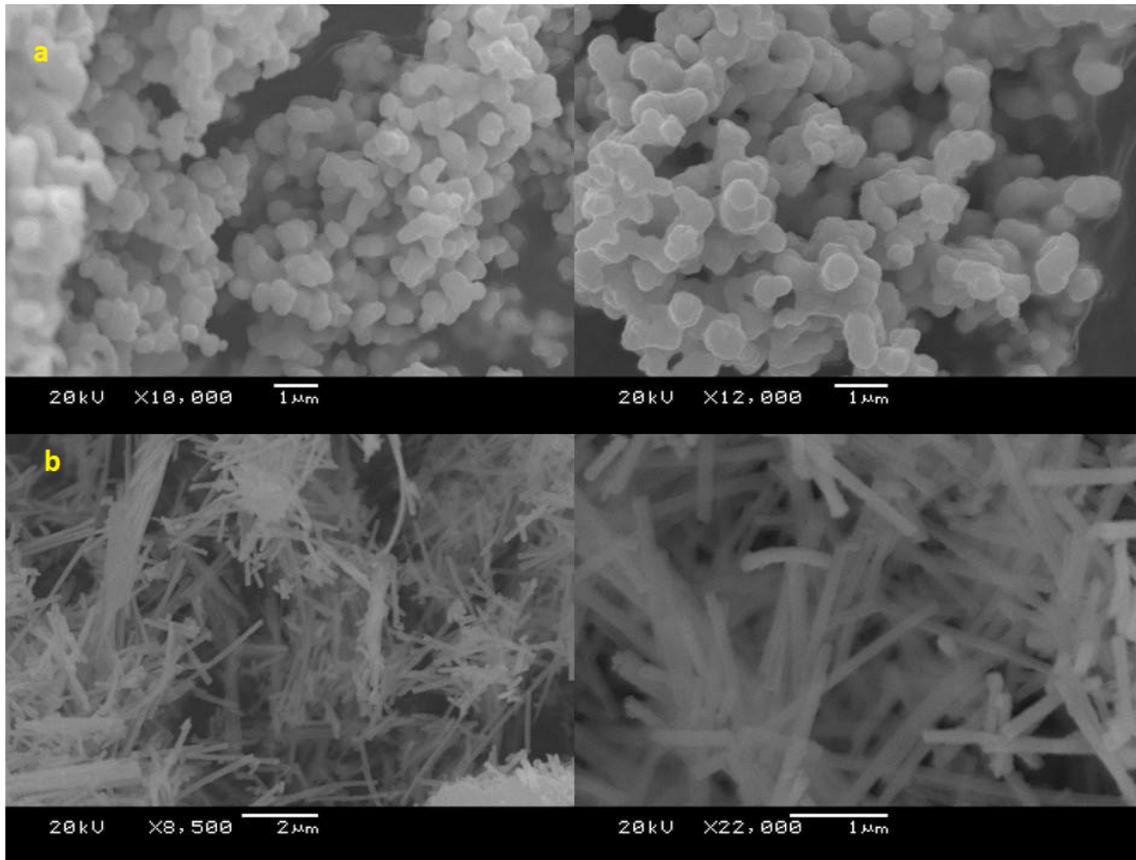
Neste capítulo serão descritos a montagem experimental e resultados obtidos no laboratório de Ótica, (Nano-)Fotônica e Materiais (OPTMA) do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul como parte do projeto de iniciação científica do autor. O experimento aqui relatado de retroespalhamento coerente foi realizado em parceria com o então estudante de doutorado Hemerson Pablo Silva Castro e tinha por objetivo servir como um instrumento para a medição do  $l_t$  de sistemas com distribuição aleatórias. Neste trabalho foi investigada a influência da forma do espalhador sobre o livre caminho médio de transporte da luz em sistemas coloidais com espalhadores esféricos e tubulares (espalhadores de  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  dispersos em  $\text{PEG}_{200}$ ).

As amostras foram fornecidas pelo laboratório L3FNano sobre a supervisão do Prof. Dr Sérgio R. Teixeira. Na figura 3.1 podemos ver resultados de microscopia eletrônica de varredura (SEM), as esferas apresentam um tamanho médio de 100 nm e os nanotubos possuem em média 12  $\mu\text{m}$  de comprimento e a largura das paredes em torno 40 nm. Os espalhadores foram então dispersos em polietilenoglicol 200 em uma proporção de 20 mg/mL.

### 3.1 Montagem Experimental

A montagem realizada neste trabalho foi baseada na de van Albada [3], e é representada na figura 3.2.

Nela utilizamos um laser HeNe, com emissão centrada em 540 nm. O feixe de laser era expandido (10 mm) e colimado por um telescópio. Após isto, o feixe passava por um divisor de feixes, onde metade da luz incidia na amostra e metade era bloqueada. Após a incidência

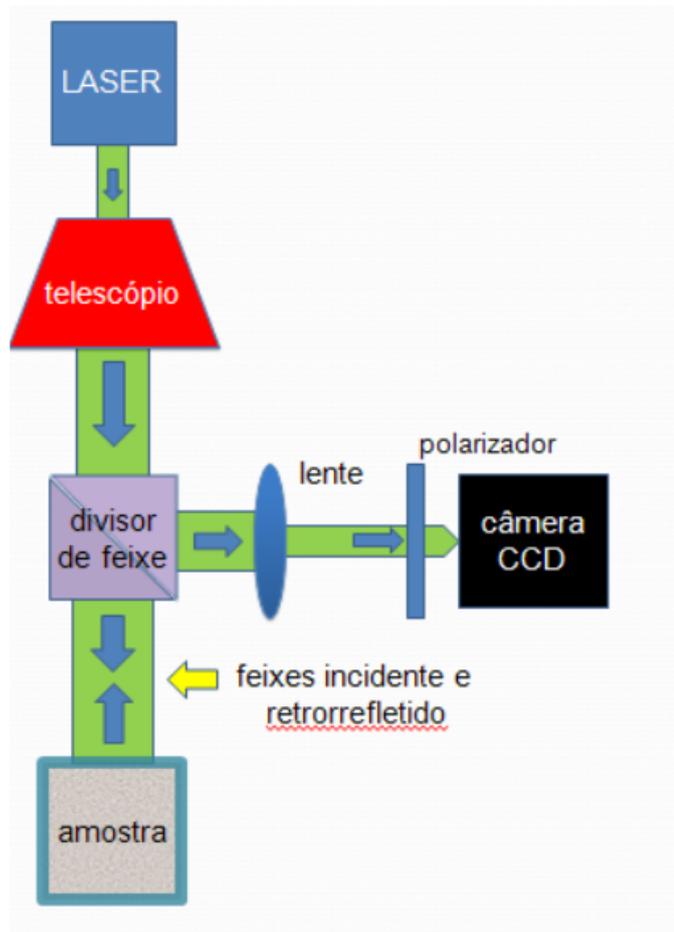


**Figura 3.1:** Microscopia eletrônica de varredura de a)nanoesferas e b)nanotubos de  $Ta_2O_5$

na amostra, a luz retrorefletida era desviada pelo divisor e incidia numa lente convergente (40 cm) que focalizava a luz retroespalhada numa câmera CCD conectada a um computador.

É interessante a discussão de alguns ponto que introduziam dificuldades a obtenção do sinal desejado nessa montagem. O divisor de feixe é um cubo divisor não polarizante com razão 50:50. O feixe então incidia numa das faces e ao chegar na interface entre os dois prismas era parte refratada e parte transmitida, como resultado de reflexão total atenuada.O feixe transmitido era então direcionado para a amostra,conforme a figura 3.2. As diversas reflexões que ocorrem na interface dos prismas e o ar, apesar da existência de camadas anti-refletoras, geram vários feixes de menor intensidade cuja direção deve ser controlada de modo a não influenciar nas medições.

Os dados coletados da intensidade retroespalhada são obtidos em função de uma posição  $x$  no plano da câmera enquanto o modelo teórico descreve essa intensidade em relação ao ângulo  $\theta$  relativo a direção de incidência da luz.É necessário então realizar a conversão dos dados de  $x$  para  $\theta$  de modo a obter a modelagem teórica por meio da equação 1.2.13. Um fator relevante que acaba por simplificar essa relação são as distâncias relativas entre

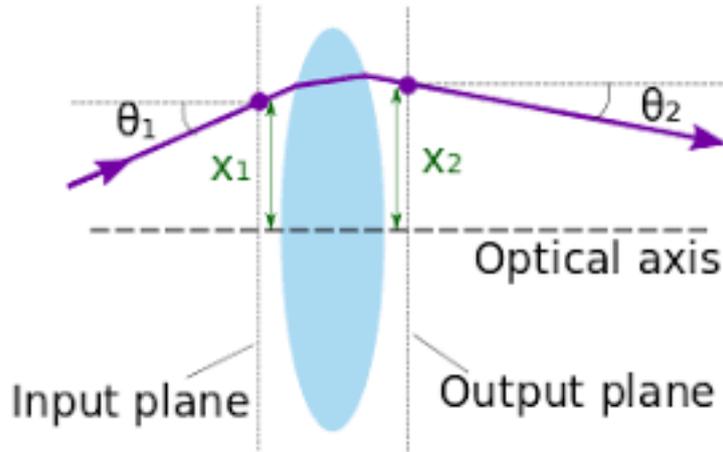


**Figura 3.2:** Esquema de montagem experimental baseada no experimento descrito an referência [3]

a amostra, lente e câmera. Essas distâncias se escolhidas de forma apropriada acabam por simplificar a relação entre  $x$  e  $\theta$ , simplificando a conversão entre os parâmetros. Partindo da ideia de que o feixe possui um perfil de intensidade gaussiano e uma frente de onda plana, podemos usar ferramentas da análise ótica matricial de propagação de feixes de luz para desenhar o experimento. Tal análise nos permite descrever um feixe por dois parâmetros,  $x$ , a distância do feixe a um eixo ótico definido e  $\theta$  o ângulo em relação ao eixo ótico por meio de uma matriz coluna como vista na figura 3.3

$$\begin{pmatrix} x \\ \theta \end{pmatrix}. \quad (3.1.1)$$

A interação de um feixe com diferentes componentes óticos, será descrita nesse formalismo pela aplicação de diferentes matrizes  $2 \times 2$ , denominadas de matrizes ABCD para propagação de raios luminoso. Para determinarmos a relação entre o feixe inicial e final,



**Figura 3.3:** Descrição de propagação da luz em relação ao eixo óptico, retirado da referência [10]

devemos aplicar as matrizes referentes aos diferentes componentes óticos que interagiram com o feixe.

Desejamos então usar esse formalismo para descrever a propagação de feixe nessa montagem, considerando apenas os componentes que realmente alteram as relações entre os parâmetros iniciais e finais, e não causam apenas desvios na direção de propagação. A matriz que descreve a propagação do feixe no espaço livre é dada por

$$\begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (3.1.2)$$

e a matriz que descreve o efeito de uma lente é dada por

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix}. \quad (3.1.3)$$

Podemos então relacionar o ângulo de saída da luz retroespalhada em relação ao eixo óptico, que terá a mesma direção da luz retroespalhada, com a posição de detecção dessa mesma luz na câmera. Teremos portanto a seguinte equação matricial:

$$\begin{pmatrix} x_2 \\ \theta_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & d_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & d_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 \\ \theta_1 \end{pmatrix}. \quad (3.1.4)$$

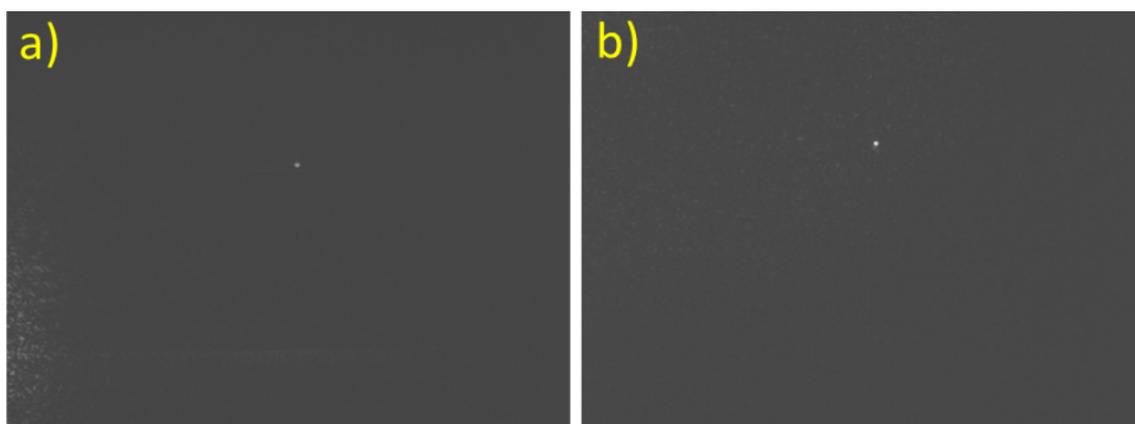
Nesta expressão  $d_2$  e  $d_1$  são, respectivamente, a distância da lente a câmera e a distância da lente até a amostra. Se definirmos as distâncias  $d_2$  e  $d_1$  como sendo iguais a distância focal da lente, ao realizarmos esse produto obtemos uma relação simples para  $x_2$

$$x_2 = f\theta_1. \quad (3.1.5)$$

Levando isso em conta, a montagem em laboratório foi feita dessa forma, com a distância entre a amostra e a lente ( $d_1$ ) e da lente até a câmera ( $d_2$ ), iguais a  $f$  ( $d_1 = d_2 = f$ ). Essa montagem permitia a fácil transformação da informação recebida na câmera  $x_2$  para  $\theta_2$  ao aproximarmos para pequenos ângulos  $tg(\theta_2) \approx \theta_2$  onde  $\theta_2 = \frac{x_2}{f}$ . Foram obtidos então os dados representados nas figuras 3.6 e 3.5.

## 3.2 Medidas e Análise de Dados

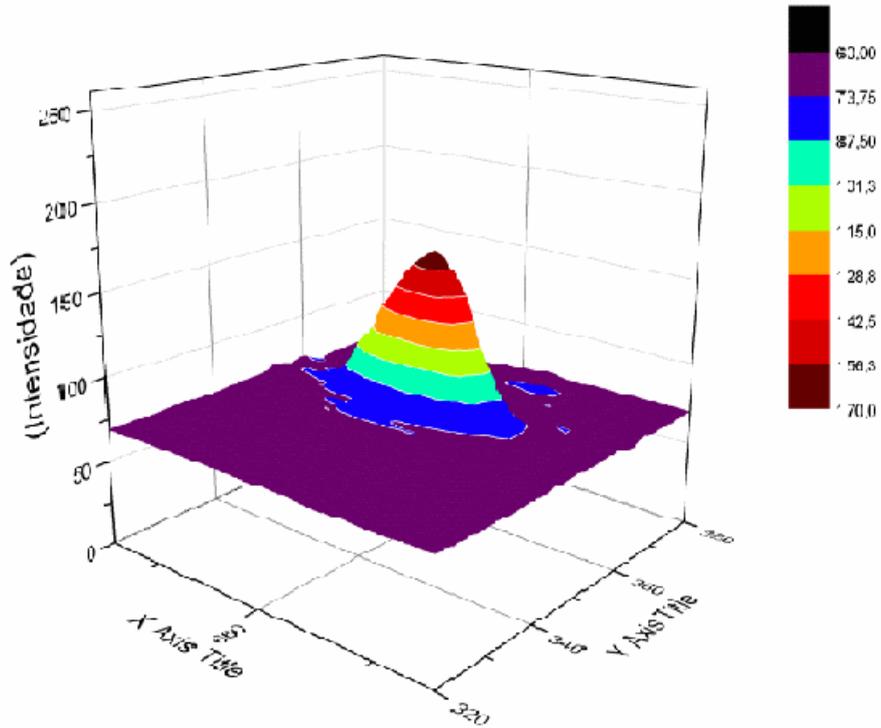
Utilizando a configuração descrita na seção anterior, obtivemos as imagens na figura 3.4. A figura 3.4a) apresenta a imagem obtido do cone na direção de retroespalhamento em tons de cinza para nanoesferas e em b) para nanotubos. Podemos representar este sinal como uma mapa de superfície representado na figura 3.6.



**Figura 3.4:** Imagem do cone de retroespalhamento obtido em laboratório imagem do CBS obtida em laboratório para a) nanoesferas e b) nanotubos.

Para analisar os dados obtidos, foi utilizado o software Origin de modo a manipular a imagem e extrair dados de intensidade em função do número de pixels, como visto na figura 3.6. Cada pixel têm dimensões de  $4,8 \times 4,8 \mu\text{m}$ . Após converter o número de pixels para unidade métrica, utilizamos a equação 3.1.5 para transformar de posição para escala angular. Na figura 3.7, podemos ver os dados (círculos) obtidos através do procedimento descrito anteriormente, para a) esferas e b) nanotubos. O livre caminho médio de transporte de cada amostra foi obtido através do ajuste teórico dos dados experimentais pela equação 1.2.13.

Para amostra contendo esferas, foi obtido um valor de  $l_t \approx 0.99 \text{ mm}$  e para nanotubos,

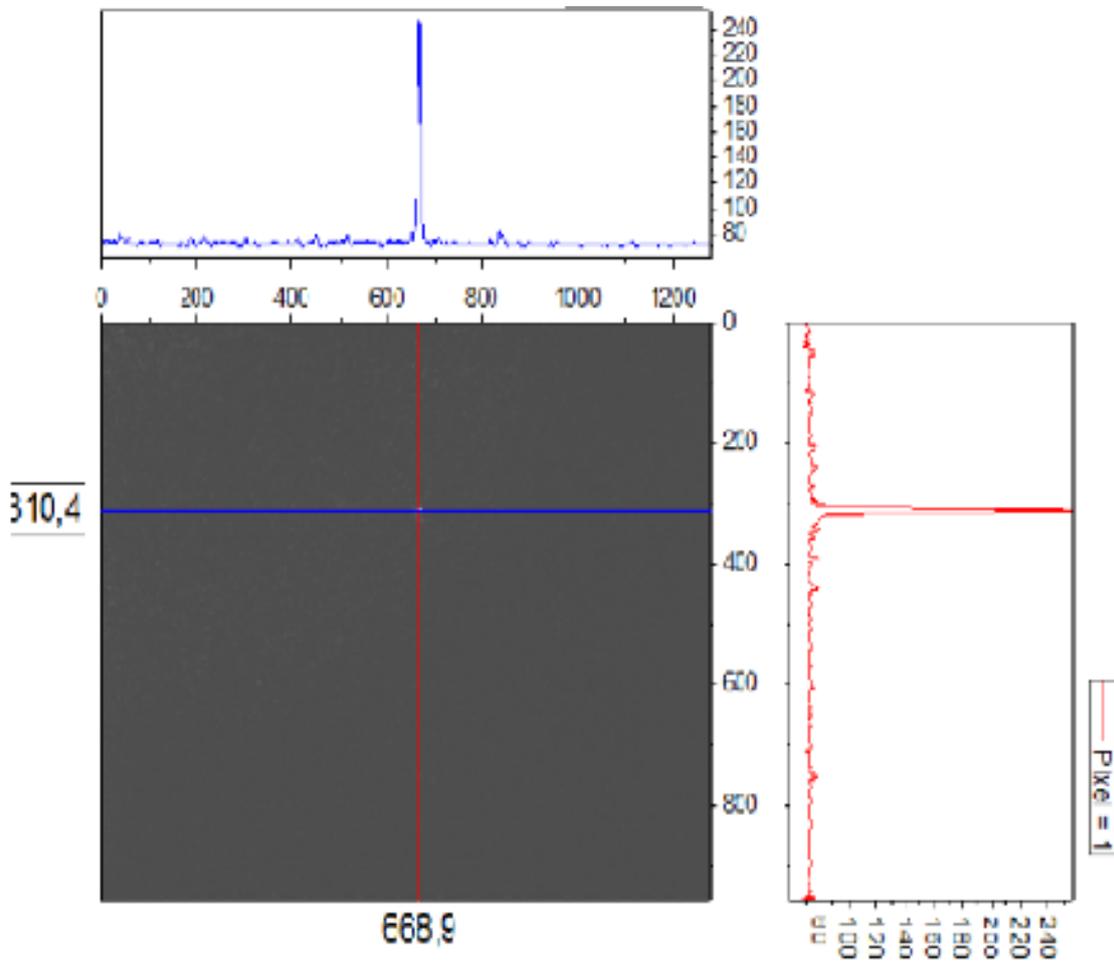


**Figura 3.5:** Perfil de intensidade em duas dimensões dos dados obtidos

$l_t \approx 1,25$  mm. Como  $\lambda$  do feixe era 540 nm, e o comprimento da amostra  $L=10,0$  mm, podemos observar que  $\lambda < l_t < L$ , estando portanto no regime difusivo. Analisando os dados obtidos do experimento, podemos checar sua consistência com o esperado pela teoria. Embora ambas amostras tenham mesma concentração de massa, a massa de uma nanoesfera é muito menor do que a de um nanotubo, o que pode ser visto comparando dimensões do mesmo. As nanoesferas possuem um raio medido de 50 nm, enquanto os tubos possuem  $12\mu\text{m}$  de comprimento e 40 nm de largura. Com isso podemos concluir que uma amostra de 20mg/ml de nanoesferas têm uma concentração de partículas muito maior do que uma amostra semelhante de nanotubos. Como foi mostrado na seção 1.2.1, o ângulo crítico  $\theta_c$  tem uma relação inversamente proporcional a  $l_t$ , dada por

$$\theta_c \approx \frac{\lambda}{l_t \sqrt{2}}. \quad (3.2.1)$$

Lembrando que em nossa definição de livre caminho médio, temos que  $l \propto \frac{1}{\rho}$ , e  $l_t \propto l$ , a grandeza  $l_t$  será também inversamente proporcional a  $\rho$ . Espera-se, então, que a largura do cone de retroespalhamento obtido para as nanoesferas tenha uma largura angular maior

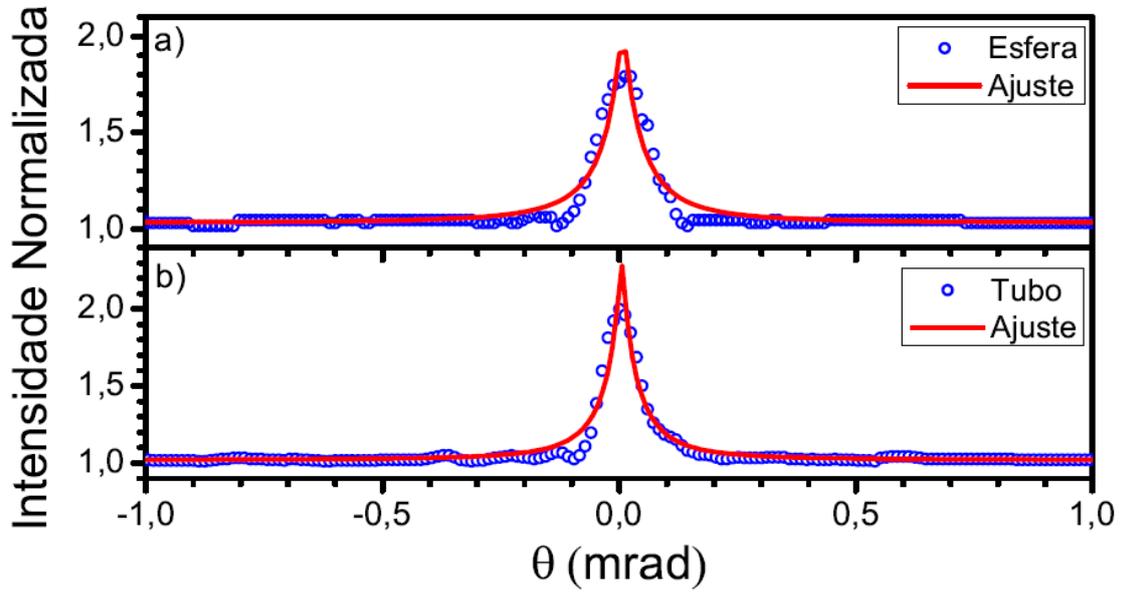


**Figura 3.6:** Perfis transversais de intensidade obtidos na figura 3.4

que o cone obtido para os nanotubos, sinalizando que o  $l_t$  e  $l$  são menores para a amostra com esferas do que para os tubos. Observando a figura 3.7, podemos ver que foi obtido o resultado esperado quanto a largura do cone, já que  $\theta_c$  é maior no gráfico a), para esferas do que no gráfico b), para os tubos.

### 3.3 Adaptação Para Feixe de Supercontínuo

Seguindo o projeto de pesquisa realizado no laboratório OPTMA, foi planejado um novo experimento, utilizando uma nova fonte de luz, chamada supercontínuo para fazer análise do experimento de retroespalhamento coerente. Esse tipo de feixe é obtido por meio da incidência de um feixe de luz pulsada, com uma alta potência de pico, em um meio que possibilite uma resposta não linear de modo que a interação da luz com o meio gere novas



**Figura 3.7:** Dados experimentais obtidos com análise da curva teórica dada pela equação 1.2.13

frequências.

A interação da luz com o meio será descrita pela equação de onda não-linear:

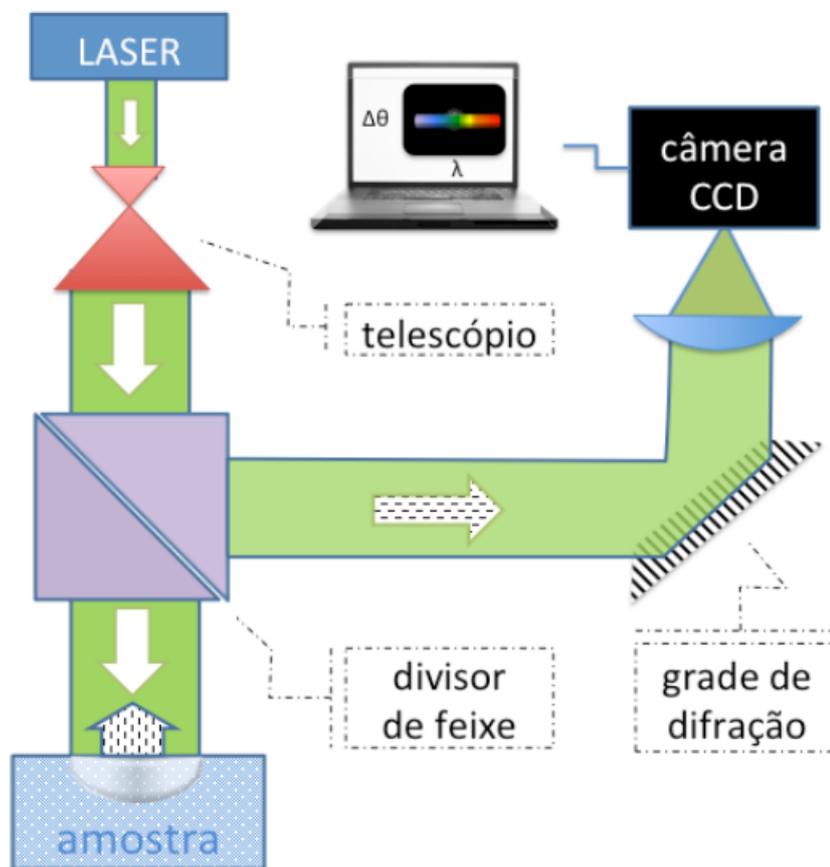
$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (3.3.1)$$

onde o termo  $\vec{P}^{NL}$  é

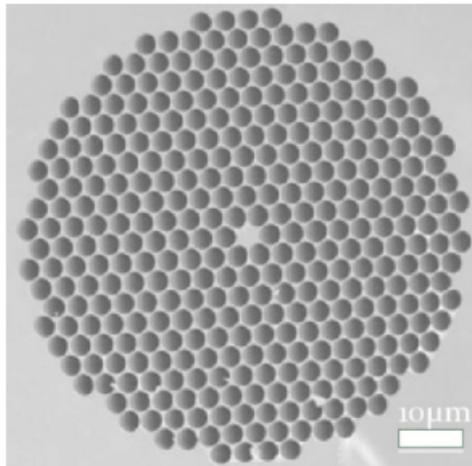
$$\vec{P}^{NL} = \chi \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 \dots \quad (3.3.2)$$

Onde o termo  $\vec{P}^{NL}$  é um termo que nos dá a resposta do meio ao campo elétrico incidente e que acaba por gerar novas frequências, causando um alargamento espectral no feixe incidente. Com uma montagem em que ocorra a localização temporal e espacial de um feixe ultra-curto, é possível gerar esse tipo de fenômeno não linear, causando um efeito cascata em que cada vez mais frequências são geradas pela interação da luz com o meio. Assim pode se gerar um feixe de luz branca pulsada com alta largura espectral e com duração temporal de pulso em torno de ps. Tal feixe de luz permitiria a análise espectral do retroespalhamento coerente conforme a montagem na 3.8.

Partindo de um LASER de estado sólido com um meio de ganho baseado num cristal de Titânio-Safira cuja largura temporal tem em torno de uma centena de femtosegundo, buscamos realizar uma montagem experimental que tornasse possível a geração desse feixe. Primeiramente, é necessário um meio em que a luz seja altamente localizada espacialmente,



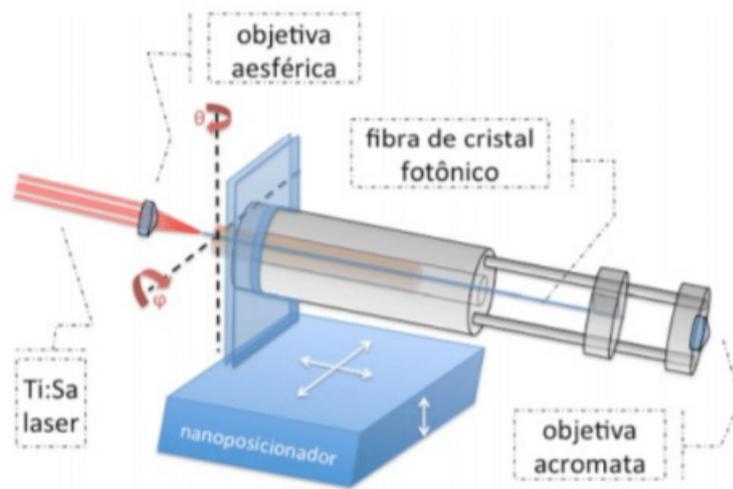
**Figura 3.8:** Esquema experimental do arranjo de retroespalhamento coerente resolvido espectralmente



**Figura 3.9:** Seção transversal de uma fibra de cristal fotônico. Retirado de referência [14]

de modo a obtermos uma forte resposta não linear do meio. Com esse objetivo, o meio de propagação da luz escolhida para nossa montagem foi uma fibra de cristal fotônico (PCF). Essa fibra tem sua seção transversal conforme a figura 3.9. Temos dois mecanismos de confinamento da luz presentes nesse tipo de fibra, o contraste de índice de refração entre o núcleo sólido da fibra e as diversas cavidades com ar, e a microestrutura periódica presente que forma band gaps para os vetores de onda da luz, selecionando direções onde podem ou não ocorrer a propagação. Para que esses mecanismos de localização entrem em ação, é primeiro necessário que o feixe de luz original seja focalizado no núcleo da fibra, que tem diâmetro entre 2,4 e 3,2  $\mu\text{m}$ .

A dificuldade presente nessa montagem é a focalização do feixe de LASER no núcleo micrométrica da PCF. Para isso foi usado um aparato de posicionamento com precisão submicrométrica onde foi montada a PCF num suporte estável projetado especificamente para essa montagem. O layout final do experimento pode ser visto na figura 3.10.



**Figura 3.10:** Montagem experimental para geração de supercontínuo

# Capítulo 4

## Conclusões e Discussões

Buscou-se descrever neste trabalho a teoria e a prática do fenômeno de retroespalhamento coerente. Para isso, partiu-se da descrição teórica da interação entre a luz e a matéria, de modo a definir o conceito de espalhamento e partindo disso explicar a origem do fenômenos de retroespalhamento coerente que surgem por conta dos espalhamentos múltiplos em amostras com partículas dispersas aleatoriamente.

Em seguida, foram discutidas as primeiras observações experimentais do fenômeno realizada na década de 80, onde foram descritas as duas montagens experimentais distintas utilizadas. Descrevemos então duas aplicações recentes do fenômeno mostrando novos resultados referentes ao fenômeno em si e aplicações do mesmo.

Por último, descrevemos a prática de montagem e obtenção de dados de um experimento de retroespalhamento coerente baseada em um dos artigos originais que primeiro observaram o fenômeno. Discutimos então a análise de dados e alguns resultados obtido no curso do trabalho em laboratório além de uma possível adaptação do experimento de modo a tornar possível a obtenção de mais informações sobre as amostras por meio da utilização de um feixe de luz coerente com alta largura espectral e baixa largura temporal.

# Referências Bibliográficas

- [1] Lenke, R. and Maret, G., *Scattering in polymeric and colloidal systems*,(2000)
- [2] Akkerman,E. & Montanbaus,G., *Mesoscopic Physics of Electrons and Photons*(Cambridge University Press,2007)
- [3] Albada,M.P. Van & Lagendijk *Observation of Weak localization of Light in a Random Medium* , *Phys. Rev. Lett*,59,2692-2695,1985
- [4] Fazio,B. et al., *Coherent Backscattering of Raman Light*, *Nat. Photonics*11,170-176(2017)
- [5] Kaiser,R.,Labeyrie,G.,Miniatura,C.,Wilkowski,D.& Lin,I.N., *Coherent Light Scattering by Cold Atoms*1,286-287
- [6] Labeyrie,G. et al., *Coherente Backscattering of Light by Cold Atoms*, *Phys. Rev. Lett.*83,5266-5269 (1999)
- [7] Santos,D.V.dos., *Laser com Realimentação por Espalhamento de Luz*(2011)
- [8] Wolf,P.E.& Maret,G., *Weak Localization and Coherent Backscattering of Photons in Disordered Media*,*Phys. Rev. Lett*,55,2969-2699(1985)
- [9] R. Corey,M. Kissner & P. Saulnier, *Coherente Backscattering of Light* (Cambridge University Press,2007)
- [10] [https://en.wikipedia.org/wiki/Ray\\_transfer\\_matrix\\_analysis](https://en.wikipedia.org/wiki/Ray_transfer_matrix_analysis)
- [11] G.Fowles,*Introduction to Modern Optics*(Dover Publications,1975)
- [12] G.Fowles,*The Supercontinuum Laser Source: Fundamentals With Updated References* (2a ed.,Springer,2006)
- [13] O. L. Muskens, A. Lagendijk,*Broadband enhanced backscattering spectroscopy of strongly scattering media*,*Opt.Expr*16,122-1231

[14] [https://en.wikipedia.org/wiki/Photoniccrystal\\_fiber](https://en.wikipedia.org/wiki/Photoniccrystal_fiber)

[15] J.D.Joannopoulos,S.G.Johnson,J.N.Winn,R.D.Meade*Photonic Crystals: Molding the Flow of Light (2a ed.,Princeton University Press,2008)*