INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS PARA A GERAÇÃO E CONTROLE DA EMISSÃO EM LASERS ALEATÓRIOS E SPECKLE

DANILO MARIANO DA SILVA

Tese apresentada como parte dos requisitos para a obtenção do Grau de Doutor em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear – Materiais.

Orientador: Niklaus Ursus Wetter

SÃO PAULO

2016

Dedico esta tese à minha família e a minha namorada sensacional Regiane por todo o apoio incondicional e por estarem sempre ao meu lado

Dedico também a meus orientadores e co-orientadores Niklaus Wetter, Cefe Lopez, Eduardo Barbosa e Antônio Consoli por todos os ensinamentos, paciência, ajuda e amizade por todos estes anos

“ Se eu vi mais longe,

foi por estar sobre ombros de gigantes”

Issac Newton

“Para os crentes, Deus está no princípio das coisas.
Para os cientistas, no final de toda reflexão”

Max Planck

DESENVOLVIMENTO DE MÉTODOS PARA A GERAÇÃO E CONTROLE DA EMISSÃO EM LASERS ALEATÓRIOS E *SPECKLE*

Danilo Mariano da Silva

RESUMO

Neste trabalho serão apresentados novos métodos baseados na geração e controle de comprimento de onda em lasers aleatórios e lasers de diodo. Na primeira parte do trabalho será demonstrado um laser aleatório com realimentação localizada em filmes em biopolímeros dopado com corante. O filme é constituído por um ácido desoxirribonucleico e cloreto de cetiltrimetilamônio (DNA-CTMA) dopado com DCM. No dispositivo proposto, a realimentação óptica para o laser aleatório é dada por centros de dispersão posicionados aleatoriamente ao longo das bordas da área ativa. Os elementos de dispersão são nanopartículas de dióxido de titânio (TiO_2) ou defeitos aleatórios na interface entre o polímero ativo e ar. Diferentes espectros de emissão são observados, dependendo da geometria da área excitada. Um único ressonador aleatório com dimensões de 2.6 x 0.65 mm^2 foi fabricado com emissão aleatória com realimentação obtida pela excitação do dispositivo por completo. A segunda parte deste trabalho apresenta um novo método para a geração e manipulação de franjas de contorno por meio de interferometria *speckle* com comprimento de onda sintética, usando um único laser de diodo com cavidade externa. A cavidade externa permite sintonizar duas emissões simultaneamente, o que por sua vez muda o intervalo entre as franjas de contorno do interferômetro, além de aumentar a estabilidade do laser. Uma análise de Fourier é proposta como alternativa para medir o comprimento de onda sintético resultante das duas emissões do laser.

Palavras-chaves: Laser aleatório. DNA-CTMA. Interferometria *Speckle*. ECDL

DEVELOPMENT OF METHODS BASED ON THE GENERATION AND CONTROL OF RANDOM LASERS EMISSION AND *SPECKLE*

Danilo Mariano da Silva

ABSTRACT

In this work, a new method is presented based on generating and controlling the wavelengths emitted by diode lasers and random lasers. In the first part of this work, resonant feedback random lasing from dye-doped biopolymer films is reported, consisting of a deoxyribonucleic acid and cetyltrimethylammonium (DNA-CTMA) complex doped with DCM dye. In the device, the optical feedback for random lasing is given by scattering centers randomly positioned along the edges of the active area. Scattering elements are either titanium dioxide nanoparticles or random defects at the interface between active polymer and air. Different emission spectra are observed, depending on the geometry of the excited area. A single random resonator with dimensions of 2.6 mm x 0.65 mm is fabricated and random emission with resonant feedback is obtained by uniformly pumping the full device. The second part of this work presents a new method for generating and manipulating contour fringes produced with a single external cavity diode laser in a multi-wavelength *speckle* interferometer. The external cavity allows tuning two simultaneous emissions, which in turn changes the contour interval of interference fringes and also improves laser stability. A Fourier analysis is applied as an alternative method for acquiring the resulting synthetic wavelength from both emissions.

Keywords: Random laser, DNA-CTMA, *Speckle* Interferometry, ECDL

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO 1

2 OBJETIVOS 5

3 INTRODUÇÃO TEÓRICA 6

3.1 ESPALHAMENTO SIMPLES DA LUZ 6

3.1.1 Espalhamento Rayleigh 6

3.1.2 Espalhamento Mie 9

3.1.3 Padrão *Speckle* 12

3.2 MÚLTIPLO ESPALHAMENTO DA LUZ 14

3.2.1 Localização fraca da luz e retroespalhamento coerente 15

3.2.2 Localização forte da luz - localização Anderson 19

3.2.3 Conceitos básicos sobre laser 20

3.2.4 LASER RANDÔMICO 22

3.2.5 Tipos de laser aleatório – incoerente 24

3.2.6 Tipos de laser aleatório – coerente 25

4 LASER ALEATÓRIO COM REALIMENTAÇÃO LOCALIZADA 27

4.1 MATERIAIS E MÉTODOS 31

4.1.1 DNA como material fotônico 31

4.1.2 Sistemas π-conjugados 32

4.1.3 Propriedades de absorção, emissão e ação laser dos corantes 34

4.2 PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS 36

4.2.1 Síntese do complexo DNA-CTMA 36

4.2.2 Preparação do meio ativo - DNA-CTMA:DCM 37

4.2.3 Fabricação dos dispositivos 37

4.2.4 Centro espalhador: Nanopartículas de rutila (TiO_2) 38

4.2.5 Centro espalhador: Rugosidade do filme obtido com o corte por uma lâmina 39

4.2.6 Centro espalhador: Rugosidade do filme por ablação a laser 40

4.3 ARRANJO EXPERIMENTAL 42

4.4 RESULTADOS 44

4.4.1 Caracterização do ganho das amostras 44

4.4.2 Caracterização do coeficiente de absorção 47

4.4.3 Laser aleatório formado por espalhadores acoplados 48

4.4.4 Medidas da intensidade em função da energia de bombeio 53

4.4.5 Medida da transição entre laser aleatório incoerente (IFRL) para laser aleatório coerente (RFRL) 55
4.4.6 Laser aleatório com ampla área e realimentação ressonante 58
5 INTERFEROMETRIA *SPECKLE* COM LASER DE FREQUÊNCIA SINTÉTICA SINTONIZÁVEL 59
5.1 INTERFEROMETRIA POR PADRÃO DE *SPECKLE* ELETRÔNICO (ESPI) COM LASERS DE DIODO MULTÍMODO 60
5.2 LASER DE DIODO COM CAVIDADE ESTENDIDA (EXTERNAL CAVITY DIODE LASER-EDCL) 65
5.2.1 Conceito de sintonia por meio de refletividade efetiva 67
5.2.2 Oscilação com dois modos 68
5.3 INTERFERÔMETRO *SPECKLE* COM DOIS COMPRIMENTOS DE ONDA 70
5.4 RESULTADOS 73
6 CONCLUSÕES 76
7 BIBLIOGRAFIA 78

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

FIGURA 1 - Geometria do espalhamento Rayleigh [31] 7

FIGURA 2 - Geometria típica que representa o espalhamento Mie[36]. 11

FIGURA 3: Espalhamento da luz através de uma série de espalhadores- (a) $xi = xl$; $xf = xm$ (b) $xi = xm$; $xf = xl$;(c) outras configurações.[50] 17

FIGURA 4 - Diagrama representando a transição entre níveis de energia, destacando os processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada. 20

FIGURA 5 - Diagrama representando um laser aleatório[3] 22

FIGURA 6 - Diagrama esquemático de um laser aleatório com realimentação localizada[75] 28

FIGURA 7 - Estrutura molecular do DNA. 31

FIGURA 8 - a) Ilustração de orbitais σ e π em uma molécula de etileno; b) ilustração de um sistema π-conjugado em uma molécula de benzeno. 34

FIGURA 9 - Níveis de energia para um corante orgânico. Os níveis singleto e tripleto são mostrados em colunas separadas. 35

FIGURA 10 - Espectros da seção de choque de absorção e emissão do DCM à direita, e a molécula deste corante à esquerda. 36

FIGURA 11 - Etapas do processo de fabricação do complexo de DNA. 37

FIGURA 12 - Imagem de MEV do pó de TiO_2 usado na preparação da amostra. 38

FIGURA 13 - Diagrama esquemático da preparação da amostra com nanopartículas TiO_2 como centro espalhador. 39

FIGURA 14 - Diagrama esquemático da preparação da amostra com nanopartículas TiO_2 como centro espalhador. O corte foi efetuado ao longo da linha tracejada com um estilete. 39

FIGURA 15 - Imagem de MEV da extremidade da amostra com espalhadores gerados por um corte com lâmina no meio ativo 40

FIGURA 16 - Diagrama esquemático da preparação da amostra por ablação a laser. O corte foi realizado ao longo da linha tracejada. 41

FIGURA 17 - MEV da extremidade da amostra com espalhadores gerados por ablação a laser no meio ativo. A região à esquerda apresenta o filme de ablacionado por um laser, e a direita, o filme sem defeitos. 41

FIGURA 18 - Foto de uma amostra formada com diversos tipos de centros espalhadores: (I) TiO_2 (II) Ablação a laser (III) Corte com lâmina. 42

FIGURA 19 - Arranjo experimental usado para ensaios com lasers aleatórios. 42

FIGURA 20 - Técnica da faixa de comprimento variável: a) diagrama esquemático do princípio de funcionamento da técnica; b) imagem da amostra utilizada para a caracterização da emissão amplificada estimulada. A imagem apresenta a faixa de bombeio e a luz espalhada. 46

FIGURA 21 - (a) Espectro ASE medido para diferentes comprimentos da faixa de bombeamento, com curvas obtidas entre1,2 mm e 3,0 mm. A figura interna apresenta uma imagem coletada com CCD para uma faixa com 2,8 mm. (b) Intensidade total medida (pontos), obtida pela variação de 0,4 mm a 4,0 mm, e curva ajustada (linha sólida). 47

FIGURA 22 – (Curva preta com círculos) Intensidade integrada da luz emitida da extremidade do filme polimérico em função do tamanho da faixa de bombeio;(Curva azul com quadrados) Largura de linha de cada curva medida;(Curva sólida vermelha) Ajuste exponencial 47

FIGURA 23 - Intensidade integrada da luz emitida da extremidade do filme polimérico em função da distância de bombeio entre o centro de espalhamento e a faixa de bombeio. A distância varia de 0 a 765μm: Resultados experimentais (curva com pontos cheios) e ajuste exponencial (linha vermelha). 48

FIGURA 24 - Resultados experimentais obtidos com amostras com TiO2: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita da região emissora. 50

FIGURA 25 - Resultados experimentais obtidos com amostras sem TiO_2 com espalhadores formados pela ablação do meio ativo: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita da região emissora. . 50

FIGURA 26 - Resultados experimentais obtidos com amostras sem TiO_2 com espalhadores formados pelo corte do meio ativo com uma lâmina: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita (linha vermelha) da região emissora. 51

FIGURA 27 - A-Laser gerado em diferentes regiões do meio ativo B-Espectros de emissão normalizados da esquerda (linhas) e direita (tracejado) das extremidades dos lasers, bombeando o filme polimérico em diferentes posições do material. 52

FIGURA 28 - Dependência do espectro de emissão em função da energia de bombeio. A- Intensidade total detectada em função ao longo da escala de frequências. B- Intensidade dos modos 613.5 nm (curva azul), 616.7 nm (curva verde) e 620.0 nm (curva vermelha) em função da energia de bombeio. 54

FIGURA 29 - a) Diagrama do esquemático do dispositivo para estudo da transição entre random laser coerente e incoerente; b) Espectros de emissão normalizados da esquerda (linhas) e direita (tracejado) das extremidades dos lasers, bombeando o filme polimérico em diferentes posições do material. 55

FIGURA 30 - Perfil 3D dos espectros medidos em função de W, com L = 2,56 mm e EP = 20 pJ/μm^2. A largura W foi ajustada de 85 μm e 1,02 mm. 56

FIGURA 31 - Espectros medidos em função de W. a) Número de modos emitidos em função de W; b) Emissões detectadas por todo o espectro de frequência para cada perfil de bombeio. Exemplos de emissões com largura de faixa fixa em c) 255 μm, d) 595 μm e e) 0,97 mm, respectivamente. 57

FIGURA 32 - Experimentos realizados com o bombeio uniforme do dispositivo com dimensões de 2.6 mm x 0.65 mm (a). Espectros de emissão detectados das extremidades do dispositivo nos pontos nomeados de I-VI (b). 58

FIGURA 33 - ESPI com dois lasers baseado no interferômetro de Mach-Zehnder. 61

FIGURA 34 - Simulação de emissões de duas frequências diferentes de um laser e seus interferogramas correspondentes com sinal V. 65

FIGURA 35 - Diagrama esquemático das cavidades externas. b) Littrow e c) Littman-Metcalf 66

FIGURA 36 - Princípio de ajuste de uma ECDL [118] 67

FIGURA 37 - Diagrama esquemático do interferômetro speckle para interferometria com múltiplos comprimentos de onda. 71

FIGURA 38 - Arranjo Littman-Metcalf para um ECDL. 72

FIGURA 39 - Curva de sintonia de um ECDL como função do comprimento de onda sintético para várias correntes de alimentação. A curva sólida é apenas um guia para os olhos. 73

FIGURA 40 - Interferogramas diferentes de uma lente com comprimento focal f=5 cm obtidos com comprimentos de onda sintéticos selecionados. 74

FIGURA 41 - a) Espectro de emissão do laser de diodo para λS =140.29 μm; b) Transformada de Fourier do espectro; c) franja de contorno gerado com dois comprimentos de onda por uma frente de onda esférica. 75

FIGURA 42 - a) Espectro de emissão do laser de diodo para λS =178.84 μm; b) Transformada de Fourier do espectro; c) franja de contorno gerado com dois comprimentos de onda por uma frente de onda esférica. 75

1 INTRODUÇÃO

O transporte e difusão da luz por meios opacos e espalhadores é um fenômeno onipresente que faz parte do nosso dia-a-dia. O múltiplo espalhamento pode ser observado nos mais diversos materiais como materiais biológicos, nuvens, na atmosfera, líquidos brancos e papel [1]. Na óptica aplicada e fotônica, entretanto, este fenômeno foi em muitas situações evitado inicialmente, em algumas vezes até considerado problema. Como exemplo temos os lasers randômicos, que levaram mais de trinta anos para se estabelecer como uma linha de pesquisa desde sua proposta em 66 por Ambartsumyan e Letokhov [2], onde a proposta foi apresentar a ação laser em uma cavidade com um espelho substituído por espalhador. Outro exemplo está na luz coerente espalhada por uma superfície, resultando em um padrão de interferência conhecido como *speckle* ou granulado óptico. Este efeito era considerado um ruído que deveria ser evitado. Hoje sabe-se que, por esses espalhamentos serem elásticos, não perdem a informação óptica.

Hoje existe uma grande tendência para se estudar os mais diversos efeitos do múltiplo espalhamento da luz, a fim de formar novos dispositivos ópticos em materiais desordenados. Neste trabalho, os nossos esforços voltaram-se para o desenvolvimento tanto de novos lasers em meios difusos quanto de um meio para análise da luz difusa.

O desenvolvimento de um laser aleatório consiste da distribuição aleatória de centros espalhadores embebidos em um meio de ganho [1,2]. A realimentação óptica é dada pelo múltiplo espalhamento dentro do meio ativo, resultando em uma emissão omnidirecional com alta coerência temporal e baixa coerência espacial [5]. Esta característica proporcionou as primeiras aplicações baseadas em sistemas de formação de imagem sem *speckle* [6] e promissora para displays e aplicações em iluminação [7].

A emissão de um laser aleatório foi reportada com dois regimes de operação diferentes para explicar sua origem: (i) regime com realimentação ressonante (*resonant feedback*) [8], caracterizado por um espectro com múltiplos modos com largura espectral sub-nanométrica e frequências aleatórias das emissões laser, e (ii) regime de realimentação incoerente (também conhecido como realimentação de intensidade – *intensity feedbac*k) [9], consistindo de um espectro com uma única frequência com ampla largura espectral (da

ordem de nanômetros), originado da realimentação apenas da amplitude, ou seja, emissão sem cavidade ressonante [10]. Recentemente, uma interpretação alternativa à emissão incoerente foi dada pela associação do espectro a um alto número de modos que, acoplados mutuamente, resulta em uma emissão sincronizada que lembra o comportamento de laser clássico com travamento de modos [9,10].

Lasers randômicos já foram obtidos em diversos tipos de materiais, tais como: semicondutores em pó [8], suspensões coloidais [9], fibras ópticas [13], tecidos biológicos [14], cristais líquidos [15] e polímeros [16], demonstrando a facilidade de fabricação e flexibilidade em termos de escolha de materiais para estes dispositivos.

Em filmes poliméricos, a ação laser foi obtida pela integração de partículas espalhadoras nas amostras [17] ou pela vantagem da variação aleatória no índice de refração devido a rugosidade e irregularidades [18]. Polímeros baseados em DNA são uma escolha promissora pela amplificação da luz e laser [17,18] tanto em cavidades tradicionais quanto ressonadores aleatórios [21].

A ação laser em lasers aleatórios é normalmente obtida com a realimentação espacialmente distribuída, onde os elementos espalhadores estão imersos no material ativo. Pó de semicondutores [8] e suspensões coloidais de partículas espalhadoras em soluções com corantes [9] são exemplos de laser aleatório com realimentação espacialmente distribuída, onde variações locais e aleatórias do índice de refração são introduzidas na região de ganho, obtendo um meio espalhador amplificador.

Uma abordagem diferente foi proposta nos primeiros trabalhos sobre lasers sem cavidade ressonante [22,23], onde o cristal laser foi posicionado entre um espelho e uma superfície espalhadora. Baseamo-nos neste conceito para definir o mecanismo de realimentação espacialmente localizado, desde que o meio ativo e os elementos espalhadores estejam separados espacialmente. Nos primeiros trabalhos, entretanto, o espectro típico de um laser aleatório coerente, ou seja, uma emissão multimodo com picos estreitos posicionados em frequências aleatórias, não foi observado. O espectro característico foi observado pela primeira vez no trabalho de Cao et al, cerca de 30 anos depois [8].

Neste trabalho será apresentada uma proposta de lasers aleatórios com realimentação espacialmente localizada, onde dois elementos espalhadores são posicionados nas extremidades de um meio de ganho excitado opticamente. Do meio espalhador foi detectada uma emissão multimodo com picos estreitos posicionados em frequências aleatórias, servindo se elemento de realimentação e acoplamento de saída. Desta maneira, a luz

propagando ao longo do meio ativo é continuamente amplificada e retroespalhada pelo meio espalhador, fechando o ciclo de realimentação.

Um dispositivo foi desenvolvido baseado no princípio acima, onde a emissão laser é detectada a partir dos elementos espalhadores posicionados nas extremidades mais distantes do meio de ganho. As dimensões do dispositivo são de $2600\times650\ \mu m^2$, com emissão de alto brilho de todas as extremidades, onde a luz é espalhada para todas as direções.

Este laser aleatório é caracterizado por apresentar uma frente de onda com alta coerência temporal devida aos picos estreitos na emissão, e baixa coerência espacial devida ao espalhamento para todas as direções, indicando que este tipo de laser pode ser uma alternativa como fonte de iluminação.

A análise e caracterização deste tipo de frente de onda foi outra preocupação neste trabalho. Neste caso, buscamos montar um arranjo convencional para a caracterização de frentes de onda com múltiplos comprimentos de onda, por ser um método importante no campo da óptica que vem sendo utilizada por muitos anos, além de possuir uma ampla gama de aplicações.

Dentre as diferentes técnicas que aplicam mais de um comprimento de onda, a interferometria de padrão *speckle* digital (*digital speckle pattern interferometry* - DPSI) com dois lasers tem demonstrado resultados promissores na análise de frente de onda e lentes térmicas [23]. Em ambos os casos, dois lasers com emissão na região do vermelho foram convenientemente sintonizados pelo ajuste na corrente de alimentação e alinhados para gerar uma frequência sintética, permitindo a caracterização térmica de materiais fotônicos [24] e a medida de potência óptica ao longo de toda a área tanto de lentes esféricas, quanto de lentes progressivas [25].

Ao iluminar um interferômetro com dois lasers propriamente alinhados e sintonizados, geramos um comprimento de onda sintético que é muito maior que os comprimentos de onda originais, o que representa uma extensão das escalas de medida comparado a um interferômetro com um único laser, e também representa uma redução na sensibilidade de medidas [26]. Esta característica leva a uma grande flexibilidade na escolha de diferentes aplicações, uma vez que permite aferir distâncias com uma ampla faixa de resolução, indo de nanômetros até milímetros [27], [28].

Apesar dos bons resultados experimentais obtidos nestes trabalhos, um problema enfrentado nesta técnica é a dificuldade em estabilizar as emissões dos dois lasers simultaneamente. O valor resultante da frequência pode ser instável, necessitando de um

processo de resfriamento cuidadoso para estabilizar as emissões termicamente, resultando em um tempo de vida relativamente maior para a frequência sintética enquanto as emissões estiverem estacionadas com relação a intensidade e emissão central.

Neste trabalho é proposto o uso de um laser de diodo com cavidade estendida (*external cavity diode laser* - ECDL) como maneira de obter uma emissão dupla estável e fácil de sintonizar, possibilitando a aquisição de franjas de contorno geradas em tempo real permitindo o controle do comprimento de onda sintético em um interferômetro *speckle* com múltiplos comprimentos de onda. Utilizando um laser de cavidade estendida é possível travar a amplitude relativa e as mudanças de frequência de ambas as emissões, assim, resultando em um padrão de franjas muito mais estável [29].

O comprimento de onda sintético pode mudar fazendo deste interferômetro uma ferramenta conveniente tanto para aplicações homódinas (um comprimento de onda) ou heteródinas (dois comprimentos de onda).

No presente trabalho, a emissão de duas frequências de um único diodo com cavidade estendida resultou em frequências sintéticas ao serem aplicadas a um interferômetro. Também, será apresentada a manipulação deste comprimento de onda sintético e uma análise de Fourier para identificar as frequências sintéticas geradas a partir da emissão do laser.

Esta tese foi dividida em sete capítulos. Este primeiro capítulo apresentou uma introdução geral sobre os temas estudados. O capítulo 2 apresenta os principais objetivos desta tese de forma mais específica. O capítulo 3 contêm tópicos com teoria básica sobre espalhamento da luz (espalhamento simples com Rayleigh, Mie e *speckle*, e múltiplo espalhamento), tipos de localização da luz, teoria básica de laser e lasers aleatórios. O capítulo 4 dedica-se à teoria e experimento realizados com lasers aleatórios com realimentação localizada. O capítulo 5 é dedicado à teoria e experimentos com interferometria *speckle* com múltiplos comprimentos de onda com um único laser com cavidade estendida. E os capítulos 6 e 7 apresentam as conclusões finais e bibliografia, respectivamente.

2 OBJETIVOS

O objetivo deste trabalho é o estudo do comportamento da luz em meios difusos. A proposta da primeira para parte do trabalho é apresentar uma nova metodologia para se trabalhar com lasers aleatórios. Para isso, será apresentada uma nova geometria onde os componentes básicos para a geração da ação laser em meios difusos, centros espalhadores e meio de ganho, serão espacialmente separados, similar a um laser convencional com uma cavidade Fabry-Perot em que os espelhos são substituídos por superfícies difusas. Desta forma, esperamos aumentar a eficiência em tais lasers, uma vez que são diminuídas as perdas por múltiplo espalhamento, pois a oscilação dependerá unicamente do retroespalhamento da luz pelos difusores, que é continuamente amplificada no meio de ganho.

Além da ação laser, uma segunda proposta deste trabalho é o estudo da coerência espacial da luz refletida em meios difusos. Neste sentido, foi escolhida a interferometria *speckle* com dois comprimentos de onda para caracterizar frentes de onda difusas. A proposta é aproveitar as características desta técnica para avaliar o efeito da coerência na formação de imagens. A interferometria *speckle* é famosa por fornecer informações de superfícies espalhadoras, tais como relevo, rugosidade ou efeitos aplicados no material, e utilizar um segundo comprimento de onda a faixa de medidas possíveis, pois o batimento entre os padrões de interferência de diferentes comprimentos de onda resulta em um comprimento de onda sintético que pode ser ordens de grandeza maior que os comprimentos de onda originais. Assim, o objetivo é apresentar uma nova metodologia para interferometria *speckle*, porém com um laser com cavidade estendida para possibilitar o controle e a visualização em tempo real do batimento. Além disso, propomos uma avaliação do espectro emitido para extrapolar o batimento resultante a partir de um espectro com múltiplos comprimentos de onda, desenvolvendo assim uma técnica versátil para futuros estudos que envolvem a compreensão de efeitos relacionados a múltiplo espalhamento da luz e avaliação de laser aleatório com múltiplos comprimentos de onda para uso como fonte de iluminação.

3 INTRODUÇÃO TEÓRICA

3.1 ESPALHAMENTO SIMPLES DA LUZ

A luz pode interagir de diferentes maneiras com partículas espalhadoras dependendo de seu tamanho, forma e composição. Quantitativamente, o espalhamento da luz possui três regimes distintos. Espalhamento Rayleigh, espalhamento Mie e óptica geométrica. O espalhamento Rayleigh ocorre quando a dimensão da partícula *x* é muito menor que o comprimento de onda incidente, $\lambda \gg x$. O espalhamento por um conjunto de átomos pode ser escrito como produto da seção transversal de um único átomo e um fator de estrutura que se origina da soma dos campos espalhados dos átomos individuais.

Se o espalhador é muito maior que o comprimento de onda, consistindo de átomos com uma separação $d \ll \lambda$, as ondas emanando de cada átomo se anulam em todas as outras direções. O meio passa a ser considerado homogêneo, e pode-se aplicar óptica geométrica para explicar o espalhamento.

Quando a dimensão da partícula espalhadora é da mesma ordem de grandeza que o comprimento de onda incidente, $\lambda \approx x$, a teoria de Mie é utilizada para estudar o espalhamento da luz, caracterizado pela geração de fortes ressonâncias que ocorre na partícula devido a interferência do campo espalhado.

Os principais parâmetros utilizados para caracterizar o espalhamento são: o tamanho da partícula *x* e o índice de refração relativo *m*.

$$x = ka \equiv \frac{2\pi ma}{\lambda}; \quad m \equiv \frac{n_1}{n} \tag{1}$$

onde a é o raio da partícula e, n_1 e n são os índices de refração do meio e do espalhador, respectivamente.

3.1.1 Espalhamento Rayleigh

Se as moléculas são esféricas, como hélio ou outro gás nobre, a seção de choque de espalhamento Rayleigh pode ser expressa pela radiação de um dipolo oscilante infinitamente pequeno [30]. A amplitude e a intensidade de um campo elétrico propagando de um dipolo são dados por

$$\left|\overrightarrow{E_s}(r,\phi)\right| = \frac{\omega^2 p \operatorname{sen}\phi}{4\pi r \varepsilon_0 c^2} \tag{2}$$

e

$$I_s(r,t) = \frac{\varepsilon_0 c \left|\overrightarrow{E_s}(r,\phi)\right|^2}{2} \tag{3}$$

onde ω é a frequência oscilante, p é a magnitude do momento do dipolo oscilante induzido pelo campo incidente, c é a velocidade da luz no vácuo e ε_0 é a permissividade elétrica no vácuo. A geometria do espalhamento é apresentada na FIG. 1 onde o dipolo $\vec{p}$ está a um ângulo β com o eixo vertical z; ϕ é o ângulo de observação com respeito ao vetor do dipolo. O vetor do campo elétrico espalhado $\overrightarrow{E_s}(r,\phi)$ é perpendicular ao vetor de propagação $\hat{O}$, e está disposto no plano do vetor do dipolo e vetor da propagação do espalhamento θ_x, θ_y e θ_z são os ângulos de espalhamento com respeito aos eixos $\hat{x}$, $\hat{y}$ e $\hat{z}$. O termo ω^2 na equação 1 vem do fato da amplitude da radiação ser proporcional à aceleração da carga oscilante.

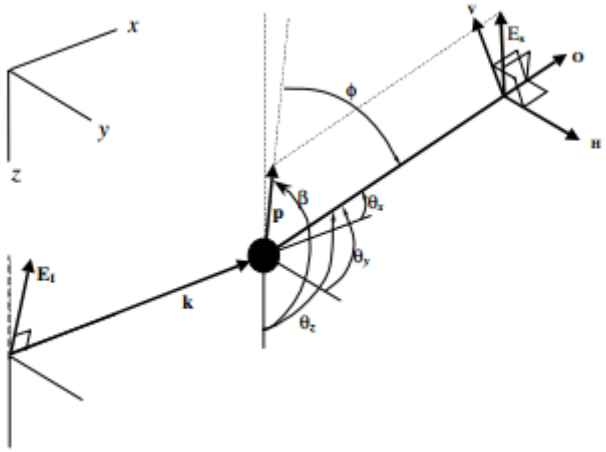

FIGURA 1 - Geometria do espalhamento Rayleigh [31]

Se o dipolo se comporta como um oscilador harmônico, então a aceleração é a derivada do deslocamento. A dependência de $\operatorname{sen}^2\phi$ é a projeção da amplitude aparente do momento do dipolo como visto da direção de observação. Quando a posição de observação é ao longo do momento do dipolo, esta projeção aparente tende a zero, e não há campo radiante. Os componentes do campo não radiante desaparecem com distância maiores que $1/r$, e são negligenciados, o que implica que o campo elétrico está sendo medido como muitos comprimentos de onda de um dipolo.

A intensidade da luz espalhada de um único dipolo oscilante é:

$$I_s = \frac{\pi^2 c p^2 \operatorname{sen}^2 \phi}{2\varepsilon_0 \lambda^4 r^2} \tag{4}$$

onde λ é o comprimento de onda no vácuo, $\lambda = 2\pi c/\omega$.

O espalhamento da luz ocorre quando a oscilação do dipolo é causada pela incidência da radiação eletromagnética. Para o caso de uma molécula esférica, o momento de dipolo $\vec{p}$ é induzido na mesma direção da polarização do campo incidente, e é linearmente proporcional ao campo elétrico incidente $\overrightarrow{E_I}$. A constante escalar de proporcionalidade é chamada de polarizabilidade α.

$$\vec{p} = \alpha \overrightarrow{E_I} \tag{5}$$

Substituindo $p^2 = \alpha^2 |E_I|^2$ e $I_I = (\varepsilon_0 c)|E_I|^2$, nós temos a intensidade espalhada por uma molécula e a seção de choque diferencial dadas respectivamente por,

$$I_s = \frac{\pi^2 \alpha^2}{\varepsilon_0^2 \lambda^4 r^2} I_I \operatorname{sen}^2 \phi \tag{6}$$

$$I_s = \frac{\partial \sigma_{se}}{\partial \Omega} \frac{1}{r^2} I_I \tag{7}$$

onde se denomina-se simetria esférica, indicado o espalhamento de uma partícula, e

$$\frac{\partial \sigma_{se}}{\partial \Omega} = \frac{\pi^2 \alpha^2}{\varepsilon_0^2 \lambda^4} \operatorname{sen}^2 \phi \tag{8}$$

Integrando a intensidade por toda a área de superfície de uma esfera fechada, o dipolo nos dá o poder de espalhamento total de uma molécula

$$P = \frac{8\pi^3 \alpha^2}{3\varepsilon_0^2 \lambda^4} I_I \tag{9}$$

O poder de espalhamento total é frequentemente descrito em termos da seção de choque de espalhamento total:

$$\sigma_{se} = \frac{P}{I_I} = \frac{8\pi^3 \alpha^2}{3\varepsilon_0^2 \lambda^4} \tag{10}$$

A polarizabilidade pode ser relacionada com o índice de refração n pela equação de Lorentz-Lorentz [30]:

$$\alpha = \frac{3\varepsilon_0}{N}\frac{n^2-1}{n^2+2} \tag{11}$$

onde N é o número relacionado a densidade do gás, moléculas por m^{-3}. Então, a seção de choque de espalhamento para um espalhador simétrico pode ser escrita como

$$\sigma_{se} = \frac{24\pi^3}{\lambda^4 N^2}\left(\frac{n^2-1}{n^2+2}\right)^2 \tag{12}$$

Note que $(1/N)[(n^2-1)/(n^2+2)]$ é independente da densidade, como requerido por α para ser propriedade individual de um átomo ou molécula. $3/(n^2+2)$ é um fator de correção do campo que geralmente é válido para gases e aproximadamente válido para líquidos e sólidos [32]. Como o índice de refração é aproximadamente 1 para a atmosfera e outros gases de baixa densidade, a seção de choque de espalhamento pode ser aproximada para

$$\sigma_{se} \cong \frac{32\pi^3}{3\lambda^4}\left(\frac{n-1}{N}\right)^2 \operatorname{sen}^2\phi \tag{13}$$

Pelo resultado acima podemos notar que a seção de choque de espalhamento Rayleigh é inversamente proporcional à quarta potência do comprimento de onda, o que explica a cor azul do céu devido ao maior espalhamento de comprimentos de onda menores. Outra característica apresentada é a dependência do quadrado do índice de refração das partículas em relação ao meio, indicando que a seção de choque de espalhamento pode ser modificada com variação no índice de refração, levando o fenômeno a um espalhamento não-linear [33].

3.1.2 Espalhamento Mie

Quando os espalhadores se tornam maiores, o problema do espalhamento se torna mais complicado. Primeiro, o espalhador não pode mais ser simplificado a apenas um dipolo

porque radiações de ordens superiores (dipolo magnético, quadrupolo elétrico, ...) são levadas em conta. Segundo, a relação entre a distribuição de carga induzida e o campo incidente não podem ser tratados como um caso estático, mas com as equações de Maxwell com condições de contorno para o espalhador em particular ser resolvido estritamente. Como consequência da linearidade das equações de Maxwell e das condições de contorno, a amplitude do campo espalhado é uma função linear da amplitude do campo incidente. Na região do campo distante, onde kr $\gg 1$, o campo espalhado E_S pode ser decomposto em duas componentes E_{S1} e E_{S2}, que são os planos paralelo e perpendicular do espalhamento. A relação entre o campo espalhado e incidente está apresentada na forma de matriz [34] a seguir,

$$\begin{pmatrix} E_{S2} \\ E_{S1} \end{pmatrix} = \frac{e^{-ik(r-z)}}{-ikr} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{i2} \\ E_{i1} \end{pmatrix} \tag{14}$$

onde os elementos S_j (j=1,2,3,4) da amplitude de espalhamento na matriz dependem do ângulo de espalhamento θ, e do ângulo azimutal φ. No caso geral, a polarização é alterada pelo espalhamento através dos elementos não diagonais da matriz. O espalhamento é simplificado se o espalhador é esférico, onde $S_3 = S_4 = 0$ e S_1 e S_2 dependendo apenas de θ. Considerando o campo como sendo determinado à distâncias muito maiores que o comprimento de onda, podemos determinar as funções de espalhamento, dadas pelas expressões a seguir [32], [35],

$$S_1(\Theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \pi_n(\cos\Theta) + b_n \tau_n(\cos\Theta)] \tag{15}$$

$$S_2(\Theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \tau_n(\cos\Theta) + b_n \pi_n(\cos\Theta)] \tag{16}$$

onde n representa o número do modo, indicando que é o número de comprimentos de onda ao redor da circunferência de uma esfera. A dependência de Θ na seção de choque diferencial nas equações 15 e 16 vêm das funções π e τ, enquanto os coeficientes a_n e b_n são dependentes do índice de refração relativo $m = n_s/n_m$, onde n_s e n_m são o índice de refração do espalhador e do meio, respectivamente, e dependente de tamanho $\alpha = 2\pi n_m x/\lambda$, onde x é o diâmetro da esfera e λ é o comprimento de onda.

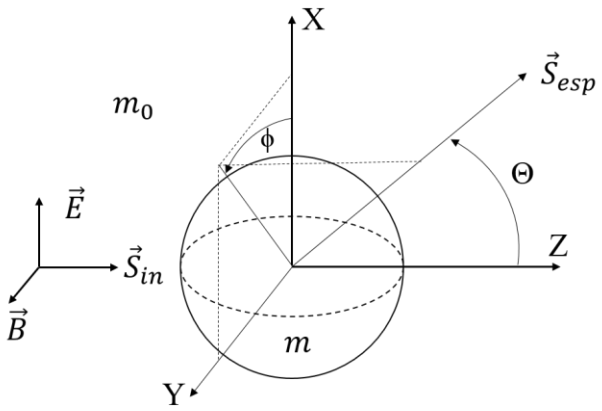

FIGURA 2 - Geometria típica que representa o espalhamento Mie[36].

O ângulo de espalhamento Θ é definido na FIG. 2 e pode ser calculado por,

$$\pi_n(\cos\Theta) = \frac{1}{\sin\Theta} P_n^1(\cos\Theta) \tag{17}$$

$$\tau_n(\cos\Theta) = \frac{d}{\mathrm{d}\,\Theta} P_n^1(\cos\Theta) \tag{18}$$

As funções π e τ são polinômios de Legendre [32]. Os coeficiente a_n e b_n são dados por

$$a_n = \frac{m\Psi_n(\alpha)\Psi'_n(m\alpha) - m\Psi_n(m\alpha)\Psi'_n(\alpha)}{\xi(x)\Psi'_n(m\alpha) - \mathrm{m}\Psi_n(m\alpha)\xi'_n(\alpha)} \tag{19}$$

$$b_n = \frac{m\Psi_n(\alpha)\Psi'_n(m\alpha) - m\Psi_n(m\alpha)\Psi'_n(\alpha)}{m\xi(\alpha)\Psi'_n(m\alpha) - \Psi_n(m\alpha)\xi'_n(\alpha)} \tag{20}$$

O termo x representa o parâmetro de tamanho e o termo m representa a parte imaginária do índice de refração. Os termos $\Psi'_n(m\alpha)$ e $\xi(\alpha)$ são funções de Ricatti-Bessel e escritas em termos da função esférica de Bessel.

A teoria de Mie permite calcular os campos resultantes de uma onda plana espalhada por uma esfera, e assim determinar a seção de choque total da partícula. Para isso, considera-se a componente da onda espalhada na direção e polarização da onda incidente ($\theta = 0, \phi = 0$), resultando na seguinte equação [30],

$$\frac{\sigma_t}{\pi a^2} = \frac{2}{a^2}\sum_{n=1}^{\infty}(2n+1)\{Re(a_n + b_n)\} \tag{21}$$

Este parâmetro é importante para determinar características de um meio desordenado. A partir da seção de choque, podemos determinar juntamente o livre caminho médio uma vez que temos o número de partículas por unidade de volume do meio ρ.

$$l = \frac{1}{\sigma_t \rho} \tag{25}$$

3.1.3 Padrão *Speckle*

O padrão *speckle* é uma distribuição de intensidade aleatória observada quando uma superfície rugosa é iluminada por uma fonte de luz coerente, sendo a rugosidade desta da mesma ordem de grandeza do comprimento de onda utilizado. Este fenômeno é formado pela introdução de uma fase aleatória sobre todas as ondas parciais que são somadas em um ponto de observação determinado, gerando uma intensidade aleatória devido a efeitos de interferência.

A descrição estatística do *speckle* foi desenvolvida originalmente por Goodman [37] e Dainty [38]. O modelo descreve o campo refletido de um meio aleatório sendo constituído por espalhadores discretos em um volume finito. A amplitude complexa do campo em um determinado ponto no espaço pode ser expressa pela soma de fasores aleatórios (vetores de onda aleatórios). Cada fasor na soma é uma onda parcial com fase aleatória espalhada de uma superfície, e que chega a um ponto de observação. A amplitude complexa *E* do campo em um ponto de observação é dada por [37], [39]

$$E = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{j=1}^{N} A_j e^{-i\phi_j} = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{j=1}^{N} A_j e^{-ikr_j} \tag{23}$$

onde A_j é a magnitude aleatória de *j* fasores randômicos elementares, *r* é a distância do ponto de espalhamento da superfície *j* até o ponto de observação, e $\phi_j = kr_j$ representa as fases aleatórias . As propriedades da amplitude complexa na eq. 23 são determinadas pelas

propriedades estatísticas de um fasor aleatório elementar. As considerações assumidas por Goodman [37] para validar este modelo são: (a) para cada elemento aleatório *j*, magnitude A_j e fase aleatória ϕ_j são estatisticamente independentes, e independentes de todas as outras magnitudes e fases aleatórias, e (b) a fase ϕ_j é uniformemente distribuída entre $-\pi$ e π. A consideração (b) é válida apenas se a rugosidade da superfície for maior que o comprimento de onda. O modelo da soma de fasores aleatórios com estas considerações pode ser interpretado como uma trajetória aleatória em um plano complexo, onde a magnitude de cada passo é independente de sua direção, e há a mesma probabilidade de dar um passo para qualquer direção em particular.

Para um grande número de fasores, o limite $N \to \infty$ pode ser usado, permitindo que o teorema do limite central possa ser aplicado [40]. Sob as considerações (a) e (b), a função densidade de probabilidade para uma amplitude complexa, dada na eq. 23, pode ser expressa por suas componentes real e imaginária $E = E^r + jE^i$, na forma Gaussiana a seguir,

$$p_{r,i}\left(E^r, E^i\right) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} e^{\left[-\frac{1(E^r)^2+(E^r)^2}{2 \quad 2\sigma^2}\right]} \tag{24}$$

$$\sigma^2 = \lim_{N\to\infty} \frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N} \frac{\langle A_k^2 \rangle}{2} \tag{25}$$

As componentes real e imaginária da amplitude complexa possuem média igual a zero, $\langle E^r \rangle = \langle E^i \rangle = 0$, apresentam variâncias iguais $\langle (E^r)^2 \rangle = \langle \left(E^i\right)^2 \rangle = \sigma^2$, e são não correlacionadas $\langle E^r E^i \rangle = 0$. As chaves $\langle \cdots \rangle$ representam a média por toda a superfície rugosa estatisticamente equivalente. Sob estas condições a estatística da amplitude complexa, descrita pela função densidade de probabilidade na eq. 24 é dita como sendo uma gaussiana complexa circular com média-zero.

Para a maior parte dos experimentos realizados em frequências ópticas, a intensidade da onda é usualmente medida diretamente. Portanto, é importante determinar a estatística da intensidade e fase total em pontos determinados. As componentes real e imaginária do campo são relacionadas a intensidade *I* e a fase total θ pelas relações

$$\begin{aligned} E^r &= \sqrt{I}\cos\theta \\ E^i &= \sqrt{I}\,\mathrm{sen}\,\theta \end{aligned} \tag{26}$$

Usando técnica padrão para transformações de variáveis aleatórias [37], a densidade de probabilidade marginal para a intensidade é calculada usando (24) e (26)

$$p_I(I) = \frac{1}{\mu_I} e^{-\frac{1}{\mu_I}} \; para \; I \geq 0 \tag{27}$$

onde $\mu_I = 2\sigma^2$ é a média da intensidade. E a densidade de probabilidade marginal para a fase é dada por

$$p(\theta) = \frac{1}{2\pi} \; para - \pi \leq \theta \leq \pi \tag{28}$$

Então, assumindo (a) e (b), a estatística para o campo é uma Gaussiana complexa circular com média-zero, para a intensidade ela é uma exponencial negativa, e para a fase total ela é uniformes entre $-\pi$ e π. Tanto que o padrão *speckle* é dado como totalmente desenvolvido estatisticamente [37].

Em alguns experimentos, as premissas (a) e (b) podem não ser sustentadas, como por exemplo quando a fase aleatória não é uniformemente distribuída entre $-\pi$ e π, ou o número de ondas parciais espalhadas *N* é pequeno e a aplicação para o teorema do limite central não é confiável. Neste caso, temos um padrão *speckle* não-Gaussiano, e este pode ser analisado por outros métodos, apresentadas nestes trabalhos [41]–[43].

3.2 MÚLTIPLO ESPALHAMENTO DA LUZ

Dentre os modelos que descrevem o múltiplo espalhamento da luz, a aproximação por difusão é um dos métodos mais simples.

O transporte da luz por múltiplos espalhamentos elásticos em um meio está fortemente dependente da relação de dois parâmetros: o tamanho médio *S* dos espalhadores que compõe o meio e o comprimento de onda λ da radiação. Se λ >> S, a resolução espacial da onda não resolverá os defeitos e faltas de homogeneidade, e o espalhamento será fraco. Neste caso, pode-se assumir que o meio é localmente homogêneo e o material não uniforme é composto por partículas subatômicas discretas. Já em um meio largo, há um acumulo de efeitos espalhadores e o transporte de uma onda difusa é estabelecido. A aproximação por difusão considera o transporte de fótons como o processo de uma trajetória aleatória e tanto

a fase quanto a interferência da luz em um meio homogêneo não são levados em consideração. Entretanto, sob certas condições, oferece uma representação correta da propagação da luz na presença de múltiplos espalhadores.

Outro parâmetro importante para caracterizar a difusão da luz em meios túrbidos é o livre caminho médio de transporte l^*, que representa a distância média que a luz percorre no meio sem sofrer alteração na direção e na fase, e mantendo a distribuição de intensidade isotrópica [44]. Um último parâmetro a ser considerado é o livre caminho médio de espalhamento L_S, que é a distância média entre dois evento de espalhamento. O fenômeno de difusão no espalhamento múltiplo de ondas em amostras macroscópicas é descrito com constante de difusão igual a $D = l^* v/3$, onde v é a velocidade média de propagação da energia no meio espalhador e l^* é o livre caminho médio de transporte. O processo pode ser descrito segundo a seguinte equação:

$$\frac{\partial \phi(r,t)}{\partial t} = D\Delta^2 \phi(r,t) \tag{29}$$

onde ϕ é a densidade de fótons e D é o coeficiente de difusão, v pode ser menor que a velocidade de propagação de uma onda no espaço livre. A interferência das ondas não é considerada neste modelo. Para ser totalmente acurado, o modelo de difusão necessitaria incluir as propriedades inerentes à fase e o incremento na intensidade devido a interferência construtiva da luz pelo reforço da luz espalhada na mesma direção de incidência, conhecido como cone de retroespalhamento [45]. Apenas este incremento da intensidade é levado em conta neste modelo, e por conta disto, tende a diminuir o constante de difusão, produzindo então uma perturbação artificial. De fato, a diminuição da constante de difusão é diretamente relacionada a perturbação do meio. A densidade de espalhadores determina a aplicabilidade da aproximação por difusão. Para um baixo número de espalhadores, as ondas propagam-se pelo meio, validando o método para explicar o espalhamento. Caso contrário, para alta densidade de espalhadores, o método de difusão não é apropriado e ocorre localização das ondas [46][47][48].

3.2.1 Localização fraca da luz e retroespalhamento coerente

O modelo de difusão, embora descreva bem muitos fenômenos experimentais para o múltiplo espalhamento da luz, ignora efeitos de interferência. Entretanto, a interferência

sobrevive ao espalhamento múltiplo, como pode ser observado no padrão *speckle* em reflexões e transmissões da luz coerente após incidir em meios espalhadores. Se os espalhadores podem mover-se por distâncias da ordem do comprimento de onda da luz ou mais dentro da escala de tempo de medida, a distribuição espacial da intensidade espalhada será a média dos padrões de *speckle* que vão alternando até a intensidade ser totalmente uniforme. Por exemplo: amostras líquidas em que os espalhadores estão sujeitos a movimento Browniano, ou amostras rígidas que estão girando, levam a um padrão uniforme de intensidade se não houver interferência entre os caminhos da luz. Um tipo de interferência sobrevive, entretanto. Exatamente na direção contrária de incidência da luz, as ondas propagam-se ao longo do mesmo caminho em direções opostas (caminhos reversos no tempo) e sempre terão a mesma fase e interferem construtivamente.

Afastando-se desta direção, a diferença de fase aumenta e a somatória das ondas espalhadas de diferentes caminhos se torna incoerente. Como consequência, a intensidade medida na direção de retro espalhamento será duas vezes maior que a intensidade em outras direções. Este fenômeno é chamado de localização fraca da luz, que se manifesta na forma de um cone de retro espalhamento coerente (*Coherent Backscattering* - CBS)[49].

Para entender o fenômeno de localização fraca da luz, vamos abordar as teorias que se baseiam na difusão da luz em meio desordenados utilizando eletromagnetismo clássico. [32], [50]. Para calcular a parcela de luz espalhada de forma retroativa, vamos considerar k_i, com comprimento de onda λ, representando o vetor de onda incidente no meio que sofre o primeiro espalhamento no ponto x_i. Este feixe se propaga no meio e sofre uma série de espalhamentos elásticos com vetores de onda k_i, k_l, ..., $k_n = k_f$, onde k_j é o vetor de onda depois do j^{th} evento de espalhamento ek_f é o vetor de onda final. Para a teoria de transporte clássico, assume-se que todas as possíveis sequências não são correlacionadas como resultado da natureza aleatória da distribuição dos espalhadores. Contudo, para qualquer sequência contra-propagante também com vetor de incidência inicial k_l espalhado em um ponto inicial x_i, e saindo do meio em uma posição x_m com vetor k_f. A intensidade espalhada da luz em um ângulo θ, entre k_i e k_f, é dada pela soma dos quadrados de todos os campos

$$I(\theta) = \sum_{i,l,m,f} E\left(x_i, k_i; x_f, k_f\right) E^*\left(x_i, k_i; x_m, k_f\right) \times \exp\left[i\left(k_i x_i - k_f x_f\right) - i\left(k_i x_l - k_f x_m\right)\right] \tag{30}$$

Esta somatória pode ser dividida nos três termos a seguir:

$$I(\theta) = \sum_{x_i, x_f} E(x_i, k_i; x_f, k_f)\, E^*(x_l, k_i; x_f, k_f) \tag{31}$$

$$+ \sum_{x_i, x_f} E(x_i, k_i; x_f, k_f)\, E^*(x_l, k_i; x_m, k_f) \times \exp\left[i(k_i + k_f) - i(x_i - x_f)\right] \tag{32}$$

$$+ \sum_{i \neq l \neq m \neq f} E(x_i, k_i; x_f, k_f)\, E^*(x_l, k_i; x_m, k_f) \exp\left[i(k_i x_i - k_f x_f) - i(k_i x_l - k_f x_m)\right] \tag{33}$$

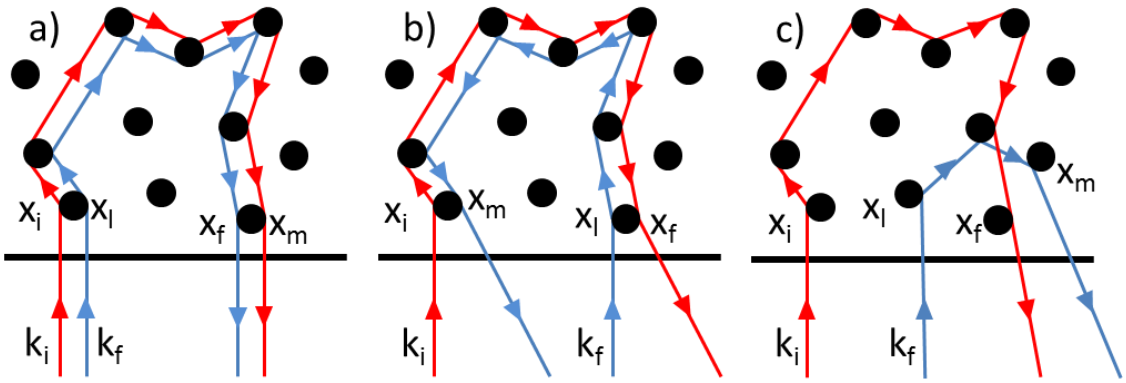

FIGURA 3: Espalhamento da luz através de uma série de espalhadores- (a) $x_i = x_l$; $x_f = x_m$ (b) $x_i = x_m$; $x_f = x_l$;(c) outras configurações.[50]

As variáveis da equação 30 estão descritas a seguir: $E(x_i, k_i; x_f, k_f)$ é a amplitude complexa do campo em (x_f, k_f) e sua fonte no ponto (x_i, k_i); e k_i e k_f são os vetores da onda incidente e espalhada, respectivamente. A intensidade espalhada $I(\theta)$ do meio é obtida pelo produto de E e E^*, e ponderada por fatores externos da fase incidente e espalhada nas condições iniciais e finais do espalhamento. Para o retroespalhamento coerente é considerada apenas a parcela EE^*, onde $x_i = x_l$ e $x_j = x_m$. Entretanto, ângulos menores de θ correspondem a caminhos maiores de x_i a x_j, o que indica que perto da direção de retroespalhamento há mais contribuições de caminhos mais longos percorridos dentro da amostra.

Os termos nas equações (31), (32) e (33) estão representados na FIG. 3. O primeiro termo da equação 31 na FIG.3a não apresenta nenhuma dependência angular. Corresponde aos espalhamentos múltiplos incoerentes sofridos pelos feixes. O segundo termo da equação 32 na FIG. 3b corresponde aos espalhamentos múltiplos coerentes na direção retroativa e é responsável pelo efeito de localização fraca dos fótons. Esse termo corresponde à interferência entre uma onda que viaja em um percurso, determinado por uma sequência qualquer de espalhamento, e uma onda que percorre o caminho inverso sobre a mesma sequência de espalhadores. A intensidade dos feixes correspondentes ao segundo termo de fase $\left(k_i x_i - k_f x_f\right) - \left(k_i x_l - k_f x_m\right)$. O terceiro termo na equação 33 na FIG. 3c descreve o espalhamento completamente aleatório. Ele é responsável por uma grande flutuação espacial na intensidade espalhada por sólidos desordenados. Para um meio desordenado cujas partículas espalhadoras estão suspensas em líquidos e movem-se aleatoriamente, uma média na intensidade da luz espalhada, sobre um tempo grande em relação ao tempo de coerência da luz espalhada, causa o desaparecimento dessas flutuações.

A diferença de fase total $\Delta\theta$ entre duas ondas parciais correspondentes é,

$$\Delta\theta = (k_i x_i) - \left(k_f x_f\right) = \left(k_i + k_f\right)\left(x_i - x_f\right) = \frac{4\pi}{\lambda}\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|x_1 - x_n| \qquad (34)$$

onde r_i e r_f são as posições iniciais e finais dos centros espalhadores, e θ é o ângulo entre k_i e k_f. Com o aumento de θ, a interferência para caminhos individuais da luz oscila com períodos de $|x_1 - x_n|$. E por sua vez, com o aumento do período $|x_1 - x_n|$, a oscilação periódica se torna cada vez menor. Como o campo total espalhado é a soma de todas as ondas parciais com seus pares contrapropagantes com x_i e x_n, então na direção de retroespalhamento ($\theta = 0$), todos os pares interferem construtivamente e, para θ mais largos, a interferência é integrada pela diferença dos pares e a somatória é incoerente. Então, com um determinado ângulo sólido ao redor da direção exata de retroespalhamento, haverá um incremento na intensidade do cone. Desde que a média dos valores de $|x_1 - x_n|$ seja $\sqrt{D\tau}$, onde τ é o período que o fóton permanece dentro do material e $D = l_t v/3$ é o coeficiente de difusão. Para a menor sequência possível (n = 2), a distância média entre dois eventos de espalhamento será o livre caminho médio de espalhamento l_s. Assim, é esperado que a largura do cone de retroespalhamento seja proporcional a $\lambda/\sqrt{l_t l_s}$. Para o caso de l_t e l_s serem

proporcionais, é esperado que a largura do cone de retroespalhamento seja proporcional a razão entre o comprimento de onda e o livre caminho médio λ/l [51].

3.2.2 Localização forte da luz - localização Anderson

Localização forte da luz é um efeito que ocorre quando a interferência destrutiva entre as ondas espalhadas, em um meio altamente espalhador, inibe a propagação das ondas ao longo de escalas mais largas que o comprimento de localização, que é caracterizado pelo decaimento exponencial da energia transmitida [52]. Isto leva o coeficiente de difusão a ser igual a zero, $D \rightarrow 0$ [48], [53]–[55]. Este fenômeno é chamado de Localização Anderson, e sua descoberta ocorreu em 1958 por P. W. Anderson [48]. O modelo estudado por Anderson envolvia um elétron em uma estrutura com disseminação aleatória das energias de sítios causados por uma fonte de desordem. O elétron tem permissão de pular entre sítios vizinhos através de termos de acoplamento dos potenciais vizinhos mais próximos. Anderson mostrou que a função de onda dos elétrons se localiza a apenas alguns sítios em todos os momentos, desde que a quantidade de aleatoriedade seja suficientemente grande.

Sistemas ópticos tem atuado com um papel distinto e fundamental no entendimento e observação experimental da localização Anderson. Fenômenos ópticos podem ser facilmente visualizados, além de diversas ferramentas e técnicas que podem ser empregadas para o estudo da localização. Foi demonstrado que ondas coerentes em uma dimensão e duas dimensões em sistemas desordenados não conectados estão sempre localizadas [56]. Para sistemas conectados, se a amostra for consideravelmente mais longo que o raio de localização, os efeitos de contorno são mínimos e podem ser ignorados [57]. Já para ondas coerentes em três dimensões, o poder de espalhamento precisa ser maior que um valor de limiar para a localização ocorrer [58]. O poder de espalhamento é caracterizado pelo comprimento de transporte de espalhamento l^*, e pela condição de Ioffe-Regel [59] que determinam que para observar localização Anderson, a desordem precisa ser forte o bastante de forma que o comprimento do transporte de espalhamento da onda seja da ordem do comprimento de onda.

Experimentalmente, a busca pela localização Anderson já foi reportada através do controle da escala entre as inomogeneidades e o comprimento de onda, e aumentando o contraste do índice de refração [53], [60]–[63].

3.2.3 Conceitos básicos sobre laser

Em um átomo, o estado de energia corresponde ao nível de energia de um elétron com respeito ao núcleo, normalmente o nível fundamental. A absorção e emissão da luz causada pela transição de elétrons entre um estado de energia e outro, e a frequência relacionada a diferença entre os níveis de energia mais elevados e menos elevados é dada pela equação de Planck[64],

$$hf = E_2 - E_1 \tag{35}$$

onde $h = 6.626 \times 10^{-34} Js$. O fóton é descrito como um pacote discreto de energia emitido ou absorvido por um sistema onde ocorre interação entre a luz e a matéria. A FIG. 4 apresenta um sistema com dois níveis de energia. Um elétron no estado de menor energia pode ser excitado para um nível de maior energia através da absorção de um fóton incidente. Um elétron, inicialmente em um estado de energia mais elevado pode retornar ao nível fundamental e emitir um fóton. Este processo é chamado de emissão espontânea e é caracterizado por apresentar fótons com fases e frequências aleatórias. No entanto, a transição de um nível mais energético para um nível de menos energia pode ser induzida por um fóton. Esta emissão é denominada emissão estimulada. Os fótons emitidos de forma estimulada dividem a mesma fase, frequência e polarização do fóton incidente.

A emissão estimulada constitui a condição básica para a ação laser.

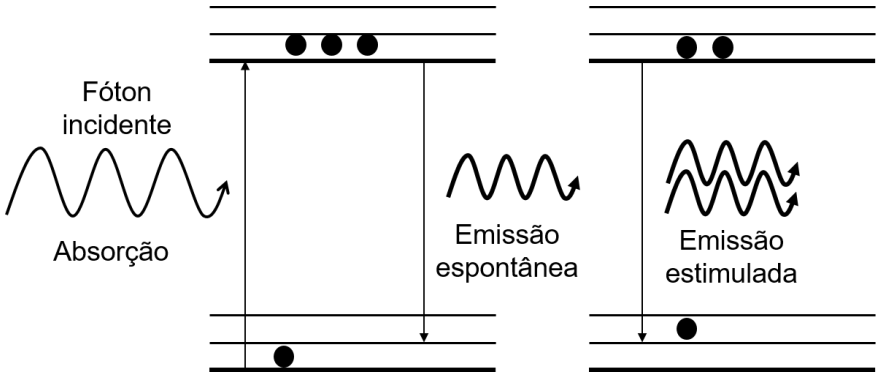

FIGURA 4 - Diagrama representando a transição entre níveis de energia, destacando os processos de absorção, emissão espontânea e emissão estimulada.

Para gerar luz com coerência óptica e uma contribuição significativamente maior da energia estimulada em relação a emissão espontânea, a população no nível mais energético precisa ser maior do que no nível fundamental, o que se chama de inversão de população.

Considerando N_1 e N_2 como sendo a população de elétrons nos estados de energia fundamental e excitado, respectivamente, no equilíbrio termodinâmico, a distribuição da população é descrita pela Lei de Boltzmann:

$$\frac{N_2}{N_1} = e^{-(E_2-E_1)/kT} \tag{36}$$

onde k é a constante de Boltzmann e T é a temperatura.

Neste caso, N_2 é sempre menor que N_1 e não ocorre amplificação da luz. O laser é necessariamente um sistema fora deste equilíbrio, que pode ser alcançado com adição de energia externa por um processo chamado bombeio a fim de manter um número de átomos suficiente no nível excitado.

Basicamente o laser é constituído de três componentes essenciais: o meio amplificador, um mecanismo de realimentação, uma fonte de excitação, ou bombeio, a fim de manter um número suficiente de átomos no nível excitado. Em lasers convencionais, o mecanismo de realimentação ocorre por uma cavidade ressonante, o meio de ganho pode ser constituído de diversos materiais, tais como sólidos, líquidos, gases ou semicondutores, e a fonte de excitação pode ocorrer uma fonte de eletricidade, reações químicas ou uma fonte de luz.

A cavidade mais simples conhecida é um ressonador Fabry-Perot. Nesta cavidade, os modos longitudinais são ondas estacionárias que sofrem uma diferença de fase com múltiplos inteiros de 2π em uma volta na cavidade. A luz sofrendo uma realimentação ressonante, sendo refletida de volta para a cavidade a cada volta completa, sendo que um dos espelhos da cavidade é parcialmente refletor para permitir a emissão de parte da radiação para fora da cavidade. A refletividade parcial gera um fator de perdas no modo da cavidade.

Quando as perdas por duplo passo se igualam ao ganho gerado em cada passagem na cavidade, a condição para a oscilação laser com o bombeio é estabelecida, ao que chamamos de limiar laser. Assumindo que a intensidade é aumentada por um fator de $exp(k_g l)$ por passagem, k_g o coeficiente de ganho por unidade de comprimento, l o tamanho do meio ativo em relação ao eixo óptico, temos:

$$R_1 R_2 exp\big(k_g - \alpha_p\big)2l = 1 \tag{37}$$

com R_1 e R_2 sendo as refletividades dos espelhos, e α_p um parâmetro que representa todas as perdas por espalhamento devido a presença de rugosidade nas faces do meio ativo e impurezas contidas nele, o que leva a perdas por dispersão angular [64].

A equação (37) pode ser escrita como:

$$k_g 2l = \alpha_p\, 2l - ln(R_1 R_2) \tag{38}$$

Desta forma, podemos observar que a condição para o limiar laser seja que o ganho (k_g) se equipare às perdas (α_p, R_1 e R_2). Por esta análise nota-se que, em lasers convencionais, a presença de impurezas leva ao aumento das perdas no ressonador, o que consequentemente gera um aumento do limiar laser, diminuindo a eficiência do sistema [65].

3.2.4 LASER RANDÔMICO

Um laser aleatório consiste da distribuição aleatória de um aglomerado de partículas espalhadoras combinadas com um meio opticamente ativo [3], como pode ser observado na FIG. 5 abaixo,

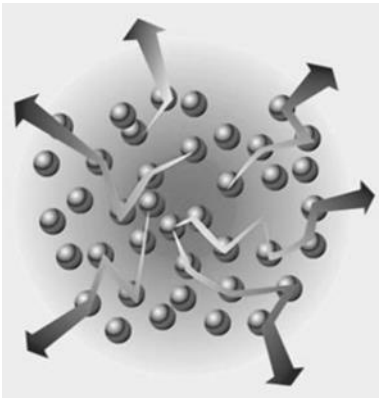

FIGURA 5 - Diagrama representando um laser aleatório[3]

Durante muito tempo, o espalhamento óptico foi considerado um problema para a ação laser e aplicações devido as perdas por espalhamento em cavidades ressonantes convencionais. Entretanto, com desordem em um meio de ganho, o espalhamento pode atuar como um ponto positivo tanto para a amplificação quanto à oscilação laser.

O múltiplo espalhamento aumenta o caminho e o tempo da luz dentro do meio ativo, aumentado assim a amplificação laser. Adicionalmente, a luz recorrente pode fornecer realimentação coerente para a oscilação laser. O percurso percorrido é equivalente a

percursos fechados que não permitem que os fótons retornem aos seus estados originais. Os conjuntos de espalhadores podem ser interpretados como uma cavidade ressonante onde o campo eletromagnético no seu interior possui ressonância espacial.

Desde o trabalho pioneiro de Letokhov et al. [2] a ação laser em meios desordenados vem sendo objeto de intenso estudo teórico e experimental. O processo de amplificação da luz por meio da emissão estimulada, assim como em um laser convencional, compete com as perdas. Enquanto o ganho, em lasers randômicos, depende da energia de excitação e do poder de espalhamento do meio, as perdas são relacionadas a absorção e os fótons que escapam do meio.

Com relação aos processos de realimentação, os lasers aleatórios podem ser classificados em dois tipos: (i) laser com realimentação coerente e ressonante, e (ii) com realimentação incoerente. Estes processos serão tratados nas seções seguintes. [3]

3.2.5 Tipos de laser aleatório – incoerente

O Laser randômico com realimentação não ressonante ou com realimentação incoerente ocorre no regime difusivo [9], [66]–[68]. Assim que a luz incide em um meio desordenado, ela é rapidamente espalhada e percorre caminhos aleatórios antes de sair do meio [10]. Na presença de ganho, o fóton pode induzir a emissão estimulada de um segundo fóton. Quando o comprimento de ganho se aproxima à média dos comprimentos dos caminhos percorridos no meio, a probabilidade de um fóton gerar um segundo fóton antes de sair do meio aumenta, levando a um aumento na densidade de fótons. Entretanto, a fase dos fótons é negligenciada, pois neste comportamento difusivo, onde $l_t \gg \lambda$, a probabilidade de a luz voltar a sua posição original é muito baixa. Este comportamento é chamado de realimentação incoerente devido à sua emissão ser bastante similar à emissão amplificada estimulada, apresentando espectro de emissão de muitos nanômetros que estreita rapidamente para poucos nanômetros com o aumento da energia de excitação, e apresenta uma relação de excitação-emissão similar a um laser convencional, com um limiar a partir de uma certa energia de bombeio.

O estudo da emissão laser em meios difusos foi proposto para desenvolver lasers em que a frequência emitida e estabilidade não fossem fortemente dependentes das características da cavidade ressonante, como uma alternativa para aplicações que necessitam de alta uniformidade espacial de iluminação e alta estabilidade. O primeiro trabalho apresentado neste tema foi em 1966 por Ambartsumyan *et al*. que testou uma cavidade laser em que um espelho da cavidade Fabry-Perot foi reposta por uma superfície espalhadora, resultando em múltiplos espalhamento da luz na cavidade [2].

Em 1968, Letokhov [69] propôs teoricamente a auto-geração de luz em meios de ganho espalhadores em regime difusivo (i.e. $\lambda \ll l_t \ll L$). Resolvendo a equação de difusão para a densidade de energia de fótons na presença uniforme e linear de ganho, ele mostrou que assim que o volume de espalhamento no meio excede um volume crítico $V = l_t l_g/3$, a densidade de energia do fóton cresce exponencialmente com o tempo. Isto porque o processo de geração de fótons é análogo à multiplicação de nêutrons em uma bomba atômica [70], este dispositivo é chamado algumas vezes de "bomba fotônica". No caso do laser, a intensidade da luz não diverge porque o ganho se esgota rapidamente e l_g aumenta. Este trabalho só foi demonstrado experimentalmente em 1986 com Markushev et al. que mostrou

que pó de $Na_5La_{1-x}Nd_x(MoO_4)_4$ sob bombeio ressoante com laser de pulsos curtos (30 ns) a baixa temperatura (77K), poderia produzir emissão laser [71].

Em lasers de pó, é difícil determinar se a realimentação é dada por múltiplos espalhamentos ou reflexão interna, porque o meio de ganho e os elementos espalhadores não estão separados no pó. Em 1994, Lawandy et al. [9] demonstrou uma emissão laser isotrópica de uma solução de laser de corante bombeado opticamente, no qual continha suspensões de microesferas de rutila (TiO_2). Um colapso da emissão da largura de linha de emissão foi observado após um determinado limiar de bombeio e foi interpretado como começo da ação laser, quando o ganho excede a intensidade de perdas no sistema devido a múltiplos espalhamentos com o aumento do caminho percorrido pelos fótons.

O estreitamento da largura de linha é um fenômeno conhecido mesmo em meios amplificadores homogêneos devido à amplificação de emissão estimulada (ASE). Mas o aspecto em destaque neste experimento foi que o limiar de bombeio em que emissão estreita drasticamente foi quase duas ordens de grandeza menor comparado ao caso da emissão estimulada em laser de corante sem espalhadores. Além disso, a intensidade do pico de emissão aumentou mais de três ordens de magnitude com a adição de espalhadores [72]–[74]. Diferente do meio ativo pulverizado, os espalhadores no laser de corante separam o meio amplificador e os espalhadores, permitindo desta forma que as características do espalhamento sejam modificadas, independente do meio ativo, pela densidade de espalhadores e concentração de corante. Isto facilita um estudo sistemático do efeito do espalhamento na realimentação.

Mais recentemente, uma nova interpretação para a realimentação incoerente foi apresentada. Leonetti et al e Consoli et al demonstraram que a realimentação incoerente com a emissão com largura de poucos de nanômetros é resultado de um alto número de modos emitidos simultaneamente, mutuamente acoplados em uma emissão sincronizada, muito similar ao efeito de travamento de modos [12], [75].

3.2.6 Tipos de laser aleatório – coerente

Quando o livre caminho médio de transporte é comparável ao da luz ($l_t \sim \lambda$), e o meio espalhador apresenta alto ganho óptico, a luz pode retornar para um espalhador de onde começou a ser espalhado e então fechar um caminho com ciclo fechado. Assim que a amplificação ao longo deste caminho excede as perdas, a oscilação laser pode ocorrer neste

caminho que atuará como um ressonador laser. O requisito de que a diferença de fase ao longo do ressonador seja múltipla de 2π determinará as frequências oscilantes. Este fenômeno é chamado laser aleatório com realimentação coerente [8], [76], [77].

No meio espalhador, a luz pode voltar ao ponto inicial por muitos caminhos diferentes. Todas as ondas retroespalhadas interferem e determinam as frequências laser, o que indica que este laser com realimentação coerente é um laser com realimentação distribuída aleatoriamente. Sua emissão é caracterizada pelo surgimento de picos discretos e estreitos (com largura de linha menores que 1 nm) que surgem acima de um determinado limiar de bombeio e com um aumento drástico da intensidade.

A primeira demonstração deste fenômeno foi apresentada por Cao et. al. [77] em agregados de meio ativo em pó, utilizando tanto nano-bastões de ZnO quanto nanopartículas de ZnO/GaN, e mais tarde com uma suspensão de particulados de ZnO em uma solução de Rodamina 640 dissolvido em metanol [78]. Em ambos os casos, sob baixa intensidade de bombeio foi obtido um espectro com um único pico largo, e apenas com o aumento da intensidade houve o surgimento de diversos picos estreitos. A medida em que a intensidade de excitação aumentava, o número de picos também aumentou. A vantagem apresentada nestes experimentos foi que no primeiro caso que os espalhadores atuavam tanto como espalhadores quanto amplificadores. No segundo caso, com a solução, houve uma separação dos espalhadores do meio de ganho, o que permitiu que houvesse maior liberdade para variar de forma independente a intensidade de espalhamento pela escolha de diferentes espalhadores, ou variar o ganho óptico, mudando a concentração ou tipo de corante.

De forma geral, o espectro de um laser randômico está associado unicamente à distribuição dos espalhadores, que afeta a distribuição dos elementos espalhadores e consequentemente, os picos emitidos [79], [80]. Assim, é possível controlar as características da emissão pelo controle da distribuição de espalhadores, como já citado, ou ainda otimizando o perfil do bombeio transverso a fim de se obter diferentes frequências [81] ou direcionalidade [82].

4 LASER ALEATÓRIO COM REALIMENTAÇÃO LOCALIZADA

Como citado na seção 3.2.1, as primeiras observações de uma emissão coerente em meios espalhadores foram demonstradas em um dispositivo formado por partículas de rutila dispersas em um meio de ganho, apresentando um estreitamento de emissão para um pico de poucos nanômetros, e em ZnO particulado, que atua tanto como espalhador quanto como meio de ganho. Estes foram os experimentos marcos que impulsionaram a pesquisa com lasers randômicos, a partir dos quais estas emissões foram observadas em uma grande variedade de materiais, baseando-se sempre nos elementos básicos: um meio de ganho e partículas espalhadoras presentes no meio. Entretanto, os espalhadores nesta configuração trazem duas consequências: são responsáveis pelo confinamento da luz e realimentação óptica, e ao mesmo tempo deterioram a amplificação da luz, eventualmente inibindo a ação laser devido a perdas por espalhamento. Assim, podemos concluir que a ação laser depende de um balanço entre o livre caminho médio e o comprimento de ganho. A proposta nesse trabalho é apresentar uma estrutura que separe estes dois elementos, ganho e espalhamento, mantendo a realimentação espacial e espectral, para frequências aleatórias devido à distribuição dos espalhadores. Esta configuração leva a lasers aleatórios com maior eficiência e permite geometrias mais flexíveis.

A oscilação laser neste caso depende da luz retroespalhada de uma das superfícies espalhadoras de volta para o meio ativo, e em seguida, novamente retroespalhada pela segunda superfície espalhadora de volta para o meio, sendo amplificada a cada passagem pelo meio ativo.

Como visto na seção 3.2.1, a intensidade da luz retroespalhada por uma superfície é máxima para $\theta = 0$, onde θ é o ângulo entre a luz incidente e espalhada, e diminui com o aumento do ângulo. É a partir do cone de retroespalhamento, que é resultado da distribuição de intensidade, que podemos concluir que uma estrutura tridimensional obedece a este comportamento. Entretanto, se considerarmos que a largura do bombeio não é infinitamente estreita, a luz retroespalhada da região de um dos dois aglomerados de TiO_2 irá propagar e será amplificado ao longo de direções com ângulos de retroespalhamento diferentes de zero

(ver FIG. 3). Ao longo destes caminhos, a contribuição da fase assume um valor aleatório devido a refletância difusa do aglomerado.

Este conceito está ilustrado na FIG. 6, para o caso de uma única frequência. Esquematicamente, o caminho de espalhamento relativo a cada aglomerado de TiO_2 (áreas cinzentas) adiciona uma contribuição de fase arbitrária à luz retroespalhada. Em seguida ela viaja de volta para a outra extremidade laser, onde uma outra contribuição de fase arbitrária é adicionada antes que a luz seja retroespalhada novamente em direção à região ativa (área laranja).

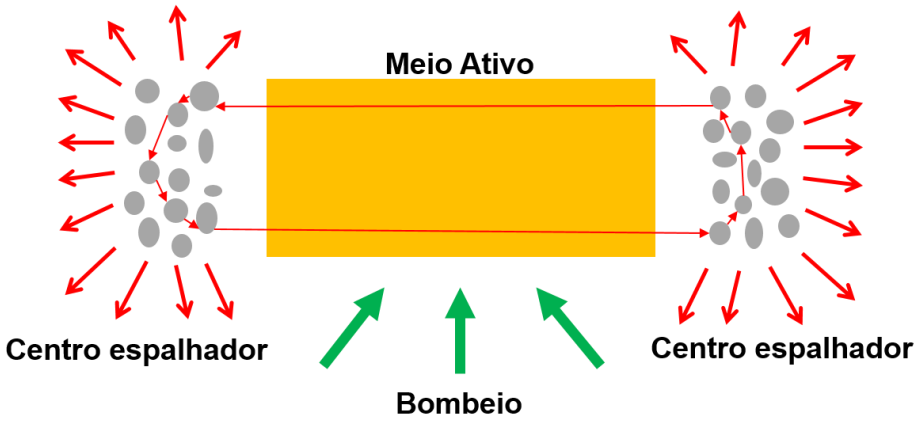

FIGURA 6 - Diagrama esquemático de um laser aleatório com realimentação localizada[75]

Se a esta frequência determinada acrescenta um número inteiro de períodos de comprimento de onda em uma volta, dada a contribuição de fase arbitrária de cada refletor difuso, esta frequência será permitida na cavidade e será amplificada, satisfazendo à condição de fase para oscilação.

A amplitude da onda retroespalhada para uma frequência específica pode ser determinada através das perdas por espalhamento sofrida pelo fóton ao longo do caminho percorrido. Ou seja, as perdas por múltiplos espalhamentos nos aglomerados afetam a amplitude de cada frequência de forma independente.

As considerações anteriores podem ser demonstradas de forma simples. Podemos considerar que tanto a resposta de amplitude quanto de fase dos retroespalhadores sejam dependentes da frequência e tenham perfis espectrais arbitrários. A resposta espectral complexa de cada retroespalhador pode ser expressa como $R_{1,2}exp\left[i\phi_{1,2}(\nu)\right]$, onde $R_{1,2}$ são os componentes de amplitude, $\phi_{1,2}(\nu)$ representa os componentes de fase, ν é a variável de frequência e i é a unidade imaginária.

Introduzindo-se $R_{1,2}exp\left[i\phi_{1,2}(\nu)\right]$ para a condição de uma volta na cavidade ressonadora conhecido de lasers convencionais [64] obtem-se a expressão abaixo:

$$R_1R_2e^{2L(g-\alpha)}e^{i\left(k2L+\phi_1(\nu)+\phi_2(\nu)\right)}=1 \tag{39}$$

onde L é o comprimento médio ativo, g é o ganho linear, α é a absorção e k representa o vetor de onda.

Desta forma é possível descrever a complexidade espacial no domínio de frequência. Os comprimentos dos caminhos percorridos dentro dos espalhadores são modelados com as respostas dependentes de frequência arbitrária, onde as perdas são tomadas pela amplitude e a contribuição coerente pela fase. Um argumento similar nos permite negligenciar a variação espacial de L, dado por $L+\Delta L$, em que ΔL representa uma distribuição aleatória de distâncias da ordem de dezenas de micrometros, devido à rugosidade das aglomerações de TiO_2 ou espalhadores. Na verdade, as contribuições de ganhos e perdas no meio ativo são pouco afetados pela ΔL, uma vez que $\Delta L \ll L$ e o atraso de fase introduzido apenas adiciona uma fase aleatória que pode ser considerado como já incluído no termo $\phi_1(\nu)+\phi_2(\nu)$.

A equação 39 pode ser separada em condições de amplitude e fase dadas pelas equações abaixo

$$g_{TH}(\nu)=\alpha+\frac{1}{2L}\ln\left(\frac{1}{R_1(\nu)R_2(\nu)}\right) \tag{40}$$

$$\nu\frac{n}{c}2L+\frac{\phi_1(\nu)+\phi_2(\nu)}{2\pi}=m \tag{41}$$

onde $g_{TH}(\nu)$ é o ganho limiar dependente da frequência, m é um número inteiro e a relação do número de onda $k=2\pi\nu n/c$ foi usada com n sendo o índice de refração e c a velocidade da luz no vácuo.

A equação de amplitude (eq. 40) indica que ao atingir o limiar, o ganho deve ser igual à soma de um termo fixo de perdas internas e um termo dependente da frequência determinado pela contribuição conjunta dos componentes de amplitude refletiva dos refletores difusivos. Em um laser convencional, as perdas de espelho são constantes com a frequência e, consequentemente, são as mesmas para todos os comprimentos de onda.

A equação de fase (Eq. 39) seria responsável por reduzir à solução clássica de Fabry-Perot com período de $c/(2nL)$ entre os espelhos, mas com o termo constante de fase $\big(\phi_1(\nu) + \phi_2(\nu)\big)/2\pi$ que representa um espelho especular. Considerando o sistema proposto, a satisfação da Eq. 41 representa um evento em que, dada uma determinada frequência ν e a contribuição de fase, um número inteiro de períodos de comprimento de onda encaixa-se em uma volta completa na cavidade.

4.1 MATERIAIS E MÉTODOS

4.1.1 DNA como material fotônico

O material escolhido como meio ativo neste trabalho foi um filme fino polimérico formado por ácido desoxirribonucleico (DNA) de origem marinha, e dopado com um corante orgânico. O uso de polímeros orgânicos vem sendo uma escolha muito atraente em aplicações com fotônica não somente por causa de sua grande variedade, mas também aos seus processos de fabricação mais fáceis comparados a materiais inorgânicos [16], [83]. E dentre os polímeros orgânicos, o DNA é um dos materiais mais recentes. Este foi descoberto por volta dos anos 50 por Watson, Crick e Wilkinson [84] e desde então, tem atraído muita atenção com aplicações que abrangem eletrônica, óptica, bioquímica, proteção ambiental, nanociência e nanotecnologia [85], [86].

A estrutura de quatro bases de ácido desoxirribonucleico é ilustrada na FIG. 7. O DNA consiste em duas espirais entrelaçadas de açúcar e moléculas de fosfato ligados por uma base formada por pares de hidrogênio ligados com uma estrutura em que camadas de quatro bases de ácidos nucleicos, nomeadamente a adenina, timina, guanina e citosina, são empilhadas. A estrutura açúcar-fosfato é carregada negativamente, onde há uma carga negativa para cada grupo fosfato e duas negativas por pares de base. Para aplicações em óptica não-linear e de fotônica, é necessário que haja um grande número de deslocamento de elétrons.

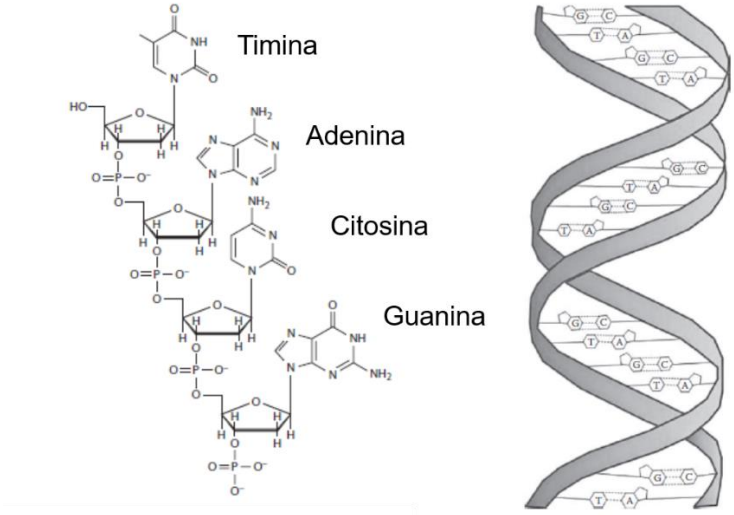

FIGURA 7 - Estrutura molecular do DNA.

O DNA puro é naturalmente solúvel em água, e apresenta alta tensão superficial e baixa taxa de evaporação. Estas características dificultam muito a fabricação de filmes finos por técnicas convencionais como *spin-coating*, além de ser um material muito sensível a hidratação o que poderia deteriorar o desempenho de dispositivos [87]. Uma solução que impulsionou a indústria de biofotônica foi a demonstração de uma série de complexos de DNA-catiônico e surfactantes [88], [89]. O DNA pode ser precipitado com surfactantes catiônicos em água por uma reação de troca iônica [90]. Uma escolha bastante versátil é utilizar o surfactante catiônico cloreto de hexadeciltrimetilamônio (CTMA), fazendo com que o complexo formado seja solúvel em uma grande variedade de álcoois e mais estável mecanicamente e termicamente que o DNA. Desta forma, este complexo foi considerado o carro-chefe dos materiais derivados do DNA para aplicações em eletrônica e fotônica molecular, com aplicações que incluem guias de onda de baixas perdas [91], holografia [92], materiais auto-estruturados [93], laser orgânico [94].

Quando dopado com diferentes corantes luminóforos que são solúveis em orgânicos polares, como etanol, obtêm-se uma variada gama de emissões. As moléculas de corante podem ser inclusas por diferentes mecanismos: (1) ligação covalente, que é a forma de ligação mais forte entre DNA e corante, porém aplicado a poucos corantes (2) ligação do luminóforo em pequenos sulcos da estrutura de DNA, (3) força eletrostática, onde uma molécula polar forma um par positivo-negativo com átomos de oxigênio carregados negativamente na parte externa da estrutura do DNA e (4) intercalação, onde um componente plano da molécula do corante se insere entre os pares de base da estrutura de DNA, como o caso da molécula de DCM que possui uma estrutura na forma de bastão.

A amplificação da luz de corante inseridos intercalados nas moléculas de DNA já foi observada sendo 150 vezes maior em comparação com corantes dissolvidos em polímeros tais como poli (metacrilato de metilo) [86].

4.1.2 Sistemas π-conjugados

Esta seção trata da característica que torna possível o uso do DNA como meio ativo. Compostos orgânicos consistem em sua maioria em carbono e hidrogênio com poucos heteroátomos, tais como oxigênio, nitrogênio e enxofre. Devido ao grande número de configurações das ligações possíveis para os átomos de carbono, já temos milhões de

compostos reportados, formando os mais diferentes compostos. Mas apenas uma pequena parcela destes é apropriada para obter a ação laser.

Os átomos de carbono têm seis elétrons com sua configuração no estado fundamental $1s^2 2s^2 2p^2$, o que significa que o orbital *s* está totalmente ocupado enquanto que dois de três orbitais p estão ocupados por um elétron cada um. Quando um átomo de carbono faz uma ligação com outro átomo ocorre hibridização entre os orbitais *s* e *p*.

Caso o carbono se conecte com quatro ligações simples com outro átomo, ocorre hibridização - sp^3 e os quatro elétrons mais externos são arranjados nas pontas de um tetraedro. Estas ligações são qualificadas como ligações-σ, por apresentar simetria cilíndrica.

Se tomarmos como exemplo uma molécula simples como a molécula de etileno (CH_2=CH_2), representada na FIG. 8a, podemos observar a hibridização - sp^2 dos átomos de carbono. Os três orbitais híbridos sp^2 se dispõem com uma geometria trigonal plana, direcionados para cada ponta do triângulo com ângulo de 120º entre eles. Os orbitais não hibridizados $2p_z$ estão perpendiculares a este plano e se sobrepõem lado a lado para formar ligações fracas π.

Se a molécula apresentar uma alternação entre ligações simples e duplas ao longo do segmento planar, o sistema é denominado π-conjugado. Tais sistemas ocorrem em muitas formas (pequenas moléculas, polímeros conjugados, cristais moleculares). Um dos exemplos mais simples de para entender a física deste sistema pode ser observado na molécula de benzeno, apresentado na FIG. 8b. A sobreposição (*overlap*) dos orbitais π nestas estruturas permite o deslocamento de elétrons por todo o segmento conjugado, o que significa que a fórmula de Lewis para ligações localizadas simples e duplas não pode mais ser aplicada. Os elétrons π passam a não pertencer mais a uma ligação simples ou átomo, mas a um grupo de átomos, fazendo com que seu deslocamento ocorra movendo-se de forma alternada ao longo das cadeias conjugadas, entre as ligações simples e duplas.

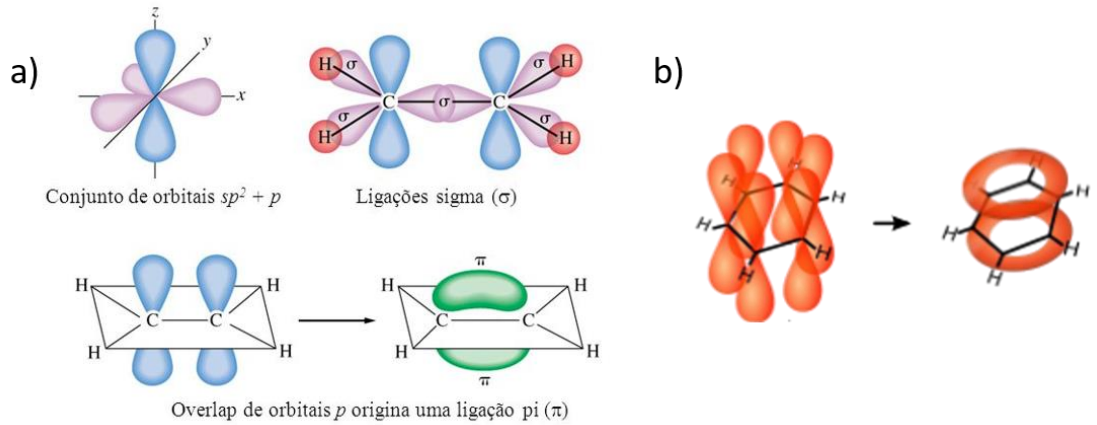

FIGURA 8 - a) Ilustração de orbitais σ e π em uma molécula de etileno; b) ilustração de um sistema π-conjugado em uma molécula de benzeno.

Quando mais e mais orbitais p_z são compartilhados para formar o sistema conjugado, a energia entre orbitais moleculares diminui, fazendo com que os níveis de energia para elétrons livres se aproximem. O parâmetro que governa as propriedades ópticas é esta distância do gap de energia entre o orbital molecular ocupado mais elevado (HOMO) e o orbital molecular menos elevado desocupado (LUMO). A banda de absorção em sistemas conjugados ocorre para comprimento de onda acima de 200nm, o que o torna apropriado para aplicações ópticas em que a excitação é na faixa UV-visível do espectro [95].

4.1.3 Propriedades de absorção, emissão e ação laser dos corantes

O primeiro trabalho que apresentou um composto orgânico com emissão estimulada foi apresentado em 1966 por Sorokin e Lankard [96], e desde então vem sendo extensivamente estudado como meio de ganho. A gama de corantes conhecidos hoje permite a fabricação de lasers com emissões que podem abranger uma faixa de 50 a 100 nm. Os corantes podem ser obtidos tanto na forma sólida, líquida ou vapor, o que permite fácil controle das propriedades de absorção e ganho. Lasers na forma líquida vem sendo mais explorados devido à alta qualidade óptica e auto reparação do meio, além dos diversos solventes que podem ser utilizados.

Entretanto, muitos destes corantes apresentam grande perigo caso entrem em contato com o operador. Pensando nisso, uma alternativa explorada recentemente e aplicada nesta

tese é empregar matrizes poliméricas para os corantes, facilitando a manipulação do material e mantendo alta luminescência.

Os níveis de energia dos corantes são caracterizados por apresentar essencialmente bandas largas ou, em outras palavras, um continuo de níveis vibracionais e rotacionais. A absorção dos níveis mais baixos ocorre entre os níveis fundamental singleto S_0 e o primeiro nível singleto excitado S_1. Os corantes apresentam alta absorção nesta transição, que ocorre normalmente na região do visível. Esta absorção é responsável por dar nome ao corante e sua luminescência característica.

A FIG.9 apresenta um diagrama de bandas de energia de uma molécula de corante orgânico, juntamente com o mecanismo básico de emissão. Primeiramente, os elétrons são excitados para o nível singleto S_1, que decai de volta ao nível fundamental. Podemos observar que há perdas do nível S1 para o nível tripleto mais baixo T_1, por relaxação cruzada (termo RC na FIG. 9), que começa a excitar o próximo nível T_2 ou decai para o nível fundamental por um processo radiativo ou não-radiativo. O decaimento radiativo do nível tripleto T_1 para o nível fundamental S_0 é chamado de fosforescência, mas não pode ser usado para emissão laser devida a forte absorção tripleto-tripleto (Estas bandas de absorção tripleto são largas e difusas). Também, para ocorrer a ação laser, o decaimento de T_1 para S_0 precisaria terminar com o nível singleto excitado. Portanto, as únicas transições possíveis para o nível fundamental são entre os níveis singleto, de S_0 para S_1 e S_i para $(i = 1,2,3, \dots)$.

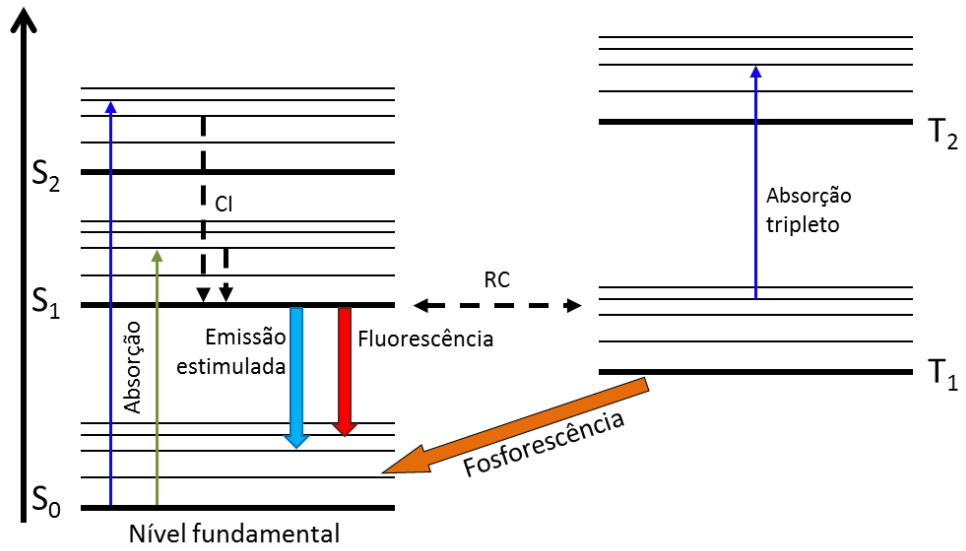

FIGURA 9 - Níveis de energia para um corante orgânico. Os níveis singleto e tripleto são mostrados em colunas separadas.

Uma característica importante dos corantes orgânicos é que eles têm fortes bandas de absorção e fortes emissões fluorescentes que não se sobrepõe na banda de absorção. As razões para o enfraquecimento da emissão de fluorescência se devem à competição da emissão estimulada com processos não radiativos, e a absorção do nível singleto pelo nível tripleto, que inibe a ação laser. Na FIG. 10 temos um espectro típico de emissão e absorção da molécula de corante. A sobreposição apresentada da banda de fluorescência se deve à absorção tripleto-tripleto.

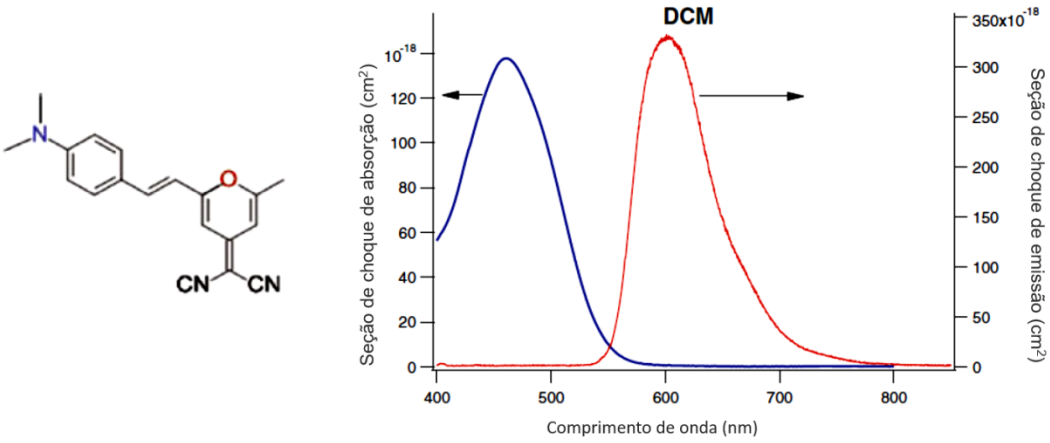

FIGURA 10 - Espectros da seção de choque de absorção e emissão do DCM à direita, e a molécula deste corante à esquerda.

4.2 PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

As amostras foram preparadas no Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid, no .

Para a preparação das amostras foram utilizadas as seguintes substâncias químicas seguindo o método indicado na referência [97]: DNA de salmão na forma de sal de sódio e surfactante catiônico cloreto de cetiltrimetilamônio (CTMA) foram fornecidos pela Sigma-Aldrich e o corante orgânico DCM (4-(Dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran) foi adquirido da Exciton. Estas substâncias não receberam nenhuma purificação adicional antes do uso.

4.2.1 Síntese do complexo DNA-CTMA

DNA-CTMA foi obtido preparando inicialmente duas soluções: uma solução com 1 g de DNA na forma de sal de sódio dissolvido em 200 mL de água por agitação magnética por 5 horas ou mais caso o DNA não esteja totalmente dissolvido; e uma solução aquosa

composta de 150 mL água e 1 g CTMA. A solução contendo DNA foi adicionada à solução contendo CTMA por gotejamento lento e também sob agitação magnética por 24 horas.

O precipitado de DNA-CTMA foi coletado por centrifugação e lavagem. O precipitado foi centrifugado a 9000 rpm por 10 minutos e lavado, e esta etapa foi repetida três vezes para garantir que não houvesse algum vestígio de DNA não dissolvido. Em seguida o material foi levado a um forno à 70°C por 12 horas para secagem.

4.2.2 Preparação do meio ativo - DNA-CTMA:DCM

O complexo de DNA-CTMA dopado com corante foi preparado dissolvendo 0.2 g de DNA-CTMA em 5 mL de etanol. Em seguida, foi preparada uma solução com concentração de 0.5 g/L de DCM dissolvido em uma mistura com partes iguais de etanol (EtOh) e clorofórmio ($ChCl_4$) (1:1 v/v). À solução contendo DNA foi adicionado 1.37 mL de uma solução de DCM e mantido sob agitação magnética por 5 horas.

Para ilustrar o processo de fabricação do complexo, a FIG. 11 apresenta o DNA em cada etapa descrita acima, partindo do DNA puro, o DNA após a decantação com o surfactante, e por fim, a solução final após a dopagem com o corante orgânico.

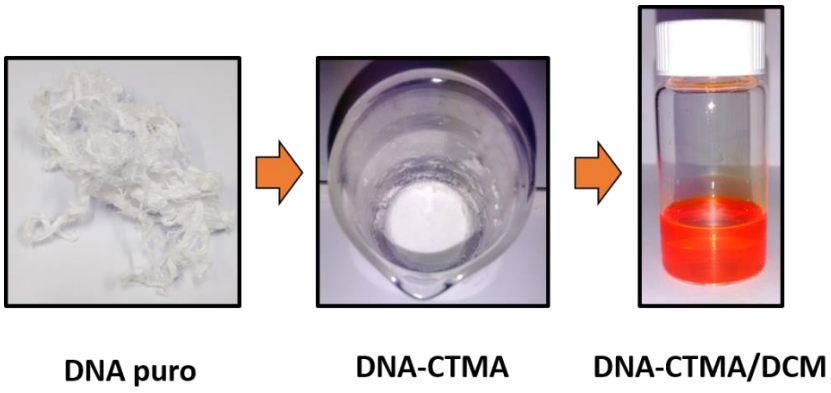

FIGURA 11 - Etapas do processo de fabricação do complexo de DNA.

4.2.3 Fabricação dos dispositivos

Neste trabalho, foram estudados diferentes dispositivos com a geometria proposta no capítulo 4. Para isto, preparamos amostras com três diferentes tipos de centros espalhadores. Inicialmente nosso trabalho começou utilizando nanopartículas de rutila (TiO_2). Em seguida, buscamos uma metodologia mais prática para viabilizar a fabricação das amostras. Para

tanto, observamos que a própria rugosidade nas bordas do meio ativo pode atuar como centro espalhador. Assim, serão apresentadas também amostras com a aplicação de espalhadores com cortes realizados mecanicamente no filme e por ablação a laser.

Antes da deposição dos filmes poliméricos, todas os substratos de vidro passaram por um banho em ácido crômico por 40 minutos a fim de hidrofilizar a superfície.

4.2.4 Centro espalhador: Nanopartículas de rutila (TiO_2)

Inicialmente, as nanopartículas de TiO_2 foram caracterizadas por microscopia eletrônica de varredura (MEV). A imagem do MEV é apresentada na FIG. 12. Podemos observar uma forma irregular e diferentes tamanhos de partícula. Pela imagem do MEV, obtivemos um tamanho médio de partícula de 357 nm.

A amostra foi preparada depositando 20 µl de uma suspensão aquosa de alta concentração de nano-partículas de TiO_2 (Sigma-Aldrich 224227) (4 mg/mL) sobre o substrato de vidro. Após a evaporação da água, regiões da camada espessa depositada foram seletivamente removidas, obtendo-se duas "paredes" paralelas de partículas de TiO_2, como indicado na FIG. 6.

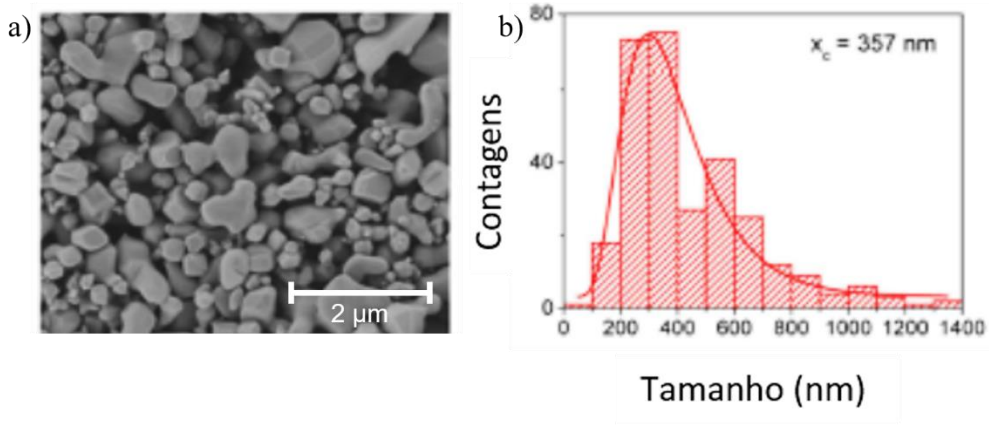

FIGURA 12 - Imagem de MEV do pó de TiO_2 usado na preparação da amostra.

Em seguida, o meio ativo foi depositado na superfície do substrato com uma gota de solução (50 mL) do complexo de DNA-CTMA dopado com DCM e levado a um forno para a evaporação do solvente a 45 ° C durante 5 minutos. O resultado é um filme circular no substrato com cerca de 1.0 cm de diâmetro e da espessura medida de aproximadamente 40 µm, aferido com um relógio comparador. A preparação da amostra é apresentada esquematicamente na FIG. 13, onde temos a esquerda o filme de TiO_2 depositado sobre o

substrato e com uma região removida para a deposição do meio ativo. Ao meio da FIG. 13, temos a amostra preparada com o meio ativo e centros espalhadores, e à direita temos uma vista transversal da amostra.

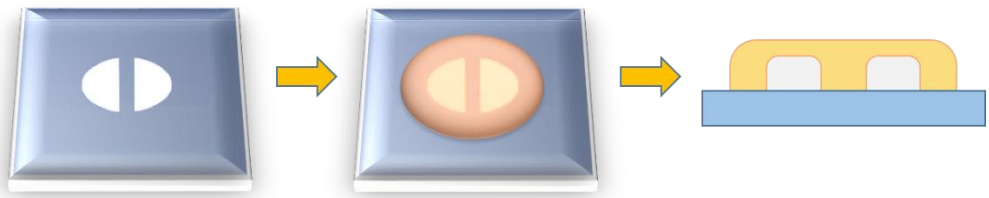

FIGURA 13 - Diagrama esquemático da preparação da amostra com nanopartículas TiO_2 como centro espalhador.

4.2.5 Centro espalhador: Rugosidade do filme obtido com o corte por uma lâmina

Nas amostras sem elementos de dispersão, a etapa de deposição de TiO_2 não é realizada, e a solução do complexo de DNN-CTMA:DCM é diretamente depositada sobre o substrato de vidro. O meio ativo é depositado sobre a superfície do substrato com uma gota de solução 50 mL. A amostra é secada em estufa a 45 ° C durante 5 minutos formando um filme circular no substrato com 1.00 cm de diâmetro e da espessura medida de cerca de 40µm com um relógio-comparador.

Depois de seco, o filme sólido foi cortado duas vezes com cortes paralelos de cerca de 2.0 mm de distância entre si utilizando lâmina, formando um filme retangular depositada sobre o vidro com dimensões de 2.0 x 6.1 mm^2. As extremidades laterais da película foram removidas para não influenciar a ação laser mantendo apenas os espalhadores nas laterais do meio ativo, como mostrado na FIG. 14.

FIGURA 14 - Diagrama esquemático da preparação da amostra com nanopartículas TiO_2 como centro espalhador. O corte foi efetuado ao longo da linha tracejada com um estilete.

A análise de MEV da amostra nos indicou que os tamanhos dos defeitos nas bordas podem variar de 1 µm a 50 µm. Um exemplo da análise de MEV pode ser encontrada na figura 14, abaixo.

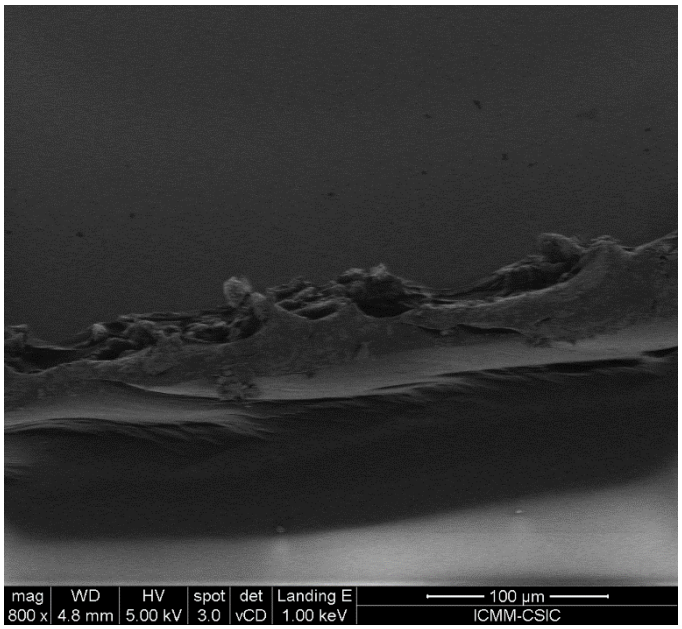

FIGURA 15 - Imagem de MEV da extremidade da amostra com espalhadores gerados por um corte com lâmina no meio ativo.

4.2.6 Centro espalhador: Rugosidade do filme por ablação a laser

A amostra foi fabricada da mesma maneira descrita na seção 4.2.5, acima.

Os defeitos foram realizados na amostra utilizando um laser de nano-segundos focalizado sobre o filme de DNA. O feixe laser foi focalizado na amostra com uma lente de 30 mm ocasionando uma ablação região do foco. O laser utilizado foi um Nd:YAG chaveado, com frequência dobrada em 532 nm (Litron Nano 250), com pulsos de 10 ns, e 10 Hz de taxa de repetição.

A amostra foi transladada ao longo do plano da amostra para criar as estruturas espalhadoras. Para esta amostra a análise de MEV nos indicou que os tamanhos dos defeitos nas bordas podem variar de 1 µm a 50 µm. Um exemplo da análise de MEV para esta pode ser encontrada na figura 16.

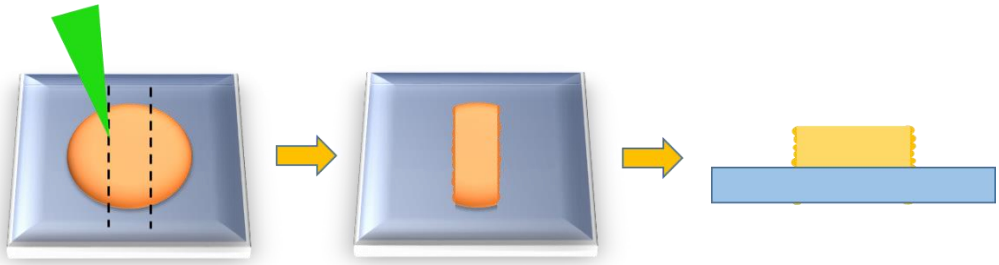

FIGURA 16 - Diagrama esquemático da preparação da amostra por ablação a laser. O corte foi realizado ao longo da linha tracejada.

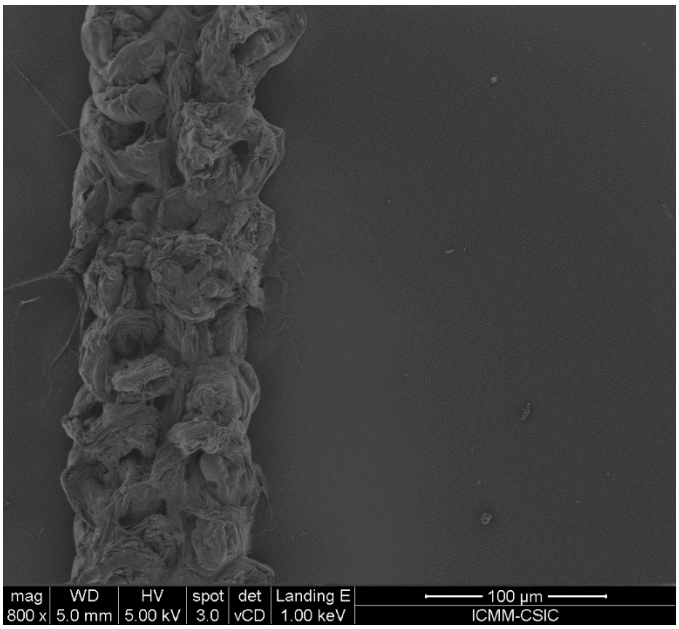

FIGURA 17 - MEV da extremidade da amostra com espalhadores gerados por ablação a laser no meio ativo. A região à esquerda apresenta o filme de ablacionado por um laser, e a direita, o filme sem defeitos.

A figura 17 mostra uma foto da amostra após o final da preparação. Nela foram preparados todos os tipos de espalhadores apresentados acima. A distância entre os centros espalhadores é de cerca de 3 mm. Durante o desenvolvimento deste trabalho foram experimentadas diversas técnicas de deposição para o filme do complexo de DNA. A técnica ideal para a deposição de um filme polimérico uniforme é a técnica de deposição por *spin-coating* [98]. Entretanto, para esta técnica todas as amostras apresentaram espessuras abaixo de 5 µm, e não foi obtida ação laser nestas amostras. A solução encontrada para a deposição de um filme uniforme foi controlar a viscosidade da solução do complexo aumentando a massa molar de DNA, apresentada na composição na seção 5.4.1. As variações da espessura ao longo da amostra foram de aproximadamente 7 µm ± 1 µm.

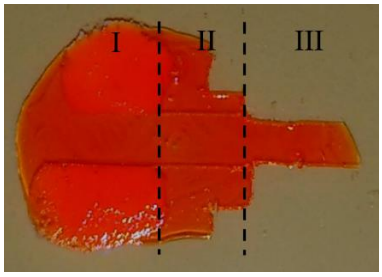

FIGURA 18 - Foto de uma amostra formada com diversos tipos de centros espalhadores: (I) TiO_2 (II) Ablação a laser (III) Corte com lâmina.

4.3 ARRANJO EXPERIMENTAL

O diagrama esquemático do arranjo utilizado está apresentado na FIG. 19. A fonte de bombeio é um Nd:YAG laser Q-switched, com frequência dobrada emitindo 532 nm (Litron NanoT250) emitindo pulsos de 10 ns com taxa de repetição de 10 Hz.

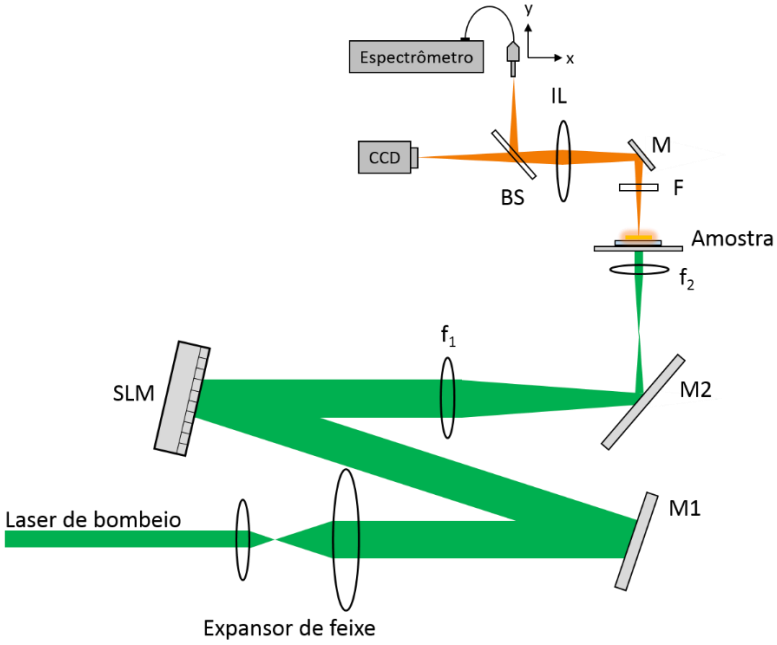

FIGURA 19 - Arranjo experimental usado para ensaios com lasers aleatórios.

O perfil do bombeamento transverso é modulado por um modulador espacial de luz (*spatial light modulator* - SLM, Holoeye LCR-1080) operando em amplitude. A tela de cristal líquido do SLM é controlada por computador e uma máscara é enviada ao dispositivo no formato de matriz (1920 ×1200 elementos) com pixel brancos (reflexivo) e negros (não reflexivo).

Um expansor de feixe (5x) é usado para uniformizar o laser incidente no SLM. A imagem do SLM é reduzida (x0.15) com um par de lentes convexas de comprimento focal de f_1=20 cm e f_2=3 cm. Dois espelhos dicroicos polarizantes (M1 e M2) são utilizados para polarizar linearmente a luz que incide na amostra. A imagem com as dimensões da amostra (1:1) é dividida por um divisor de feixes (BS) e capturada por uma câmera CCD (Pixelink modelo PL-B776F) e por uma fibra (núcleo de 105 µm de diâmetro) acoplada a uma lente (IL, 15cm de comprimento focal). O núcleo da fibra atua como filtro espacial, que coleta uma área circular da amostra com dimensões do núcleo. A luz coletada pela fibra é enviada a um espectrógrafo com comprimento focal de 303 mm (SPEC, Andor, Shamrock 303), e uma CCD de baixo ruído (Andor, iDus Spectroscopy CCD). A luz pode ser coletada de vários pontos da amostra com movimentos horizontais de verticais de dois transladores conectados ao computador.

4.4 RESULTADOS

4.4.1 Caracterização do ganho das amostras

O ganho de um filme dopado pode ser medido com a técnica de faixa de comprimento variável (*variable stripe length* - VLS) [99], [100][101]. Esta técnica consiste basicamente em excitar uma amostra com uma faixa de comprimento variável e medir a intensidade da emissão espontânea na extremidade da faixa como função do comprimento da faixa. O comprimento da faixa pode ser controlado por um feixe projetado por uma lente cilíndrica que incide em uma fenda com abertura móvel, ou projetada por um modulador espacial de luz (*spatial light modulator* - SLM) como apresentado na FIG. 19.

Em um material amplificador não saturado que apresenta comprimento muito maior que sua espessura, a intensidade é governada por [100]:

$$\frac{dI(\lambda,z)}{dz} = g'(\lambda)I(\lambda,z) - \alpha I(\lambda,z) + \eta g'(\lambda), \tag{42}$$

onde g' é o coeficiente de ganho e α é o coeficiente de perdas. O segundo termo à direita da equação representa as perdas distribuídas e o terceiro termo é emissão espontânea, que têm a mesma dependência em frequência que o coeficiente de ganho. O coeficiente η é proporcional à taxa de emissão espontânea e descreve um fator geométrico que depende das dimensões do amplificador. A emissão espontânea é proporcional à intensidade de bombeio através de um termo $A(\lambda)P_0$. Assim, a equação (42) pode ser rescrita substituindo o termo $\eta g'(\lambda)$ por $A(\lambda)P_0$.

Ao integrar a equação (42) com uma intensidade inicial normalizada, temos,

$$I(\lambda) = \frac{\eta g'(\lambda)}{g(\lambda)}\left(e^{g(\lambda)l} - l\right), \tag{43}$$

onde $g(\lambda)$ é o coeficiente de ganho líquido, $g(\lambda) = g'(\lambda) - \alpha$, e l é o comprimento da faixa de bombeio.

A equação (43) representa a intensidade de emissão para uma extremidade da faixa para um regime de baixo sinal. Então, na falta de saturação, g pode ser determinado plotando a curva de intensidade de emissão espontânea amplificada (ASE) emitido em função do

comprimento da faixa de bombeio, e ajustando esta curva à dependência apresentada na equação (43).

Se a intensidade emitida atinge a saturação, a equação (42) não é apropriada. Esta equação implica que a população do estado excitado é sempre a mesma independentemente do ASE emitido. Caso seja interessante analisar uma curva que apresenta saturação, um termo que leva em consideração a depleção da densidade de excitação precisa ser incluído. Desta forma, a equação (42) pode ser rescrita como [44]:

$$\frac{dI(\lambda,z)}{dz} = \frac{g'(\lambda)I(\lambda,z)}{1+sI(\lambda,z)} - \alpha I(\lambda,z) + \eta g'(\lambda), \tag{44}$$

onde s é um parâmetro de saturação ($s = I/I_{Sat} = \sigma\tau/h\nu$, onde σ é a seção de choque de emissão, τ é o tempo de vida de fluorescência e ν é a frequência da emissão espontânea amplificada). Ao integrar esta equação, obtemos o comportamento de $I(\lambda)$ para sinais pequenos e para o ganho no regime de saturação.

A emissão espontânea amplificada (ASE) emitida do filme polimérico foi caracterizada sem a presença de emissão laser na amostra, ou adição de TiO_2, ou retirando o excesso do filme. Uma amostra foi obtida para a caracterização de ASE através da deposição de uma gota de 200 µl do polímero na forma líquida sobre um substrato de vidro, e secagem em forno à 40°C por 5 minutos, formando um filme circular de aproximadamente 1 cm de diâmetro e 32 ± 1 µm de espessura.

Para a medida de ganho, a amostra foi iluminada por baixo, por um laser de bombeio com seção reta em formato retangular com o uso de SLM. Uma extremidade da faixa de bombeamento foi fixada na extremidade do filme polimérico, de forma que o fluxo de emissão estimulada amplificada (ASE) é formada ao longo da direção longitudinal da faixa de bombeio e é espalhada para todas as direções na extremidade do filme, como descrito esquematicamente na FIG. 20a. A fluência do laser de bombeio foi estabelecida em 20 pJ/µm^2 e o comprimento da área de bombeio variou de 0.5 mm a 3.0 mm e o espectro emitido foi medido com um espectrômetro acoplado a fibra posicionado fora do plano da amostra, por cima, e coletando a emissão para cada comprimento. A FIG. 20b apresenta uma foto da amostra sob bombeamento para diversos comprimentos de faixa.

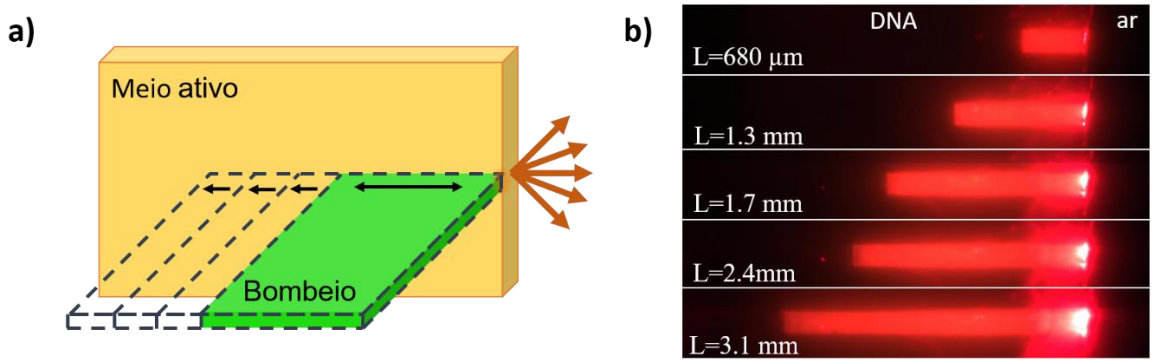

FIGURA 20 - Técnica da faixa de comprimento variável: a) diagrama esquemático do princípio de funcionamento da técnica; b) imagem da amostra utilizada para a caracterização da emissão amplificada estimulada. A imagem apresenta a faixa de bombeio e a luz espalhada.

Na FIG. 21, são apresentados alguns espectros detectados entre L=0.5 mm e L=3.0 mm. Foi observado um espectro amplo de aproximadamente 70 nm (FWHM) para um comprimento da faixa de bombeio L=0.5 mm, centrado em 590 nm. Com o aumento de L, o pico do ganho se move para 618 nm e sua emissão estreita para 33 nm. Isto é atribuído à transição do largo espectro de fluorescência para a estreita emissão ASE, com deslocamento para o vermelho devido ao efeito solvatocrômico do corante DCM em polímero [103].

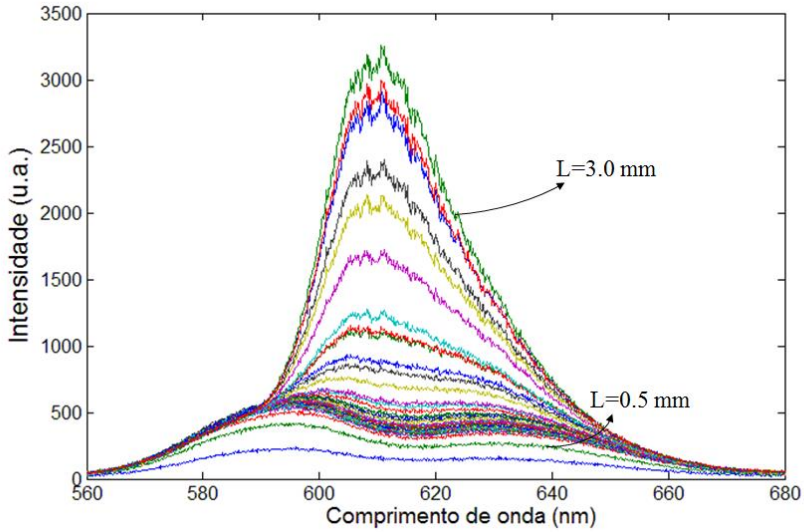

FIGURA 21 - (a) Espectro ASE medido para diferentes comprimentos da faixa de bombeamento, com curvas obtidas entre1,2 mm e 3,0 mm. A figura interna apresenta uma imagem coletada com CCD para uma faixa com 2,8 mm. (b) Intensidade total medida (pontos), obtida pela variação de 0,4 mm a 4,0 mm, e curva ajustada (linha sólida).

Os espectros obtidos foram integrados ao longo da faixa de comprimentos de onda. Em seguida, a intensidade total medida foi plotada em função do comprimento da faixa de bombeio conforme apresentado na FIG. 22. A intensidade aumenta exponencialmente por volta de L=2,3 mm. Os valores medidos foram ajustados de acordo com a eq. (43) [24,25], obtendo-se um coeficiente de ganho de 20,48 cm^{-1}. Ainda podemos observar na FIG. 22 o estreitamento da emissão com o aumento da faixa de bombeio após o limiar da emissão na curva azul com pontos quadrados conectados.

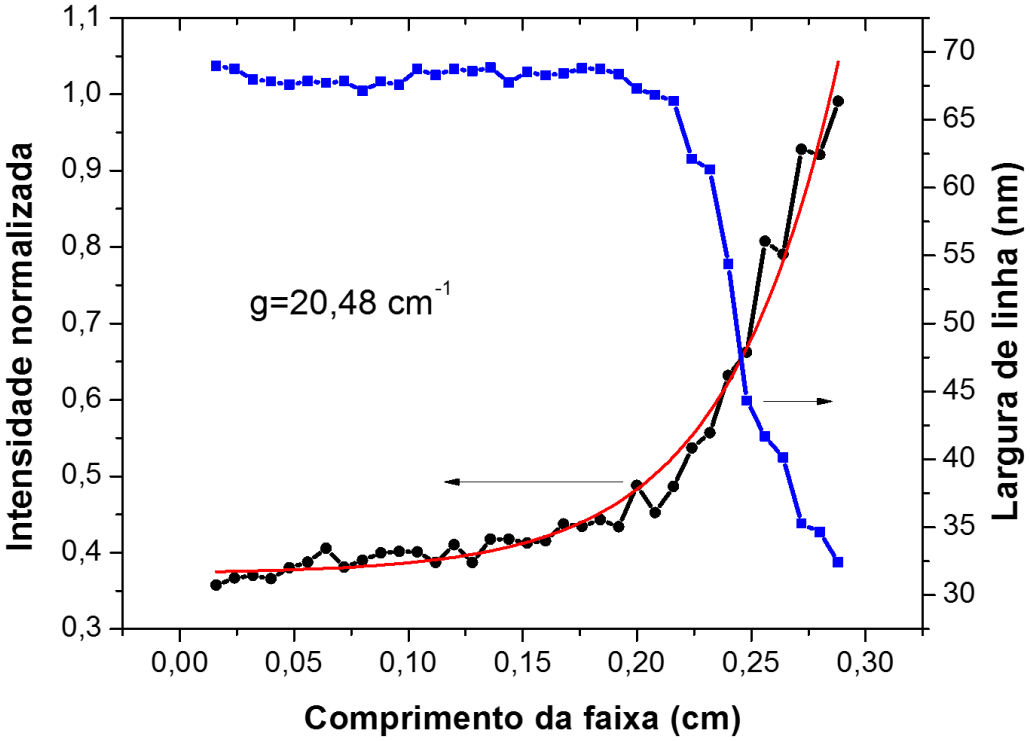

FIGURA 22 – (Curva preta com círculos) Intensidade integrada da luz emitida da extremidade do filme polimérico em função do tamanho da faixa de bombeio;(Curva azul com quadrados) Largura de linha de cada curva medida;(Curva sólida vermelha) Ajuste exponencial

4.4.2 Caracterização do coeficiente de absorção

Em um experimento similar, com o espectrômetro posicionado na mesma posição, a absorção da região não bombeada do meio de ganho foi caracterizada pela medida do coeficiente óptico de perdas. Para estimar as perdas, a faixa de bombeio foi transladada gradualmente da extremidade da amostra, mantendo o comprimento da faixa e o fluxo de energia constantes. Assumindo que a emissão na extremidade da amostra I_0 é constante, a

emissão na extremidade da amostra deve diminuir conforme a faixa de bombeio começa a se afastar, como resultado das perdas seguirem a lei de Beer-Lambert:

$$I = I_0 e^{-\alpha x}, \tag{45}$$

onde x é o comprimento da extremidade emissora da amostra e a faixa de bombeio.

O comprimento da faixa foi fixado em $L = 1.3\,mm$ e a distância, L_{dist}, entre a extremidade da amostra e a faixa de bombeio variou de 0 mm a 0.0765 mm. Todos os espectros foram coletados no mesmo ponto, em seguida foram integrados ao longo da faixa de frequência. Os resultados estão plotados na FIG. 23 com pontos cheios conectados. Foi realizado um ajuste exponencial com a eq. 45 e o valor obtido para $\alpha = 110.1\,cm^{-1}$. O canto superior direito da FIG. 23 apresenta imagens da amostra durante a medida de bombeio para diferentes distâncias de L_{dist}.

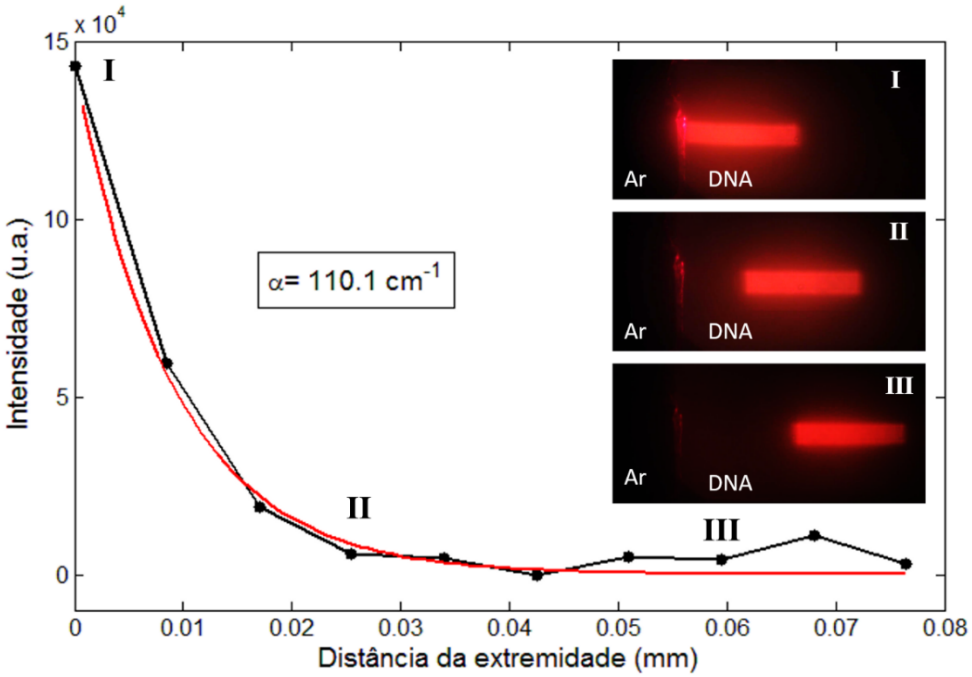

FIGURA 23 - Intensidade integrada da luz emitida da extremidade do filme polimérico em função da distância de bombeio entre o centro de espalhamento e a faixa de bombeio. A distância varia de 0 a 765μm: Resultados experimentais (curva com pontos cheios) e ajuste exponencial (linha vermelha).

4.4.3 Laser aleatório formado por espalhadores acoplados

Os experimentos para obter emissão laser randômica foram realizados em três dispositivos: com a adição de partículas espalhadoras de TiO_2 e com espalhadores formados

por defeitos criados no meio ativo por corte por ablação. O meio ativo das amostras foi iluminado com um feixe de bombeio retangular com largura W=96 μm e comprimento L = 2,6 mm. A área de bombeio é disposta de maneira que as extremidades longitudinais do retângulo ficassem dispostas perto das extremidades da área ativa. O fluxo de energia de bombeio utilizado foi de 20 $pJ/\mu m^2$. Os resultados estão apresentados nas FIG. 24 (a-d) e 25 (a-d) e 26 (a-d), para as amostras com TiO_2 e sem TiO_2 por corte e ablação, respectivamente.

Nos três casos foi observado o mesmo comportamento qualitativo. Uma emissão foi detectada nas extremidades da área de bombeio da região dos espalhadores com máximos e mínimos de intensidade localizados e espectro consistindo em picos estreitos (FWHM ~ 0,3 nm) com frequências aleatórias. Podemos observar que a assinatura espectral típica de laser aleatório coerente é a mesma nas extremidades opostas da área de bombeio, nas áreas emitindo na direita e na esquerda do dispositivo. E, até o momento, esta foi a primeira observação até onde pudemos constatar, de uma configuração experimental apresentando a mesma assinatura de dois centros espalhadores formados em aglomerados aleatórios diferentes.

Este comportamento pode ser explicado devido ao começo da ação laser em toda estrutura, onde a área bombeada atua como amplificador e guia de ganho, e as regiões espalhadoras atuam como elementos de retroalimentação e acopladores de saída. A realimentação é dada pela luz retroespalhada dos aglomerados que entra novamente na área de bombeio e fecha o ciclo de realimentação. As diferentes intensidades observadas para os mesmos picos no aglomerado da direita e no aglomerado da esquerda são atribuídas a dependência em frequência e em direção da eficiência do acoplamento de saída de cada região de espalhamento.

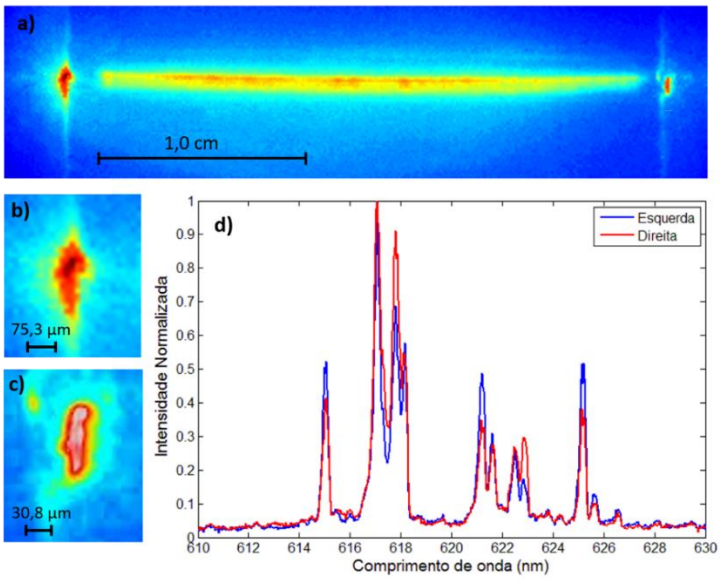

FIGURA 24 - Resultados experimentais obtidos com amostras com TiO2: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita da região emissora.

Nas amostras com TiO_2, o espalhamento da luz é obtida devido ao alto índice de refração entre TiO_2 e o filme de DNA dopado com corante. E o espalhamento entre as amostras sem adição de espalhadores é dado pela diferença entre o índice de refração do ar e do polímero.

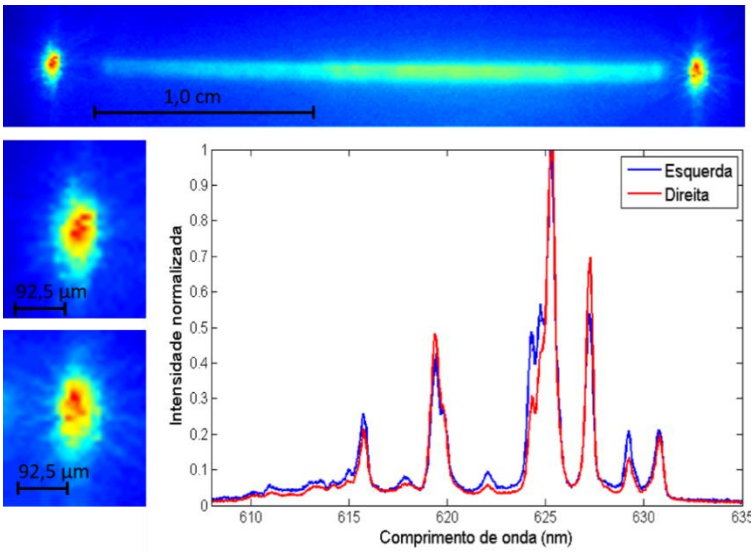

FIGURA 25 - Resultados experimentais obtidos com amostras sem TiO_2 com espalhadores formados pela ablação do meio ativo: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita da região emissora.

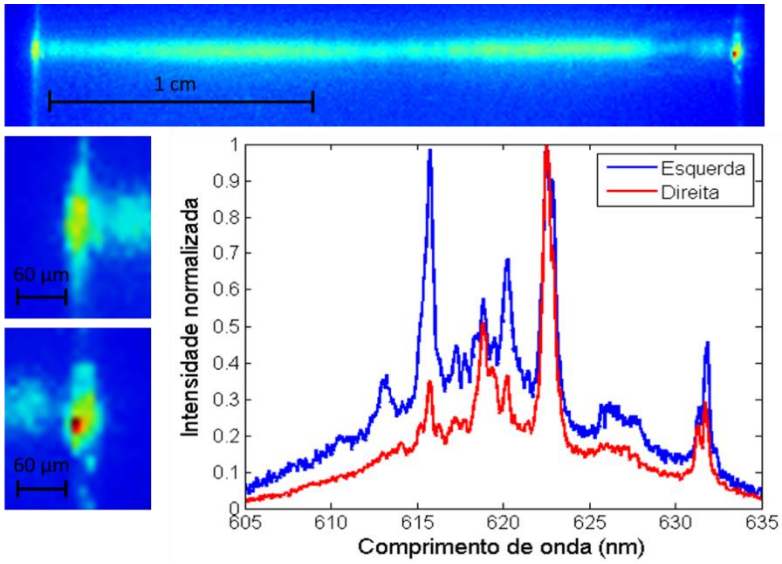

FIGURA 26 - Resultados experimentais obtidos com amostras sem TiO_2 com espalhadores formados pelo corte do meio ativo com uma lâmina: imagem coletada por uma CCD da região de bombeio e das áreas emissoras (a). Imagem ampliada do aglomerado à esquerda (b) e à direita (c). Medida do espectro (d) da esquerda (linha azul) e direita (linha vermelha) da região emissora.

Apesar da grande diferença de índices de refração quando comparamos as amostras com e sem TiO_2, as amostras apresentam o mesmo comportamento pois os defeitos induzidos no polímero com o estilete ou ablação atuam como vários espelhos aleatórios, o que equivale a utilizar um material com alto índice de refração.

As estruturas apresentadas aqui têm emissões laser nas regiões espectrais entre 610 nm e 628 nm para o dispositivo com partículas de TiO_2 e entre 610 nm e 630 nm para o dispositivo sem partículas espalhadoras. Isto é atribuído a diferença da espessura dos filmes poliméricos usados para cada amostra (A emissão estimulada tende para comprimentos de onda mais longos para amostras com filmes poliméricos mais espessos [27,28]).

Dispositivos de filmes sem partículas TiO_2 foram usados na caracterização ASE e suas emissões centradas em 625 nm, correspondendo ao pico de ASE de maior amplitude, como apresentado na FIG. 25(a). O filme polimérico usado nos dispositivos com TiO_2 tem uma espessura de aproximadamente 8 µm e a emissão resultante está deslocada mais de 10 nm para comprimentos de onda mais curtos.

Não foi encontrada nenhuma evidência clara de retroalimentação distribuída ao longo da região bombeada das amostras analisadas. Em trabalhos anteriores com filme polimérico dopado com corante e sem adição de partículas [15], a rugosidade da superfície e imperfeições distribuídas no filme foram usadas como centros espalhadores para obter ação laser. Em nossas amostras, nenhuma emissão em direções fora do plano da amostra foi

detecta da área bombeada, confirmando que não há centros espalhadores no meio ativo. Neste contexto, a proposta da nossa estrutura é descrita unicamente pela realimentação localizada espacialmente, diferente dos lasers aleatórios difusivos mais comuns, baseados no mecanismo de realimentação distribuída.

De forma básica, o comportamento observado é interpretado com uma analogia ao ressonador óptico clássico, onde espelhos espalhadores são usados no lugar da superfície espalhadora rugosa. A radiação é armadilhada entre as regiões espalhadoras dentro do material ativo onde é amplificado a cada passada no ressonador. A seleção de modos estreitos é provavelmente devida à contribuição de fase conjunta de cada superfície espalhadora, que aleatoriamente retroespalha a radiação recebida para todas as direções com diferentes atrasos de fase.

Nós realizamos experimentos adicionais com as amostras sem TiO_2. Diferentes regiões do filme polimérico foram iluminadas com L=2,6 mm, W=96 µm e E_P= 20 pJ/µm^2, FIG. 27b. Mudando a região de bombeio, isto é, usando diferentes regiões da superfície rugosa, cada região apresenta uma assinatura distinta do espectro de emissão. Como apresentado na FIG. 27, o número e a posição dos modos variam aleatoriamente para cada região iluminada. Esta mudança no espectro ocorre devido a diferentes contribuições de realimentação das regiões de interface polímero/ar com rugosidade aleatória diferente. Entretanto, como para cada posição da faixa o mesmo espectro é detectado em ambas as extremidades, podemos deduzimos que a seleção de modos é dada pela contribuição conjunta das duas superfícies rugosas e cada medida corresponde a um dispositivo diferente, com sua própria emissão.

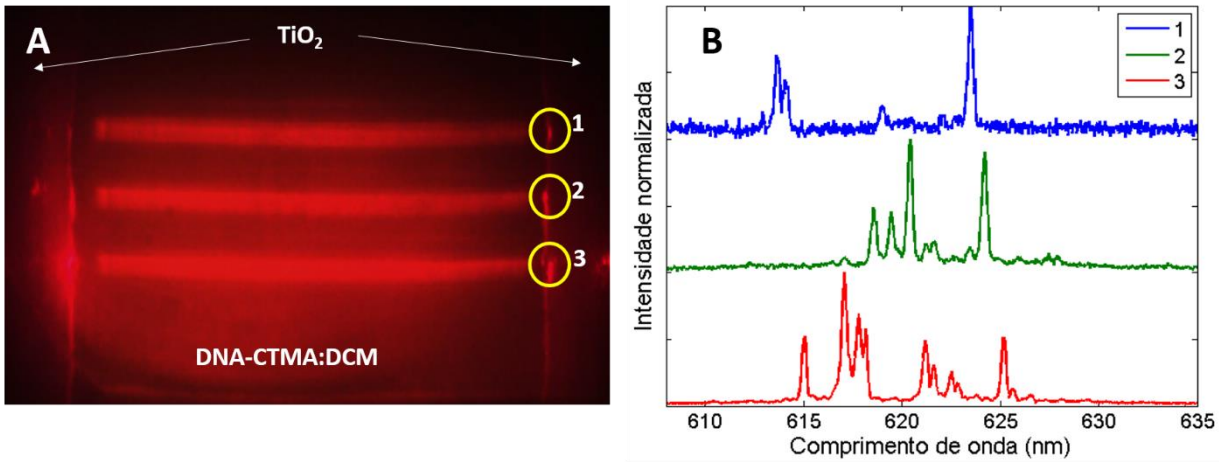

FIGURA 27 - A-Laser gerado em diferentes regiões do meio ativo B-Espectros de emissão normalizados da esquerda (linhas) e direita (tracejado) das extremidades dos lasers, bombeando o filme polimérico em diferentes posições do material.

4.4.4 Medidas da intensidade em função da energia de bombeio

Outra característica analisada foi a medida do espectro emitido pelo dispositivo em função da energia de bombeio E_{pump}. O dispositivo apresentado na FIG. 24 foi utilizado. Uma faixa de bombeio foi projetada entre os aglomerados de TiO_2 com dimensões fixas de 2560 μm × 240 μm e uma densidade de energia constante de 20 pJ/μm^2 do laser de bombeio. A energia incidente na amostra foi sintonizada pela mudança da refletividade dos pixels ativos do SLM. Os valores mudaram de 0.22 a 6.40 pJ/μm^2.

Os resultados estão apresentados na FIG. 28a. Para valores baixos de E_{pump}, apenas um espectro largo de emissão espontânea é detectado. E com o aumento da energia, o limiar laser é atingido para seis modos à 2.32 pJ/μm^2 e estes começam a ação laser. Com o aumento da energia incidente na amostra, mais modos começam a oscilar. E foi observado que independente da energia aplicada, a posição dos modos permanece a mesma.

Na FIG. 28b, temos uma curva que apresenta cada espectro medido em função da energia e integrado por toda a escala de frequências detectada. Esta curva apresenta um limiar laser bem definido entre 2 e 3 pJ/μm^2 com um perfil linear para altas energias. Adicionalmente na FIG. 28b está presente um espectro de emissão para máxima energia utilizada.

A FIG. 28c mostra a evolução da intensidade de modos individuais em função de E_{pump}. Como exemplo, tomamos as emissões em λ_1=613.5 nm, λ_2= 616.7 nm e λ_3=620.0 nm. Detectamos o mesmo limiar laser para λ_1 e λ_3 à 2.3 pJ/μm^2, e um limiar maior para λ_2 à 3.1 pJ/μm^2. Um ponto interessante é que o crescimento da curva pode ocorrer de maneira diferente para cada modo, como λ_1 e λ_2 apresentarem eficiências de conversão distintas apesar do mesmo limiar.

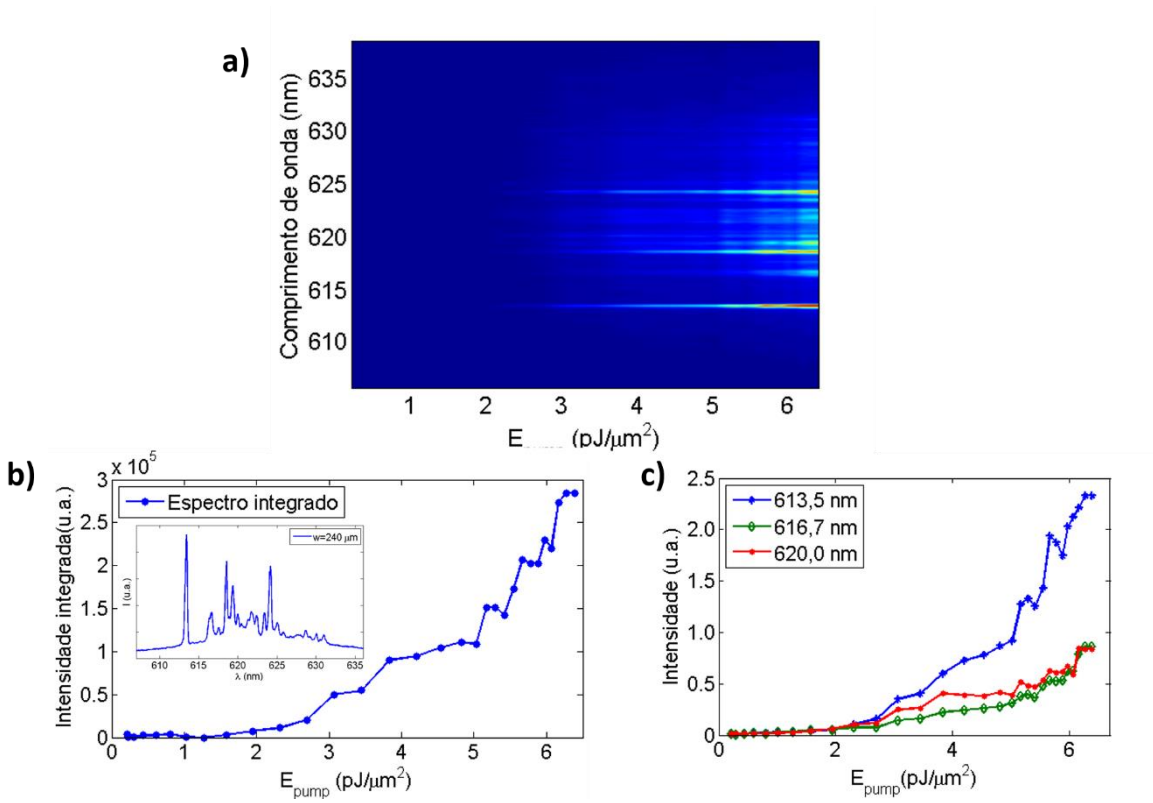

FIGURA 28 - Dependência do espectro de emissão em função da energia de bombeio. A- Intensidade total detectada em função ao longo da escala de frequências. B- Intensidade dos modos 613.5 nm (curva azul), 616.7 nm (curva verde) e 620.0 nm (curva vermelha) em função da energia de bombeio.

4.4.5 Medida da transição entre laser aleatório incoerente (IFRL) para laser aleatório coerente (RFRL)

Alguns trabalhos na literatura reportaram medidas que demonstram a possibilidade de controlar a transição entre dois regimes de emissão possíveis [10], [75], [105]. Ao alterar a forma do feixe de bombeio o dispositivo apresentou um espectro característico de um laser aleatório com realimentação ressonante, ou coerente, quando o meio ativo foi excitado com uma faixa de bombeio com largura baixa; e para largura grande, a emissão alargou para um único pico largo, característico de um laser aleatório com realimentação não ressonante, ou incoerente.

Para realizar este experimento, posicionamos uma faixa de bombeio em uma posição fixa entre os dois aglomerados de rutila com um comprimento de faixa L de 2.56 mm. O fluxo de energia foi mantido constante em 20 pJ/μm^2 e a largura da faixa W variou de 85 μm a 1.02 mm, como exemplificado no diagrama da FIG. 29a. A FIG. 29b apresenta a uma foto da amostra com o meio ativo separando dois aglomerados de rutila. A linha vermelha contínua separa as regiões entre a rutila e o meio ativo e a linha vermelha tracejada delimita a área de excitação do feixe de bombeio.

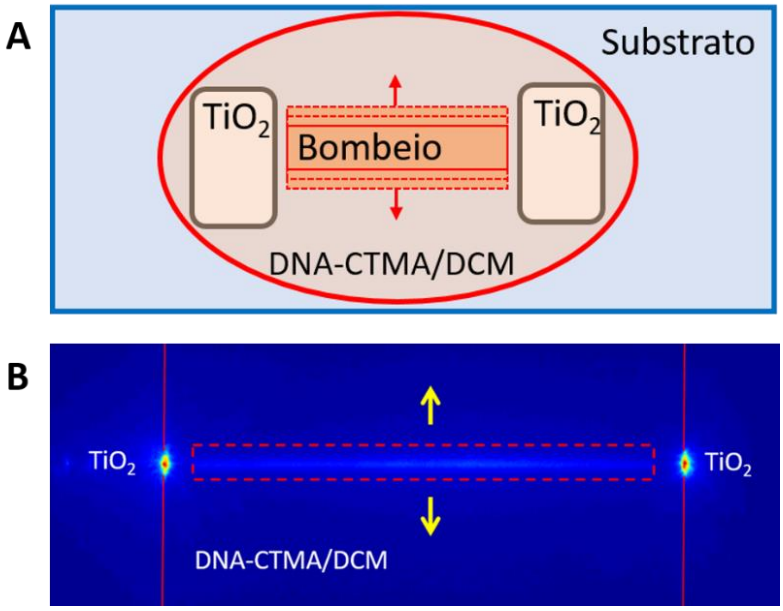

FIGURA 29 - a) Diagrama do esquemático do dispositivo para estudo da transição entre random laser coerente e incoerente; b) Espectros de emissão normalizados da esquerda (linhas) e direita (tracejado) das extremidades dos lasers, bombeando o filme polimérico em diferentes posições do material.

Os resultados estão apresentados nas FIG. 30 e 31. Todos os espectros foram detectados apenas do lado direito da FIG. 29b. Estas apresentam a evolução da emissão do espectro coerente com muitos modos para uma emissão larga. Na FIG. 30 temos um perfil 3D de todos os espectros coletados. Na FIG. 31 podemos observar como o parâmetro W influencia fortemente a emissão do dispositivo, onde cada linha vertical da FIG. 31b representa um espectro coletado para cada faixa. O número de modos em função do bombeio é dado na FIG. 31a. E nas FIG. 31c, d e e são apresentados espectros com faixas de bombeio com larguras de 255 µm, 595 µm e 0.97 mm, respectivamente.

Para grandes valores de W, verificamos que o mesmo espectro é emitido de qualquer região espalhadora.

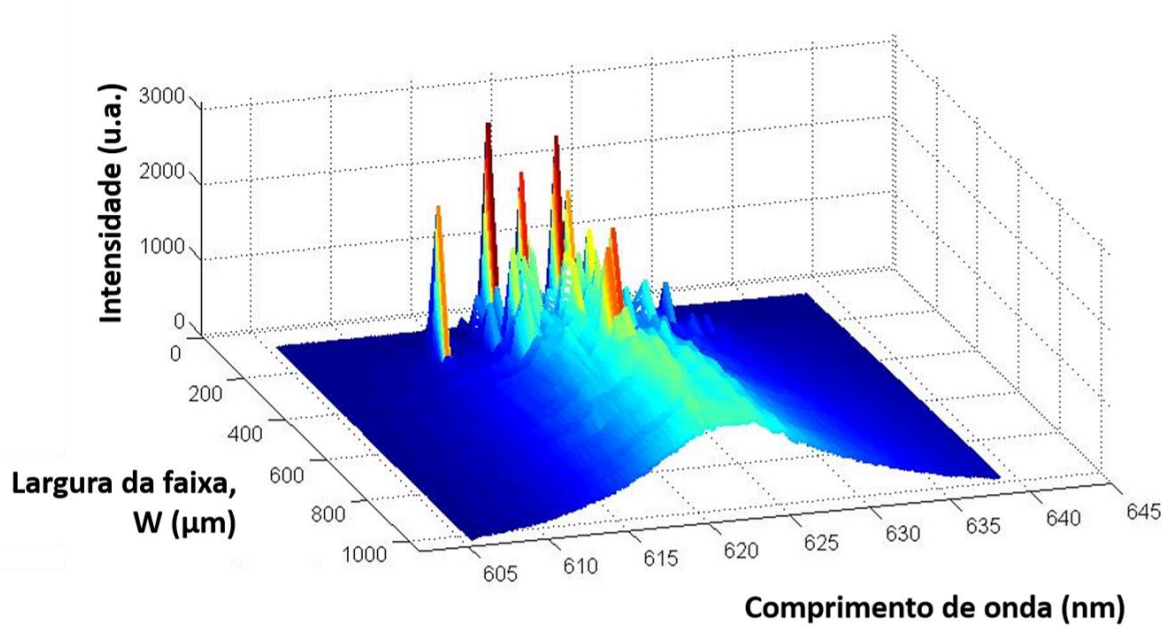

FIGURA 30 - Perfil 3D dos espectros medidos em função de W, com L = 2,56 mm e EP = 20 pJ/µm^2. A largura W foi ajustada de 85 µm e 1,02 mm.

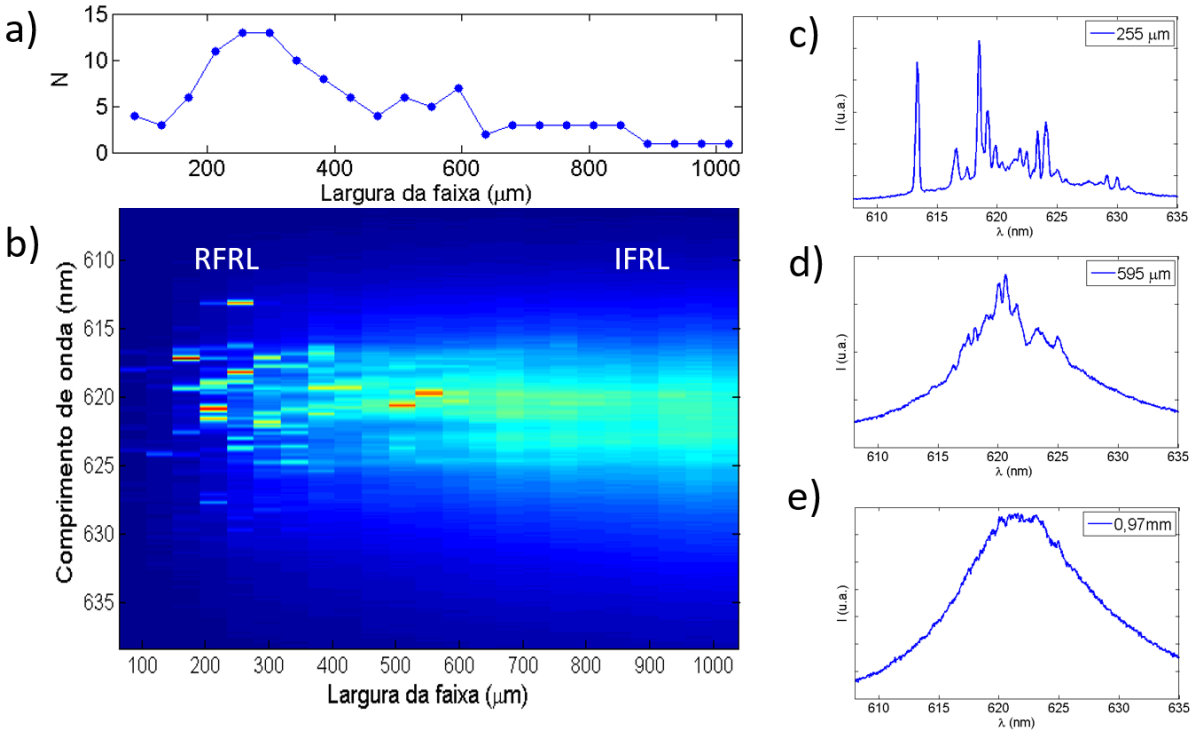

FIGURA 31 - Espectros medidos em função de W. a) Número de modos emitidos em função de W; b) Emissões detectadas por todo o espectro de frequência para cada perfil de bombeio. Exemplos de emissões com largura de faixa fixa em c) 255 μm, d) 595 μm e e) 0,97 mm, respectivamente.

Com o aumento da largura de bombeio, os espectros detectados mudam aleatoriamente, e diferentes picos aparecem em frequências aleatórias. E conforme a largura continua aumentando mais e mais, o número de modos excitados aumenta e o espectro resultante será constituído de uma emissão larga com sobreposição de picos estreitos. Para W>700 μm, não há mais modos estreitos observados e apenas um espectro largo, centrado em 620 nm e 10 nm de largura de linha (FWHM), é detectado. Nesta condição, a contribuição coerente da superfície espalhadora é perdida, e somente amplitude retroespalhada é obtida, resultando em um espectro característico de laser aleatório de retroespalhamento incoerente.

4.4.6 Laser aleatório com ampla área e realimentação ressonante

Do ponto de vista prático, é vantajoso buscar uma alternativa ao uso do SLM para obter uma emissão randômica coerente determinada apenas pelo formato da amostra. Cortando uma faixa estreita do filme polimérico dopado, foi possível obter o laser aleatório por realimentação coerente ao iluminar uniformemente toda a amostra. O dispositivo citado é obtido com o mesmo processo descrito na seção 4.2.5. O comprimento da faixa polimérica é imposto por limitações físicas do processo de corte manual do filme, filmes menores que 600 µm são involuntariamente retidos no substrato.

Um dispositivo com dimensões de 2.6 × 0.65 mm^2 foi obtido e apresentado na FIG. 32a. Espectros de emissão foram medidos de diferentes pontos das extremidades da amostra, numerados de I a VI na FIG. 32b. A interface rugosa com o ar serve como elemento espalhador, similar ao experimento realizado com o SLM. Os espectros medidos mostram picos estreitos em frequências aleatórias, sobrepostas em uma emissão larga de fundo. Picos frequentes são observados nas mesmas posições espectrais de pontos distantes, indicando que todo o dispositivo opera como um único laser aleatório com uma área grande. Este é o primeiro experimento evidenciando um laser aleatório de tal extensão.

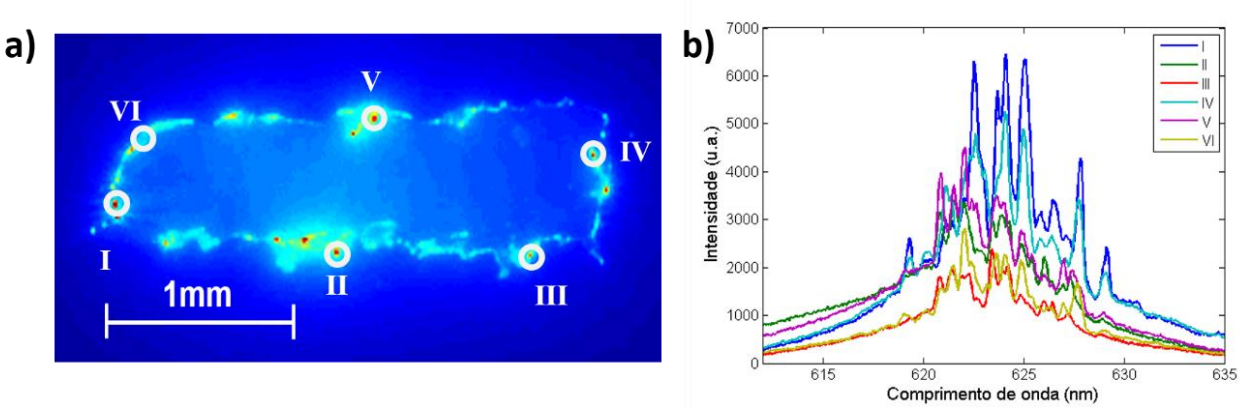

FIGURA 32 - Experimentos realizados com o bombeio uniforme do dispositivo com dimensões de 2.6 mm x 0.65 mm (a). Espectros de emissão detectados das extremidades do dispositivo nos pontos nomeados de I-VI (b).

5 INTERFEROMETRIA *SPECKLE* COM LASER DE FREQUÊNCIA SINTÉTICA SINTONIZÁVEL

Este capítulo é focado no desenvolvimento de um método para estudar a coerência espacial e formação de imagens após múltiplo espalhamento da luz. O fenômeno *speckle*, descrito teoricamente na seção 3.1.3, possui muitas propriedades que o tornam essenciais para inúmeras aplicações e análises [39], [106], [107]. Os primeiros trabalhos neste campo foram apresentados no começo dos anos 70 com Leedertz e Butters [107], [108] demonstrando que os padrões *speckle* sofrem tanto mudanças na intensidade quanto na posição quando um objeto é deformado, o que iniciou as pesquisas neste campo. O padrão codificado possui informações sobre a superfície, deformações ou outros efeitos.

Os métodos para analisar e decodificar estas informações podem ser classificados em três grandes grupos: (i) Fotografia *speckle*, que compreende todas as técnicas que monitoram variações na posição do padrão; (ii) Interferometria *speckle*, engloba todos os métodos baseados na medida de fase e intensidade. (iii) e sherografia, que mede gradientes de fase. A atração dos métodos relacionados ao *speckle* está na sua aplicabilidade para a metrologia óptica, como medidas estáticas e dinâmicas, perfil 3D, rugosidade, aplicações biomédicas, entre muitas outras. As escalas de medidas que pode ser aferida podem variar desde micrometros a metros. E os métodos que podem ser empregados nestas técnicas podem utilizar sistemas com operação em tempo real, tais como CCD, cristais fotorefrativos, ou sistemas de formação de imagem; operações para medir o campo completo, ou seja, todo o objeto, em tempo real; aquisição e armazenamento de informações; métodos de varredura de fase; medidas com sensibilidade variada; e até mesmo avaliação de áreas remotas.

O parágrafo acima descreve de forma global como o *speckle* pode ser empregado e analisado. A nossa proposta é apresentar uma nova ferramenta visando a análise do campo completo de uma frente de onda juntamente com variações de fase que esta frente de onda possa apresentar, em um sistema com sensibilidade variável que possa ser modificada e analisada em tempo real.

Para analisar uma frente de onda por completo, um dos métodos mais comuns conhecidos é através da formação de franjas de contorno. Para isso, utilizam-se dois comprimentos de onda simultaneamente. Ao sobrepor dois padrões *speckle* o efeito resultante é similar ao padrão de Moiré, onde a interferência de duas grades sobrepostas resulta em um padrão de franjas. O intervalo entre as franjas de contorno resultante de um

padrão *speckle* é relacionado ao comprimento de onda sintético, ou comprimento de onda equivalente $\lambda_S = \lambda_1\lambda_2/(\lambda_1 - \lambda_2)$ [109]. Portanto, a diferença entre os comprimentos de onda determina o comprimento de onda sintético e a profundidade, ou desníveis na superfície ou frente de onda que podem ser medidos. Empregar dois comprimentos de onda também soluciona o problema de ambiguidade de fase quando se utiliza apenas uma frequência [28], [110]. Se um objeto possui diferenças de altura muito maiores que o comprimento de onda utilizado, com variações de fase que vão de -2π a 2π, toda vez que a altura medida for múltipla do comprimento de onda haverá uma descontinuidade de 2π na fase deste comprimento de onda. Com o segundo comprimento de onda, a escala de medidas é estendida.

A novidade do nosso experimento é empregar dois comprimentos de onda gerados e controlados livremente de uma mesma cavidade laser com um laser de diodo com cavidade estendida. Além do custo benefício dos lasers de diodo, a cavidade estendida melhora características intrínsecas do laser, como estabilidade e estreitamento na largura de linha. Outra vantagem é que a emissão destes lasers pode ser sintonizada em mais de dez nanômetros para comprimentos de onda na região do visível ou mais de trinta para lasers no infravermelho [29]. Esta escala de sintonia permite que sejam geradas em tempo real, intervalos de contorno que podem variar de nanômetros para uma frequência, e de poucos micrometros a muitos milímetros para duas frequências, considerando distâncias que variam até oito nanômetros entre as frequências. Desta forma, temos uma nova ferramenta simples e versátil para futuras aplicações que envolvem o estudo de frentes de onda originadas de meios difusos, e sem limitações quanto a diferenças de fase presentes nesta frente.

As próximas seções apresentam detalhes teóricos da interferometria *speckle* com múltiplos comprimentos de onda, lasers de diodo com cavidade externa e os resultados obtidos.

5.1 INTERFEROMETRIA POR PADRÃO DE *SPECKLE* ELETRÔNICO (ESPI) COM LASERS DE DIODO MULTIMODO

Neste tópico, vamos nos basear em um interferômetro de Mach-Zehnder, FIG. 33, para descrever como é formado o contorno de franjas na superfície de um objeto. Como meio para visualizar os interferogramas, será abordado o método subtrativo [24], [111] com dois

comprimentos de onda. Por esta técnica, a formação de franjas é devida ao batimento resultante das ondas que incidem na câmera, e a distância entre as franjas visualizadas é dada pelo comprimento de onda sintético dos lasers utilizados $\lambda_S = \lambda_1\lambda_2/|\lambda_1 - \lambda_2|$.

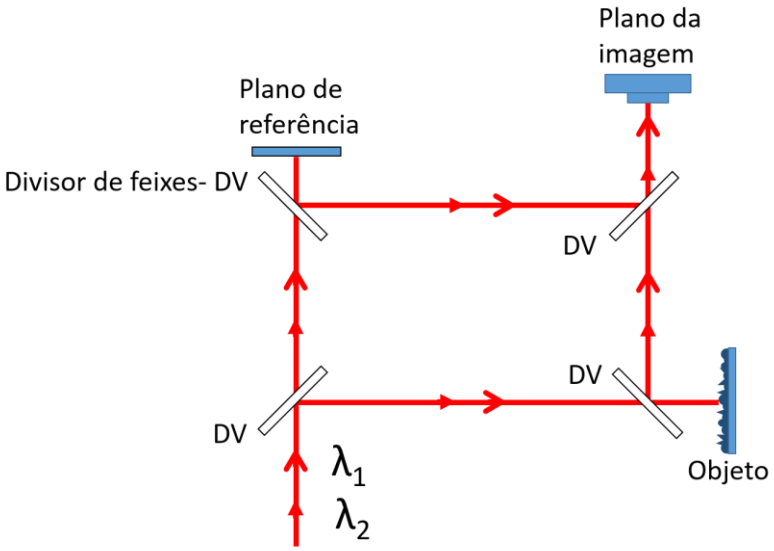

FIGURA 33 - ESPI com dois lasers baseado no interferômetro de Mach-Zehnder.

Nesta situação, o processo de interferência dos campos elétricos é descrito por um feixe referência e um feixe objeto, R_N e S_N respectivamente, incidindo simultaneamente na câmera CCD (plano imagem). Ambas as ondas são originadas de lasers com emissão centrada em λ_S e diferença $\Delta\lambda$ entre os modos adjacentes emitidos. Deste modo, podemos representar R_N e S_N como [112],

$$R_N = R_0 \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n e^{\{i[(\bar{k}-n\Delta k)\Gamma_R+\phi_n]\}}$$

$$S_N = S_0 \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n e^{\{i[(\bar{k}-n\Delta k)\Gamma_S+\phi_n]\}} \qquad (46)$$

Nas expressões temos N como número de modos oscilando, $\bar{k}$ é o número de onda, $\bar{k} \equiv 2\pi/\lambda_S$ e $\Delta k \equiv 2\pi\Delta\lambda/\lambda_S$, A_n é um coeficiente real e Γ_R e Γ_S são os caminhos ópticos dos feixes referência e objeto, respectivamente. Assim, a intensidade resultante no ponto

P(x,y,z), FIG. 33, pode ser escrita como o quadrado absoluto dos campos referência e objeto. Logo:

$$I_1 = |(R_N + S_N)|^2 = |R_N|^2 + |S_N|^2 + R_N^*.S_N + S_N^*.R_N \tag{47}$$

Como modos diferentes não são coerentes entre si, precisamos seguir as condições de ortogonalidade [112],

$$S_N^*.R_N = \delta_{n,m} S_0 R_0 A_n A_m e^{\{-i[(\bar{k}+n\Delta k)\Gamma_s+\phi_n]\}} \times e^{\{i[(\bar{k}+m\Delta k)\Gamma_s+\phi_m]\}} \tag{48}$$

Aplicando 48 em 47, temos,

$$\begin{aligned} I_1 = R_0^2 + S_0^2 + S_0 R_0 e^{i\bar{k}(\Gamma_S-\Gamma_R)} \times \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n^2 e^{in\Delta k(\Gamma_S-\Gamma_R)} \\ + R_0 S_0 e^{i\bar{k}(\Gamma_S-\Gamma_R)} \times \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n^2 e^{-in\Delta k(\Gamma_S-\Gamma_R)} \end{aligned} \tag{49}$$

Sabendo todos os termos que compõem a intensidade, podemos reescrevê-la na equação 50

$$I_1 = R_0^2 + S_0^2 + 2R_0 S_0 \cos\left(\bar{k}(\Gamma_S - \Gamma_R)\right) \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n^2 e^{in\Delta k(\Gamma_S-\Gamma_R)} \tag{50}$$

Esta relação nos dá a intensidade do interferograma para uma exposição registrada pela CCD. Para visualizarmos o padrão de franjas formado, aplicamos uma modulação

senoidal na fase do feixe objeto. Em nosso experimento, a modulação foi realizada por um espelho preso a um transdutor piezoelétrico (PZT). Com um determinado sinal, este transdutor pode oscilar. A frequência de vibração utilizada foi por volta de algumas dezenas de Hertz e sua amplitude de vibração na faixa de alguns micrometros. Caso a amplitude seja larga o bastante, o padrão de *speckle* é decorrelacionado e a intensidade da segunda exposição é apenas $I_2 = R_0^2 + S_0^2$. Após a subtração temos:

$$I = I_2 - I_1 = 2R_0S_0 \left| \cos\left(\bar{k}(\Gamma_S - \Gamma_R)\right) \sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n^2 e^{in\Delta k(\Gamma_S - \Gamma_R)} \right| \tag{51}$$

O termo cosseno na equação 51 representa a modulação da alta freqüência espacial do comportamento aleatório do padrão de *speckle*, observado pelo padrão granular presente nas franjas dos interferogramas obtidos. Esta característica torna este termo muito sensível a deslocamentos de fase que são da mesma ordem de grandeza de $\bar{\lambda}$. O segundo termo tem baixa freqüência espacial e varia de acordo com o relevo da superfície do objeto, sendo responsáveis pela formação do contorno das franjas de interferência.

Eliminamos o termo de alta frequência responsável por ruídos na imagem aplicando uma transformada de Fourier como filtro de sinal e, para evitarmos componentes negativas da intensidade, o sinal foi elevado ao quadrado. O interferograma da equação 51 é reescrito na eq. 52

$$V \equiv \langle I \rangle^2 = (2R_0S_0)^2 \left(\sum_{n=-(N-1)/2}^{n=(N-1)/2} A_n^2 e^{in\Delta k(\Gamma_S - \Gamma_R)} \right)^2 \tag{52}$$

Podemos simplificar a equação 52 considerando todos os modos oscilando com mesma amplitude, $A_N = 1$, para facilitar a análise do interferograma [113].

$$V = 2R_0S_0 \frac{\text{sen}^2[N\Delta k(\Gamma_S - \Gamma_R)/2]}{\text{sen}^2[\Delta k(\Gamma_S - \Gamma_R)/2]} \tag{53}$$

Na equação 53, podemos observar que as diferenças de fase $\Delta k(\Gamma_S - \Gamma_R)$ vão variar apenas em função do relevo do objeto e, o padrão sen^2 nos indica que a imagem reconstruída por este sinal será modulada por um contorno de franjas de interferência devido aos múltiplos modos utilizados no processo de interferência.

Levando em consideração um espectro contínuo da emissão laser, a somatória pode ser representada como uma integral, e o sinal do interferograma V pode ser reescrito como [114],

$$V = \left\{ 2R_0 S_0 \int_{-\infty}^{\infty} [g(k)]^2 e^{ik\Delta\Gamma} dk \right\}^2 = [2R_0 S_0 F(\Delta\Gamma)]^2, \qquad (54)$$

onde $F(\Delta\Gamma)$ é a transformada de Fourier da função $[g(k)]^2$, enquanto $g(k)$ é a contraparte continua de A_n, portanto $[g(k)]^2$ é fortemente relacionado a intensidade do espectro do laser como uma função do número de onda *k*. Esta função nos mostra que é possível determinar o perfil do padrão de interferência, como função da coordenada objeto Γ_S com respeito a coordenada referência Γ_R, a partir emissão do laser.

Como exemplo ilustrativo, foi realizada uma simulação do padrão de interferência para um laser de diodo com dois modos. O espectro de emissão para a primeira simulação aparece na FIG. 34a e representa um espectro típico de um laser de diodo multimodo emitindo dois picos de mesma amplitude λ_1 = 660.0 nm e λ_2 = 660.4 nm. A largura espectral para ambos os picos é $\Delta\lambda$ = 0.060 nm. A FIG. 34b mostra o interferograma correspondente com sinal *V* como função da diferença de caminho óptico $\Delta\Gamma$, de acordo com a equação (54). A FIG. 34c mostra o espectro para dois modos com perfil Lorentizano para os mesmos comprimentos de onda, mas largura espectral diferente $\Delta\lambda$ = 0.021 nm, e a FIG. 34d, seu interferograma resultante.

Pela comparação das FIG. 34b e 34d, podemos notar uma diminuição da intensidade como função de $|\Delta\Gamma| > 0$ que pode ser atribuída a largura dos modos do laser: quanto maior a largura dos modos, mais rápido será a diminuição da intensidade. Pela distância de dois mínimos adjacentes de cada curva, o comprimento de onda sintético pode ser estimado, com o valor de $\lambda_S \cong 1.1$ μm, o que está de acordo com o valor teórico de 1.09 μm obtido da relação $\lambda_S = \lambda_1\lambda_2/(\lambda_1 - \lambda_2)$.

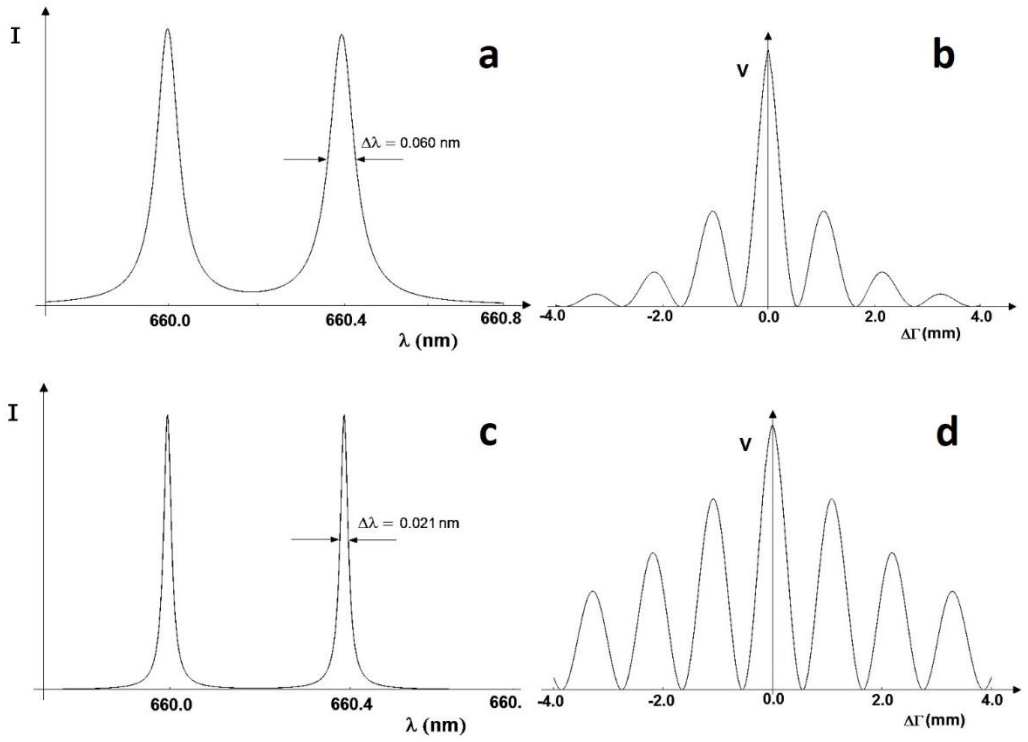

FIGURA 34 - Simulação de emissões de duas frequências diferentes de um laser e seus interferogramas correspondentes com sinal V.

5.2 LASER DE DIODO COM CAVIDADE ESTENDIDA (EXTERNAL CAVITY DIODE LASER- EDCL)

Existem diversas maneiras de se gerar mais de um comprimento de onda da emissão de um laser, e talvez o método mais simples e prático para isso seja aplicando uma cavidade externa a um laser de diodo. Diferente de lasers de estado sólido ou laser de gás, que apresentam níveis de energia estritos, a transição energética para gerar a emissão laser em um diodo ocorre em bandas de energia. Adicionalmente, a cavidade do diodo possui baixa *finesse*. Estas características permitem que, com poucos microwatts reinjetados na cavidade, seja possível alterar o espectro de emissão, sendo possível selecionar um modo específico dentro do perfil de ganho. Adicionalmente, a realimentação influencia a potência de saída, aumenta a estabilidade e o estreitamento da emissão.

Neste método, o acoplamento externo é realizado por meio de algum elemento dispersivo, como uma grade de difração [29] ou um prisma [115] para proporcionar um feedback óptico necessário para forçar a oscilação laser diferente do modo natural da cavidade.

Tipicamente, as grades de difração de reflexivas são utilizadas como um componente externo de seleção de modos. A cavidade externa é composta basicamente por um laser de diodo com óptica de colimação, um elemento de dispersão e outros componentes ópticos para a realimentação.

Os tipos mais comuns de cavidades externas são Littman-Metcalf [116] e Littrow [117], demonstradas esquematicamente na FIG. 35.

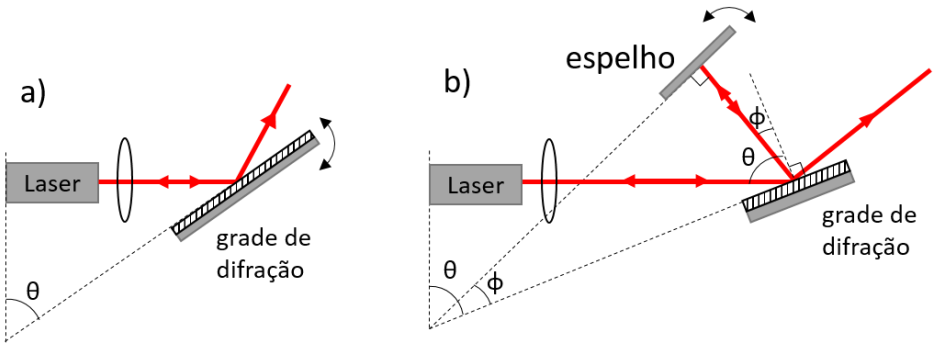

FIGURA 35 - Diagrama esquemático das cavidades externas. b) Littrow e c) Littman-Metcalf

Ambas as configurações usam grades de difração como elemento em um ressonador externo. A configuração mais simples de uma cavidade Littrow está representada na FIG. 35a. Ela é composta por uma lente de colimação e uma grade de difração. A primeira ordem do feixe difratado fornece a realimentação, e a ordem zero de difração é utilizada para o experimento. A sintonia do comprimento de onda é realizada pela variação do ângulo no alinhamento da grade. Devido a simplicidade desta cavidade, a intensidade do feixe de saída pode ser até 80% da intensidade original do laser, o que melhora o controle dos comprimentos de onda, uma vez que uma intensidade maior de realimentação força a oscilação desejada com mais facilidade. Uma desvantagem neste sistema é que ao alinhar a grade, o alinhamento do feixe de saída muda ligeiramente, fazendo com que seja necessário um sistema de compensação.

A cavidade Littman-Metcalf apresentada na FIG. 35b, por outro lado, redireciona a primeira ordem de difração para um espelho que reflete este feixe de volta para a cavidade. A variação de frequência ocorre pela variação do ângulo deste espelho sem alterar o alinhamento da grade. Desta forma, a ordem zero difratada mantêm a mesma direção. A desvantagem neste método é o aumento das perdas devido a difração dupla na grade, diminuindo a potência de saída.

5.2.1 Conceito de sintonia por meio de refletividade efetiva

O princípio físico para a seleção de modos sintonizados por um filtro externo pode observado na FIG. 36 abaixo, e descrito pela expressão [118],

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Delta \mathrm{n}}{n} + \frac{\Delta \mathrm{L}}{L} - \frac{\Delta m}{m} \tag{55}$$

onde λ é o comprimento de onda, *n* é o índice de refração efetivo, *m* é modo ressonante selecionado ajustado pela ângulo do feixe incidente na grade, e *L* é o comprimento efetivo da cavidade.

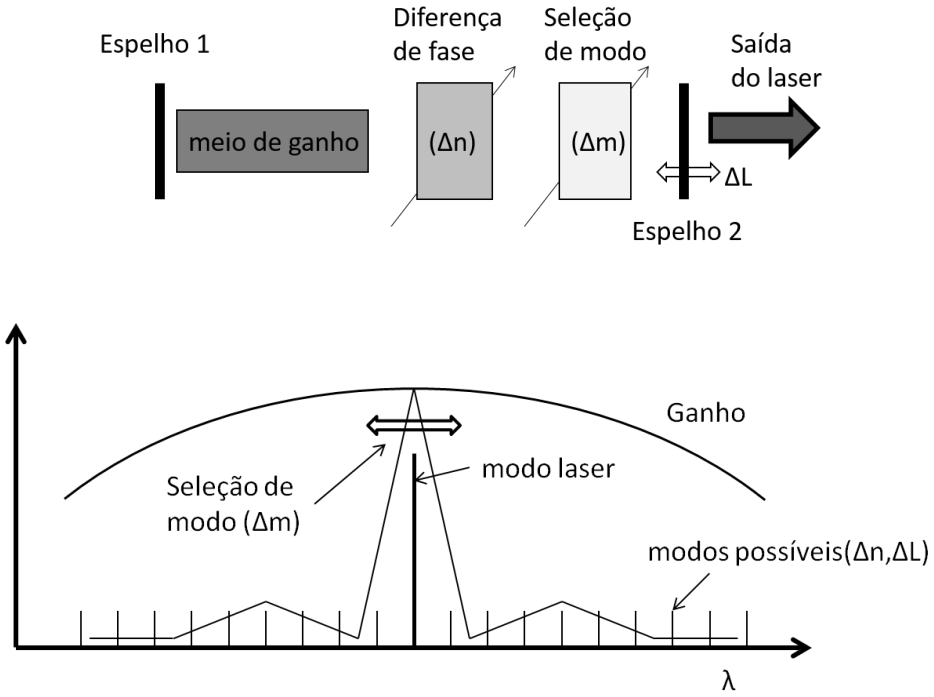

FIGURA 36 - Princípio de ajuste de uma ECDL [118]

O efeito da variação do comprimento da cavidade externa pode ser explicada por um modelo de refletividade efetiva. As perdas induzida pelos refletores de uma cavidade ressonante em um laser de diodo é dada pela relação,

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \frac{1}{r_1 r_2} \tag{56}$$

onde α representa as perdas, d é o comprimento inicial da cavidade e r_1 e r_2 são as refletividades das faces refletoras à esquerda e direita do semicondutor.

Considerando que as refletividades r_1 e r_2 são constantes para toda a faixa de frequências, então o perfil de perdas também é constante. Ao aplicar uma cavidade externa consideramos o acoplamento entre as duas cavidades, assim, ajustamos o sistema de perdas, considerando agora a refletividade efetiva complexa introduzindo o atraso induzido pela cavidade e a refletividade do espelho externo. O laser pode ser tratado pela relação abaixo [119], [120].

$$R_{eff}(\lambda) = \frac{r_2 + r_3 \exp(-j4\pi n L_C/\lambda)}{1 + r_2 r_3 \exp(-j4\pi n L_C/\lambda)} \tag{57}$$

onde r_3 é a refletividade do espelho da cavidade externa, n é o índice de refração do meio ativo e L_C é o comprimento da cavidade externa.

$$\alpha(\lambda) = \frac{1}{d} \ln \frac{1}{r_1 \left| R_{eff}(\lambda) \right|} \tag{58}$$

Após a nova configuração, o perfil de perdas se torna dependente da frequência e fornece um fator de sintonia do laser de acordo com o comprimento da cavidade externa. Um cálculo importante que pode ser obtido deste resultado é o quanto o modo laser é suprimido em relação ao modo da cavidade pela diferença de suas respectivas perdas. Esta expressão está demonstrada a seguir.

$$\Delta\alpha = \frac{1}{d} \ln \frac{\left| R_{eff}(\lambda_0) \right|}{\left| R_{eff}(\lambda_i) \right|} \tag{59}$$

onde λ_0 e λ_i são são os dois comprimentos de onda competindo na cavidade por ser modos ressonantes coincidentes.

5.2.2 Oscilação com dois modos

Quando dois modos são emitidos simultaneamente de um semicondutor, cada modo compete pelo ganho disponível no material e a oscilação de um modo reduz o ganho

disponível para o outro modo [121]–[123]. Esta operação com dois modos pode ser descrita por um modelo simplificado de equações de taxa [124] para as intensidades I_1 e I_2 dos modos 1 e 2 respectivamente.

$$\frac{dI_1}{dt} = (\alpha_1 - \beta_1 I_1 - \theta_{12} I_2) I_1 \tag{60}$$

$$\frac{dI_2}{dt} = (\alpha_2 - \beta_2 I_2 - \theta_{21} I_1) I_2 \tag{61}$$

onde α_i é o coeficiente de ganho não-saturado para o modo i, β_i é o coeficiente de auto-saturação, e θ_{ij} é o coeficiente de saturação cruzada. No estado estável, estas equações dão as soluções para I_1 e I_2, que são relacionadas pela constante de acoplamento,

$$C \equiv \frac{\theta_{12}\theta_{21}}{\beta_1 \beta_2} \tag{62}$$

Dependendo do valor de C, pode haver três diferentes regimes de operação. Quando $C = 1$, o acoplamento é neutro e apenas uma frequência oscila, enquanto a outra é reprimida. Para $C > 1$, o acoplamento é forte e a oscilação é estável para um modo e instável para o outro devido a pequenas perturbações que podem favorecer um dos modos. E para $C < 1$ o acoplamento é fraco e ambos os modos oscilam simultaneamente e dividem o ganho. Nesta condição, a estabilidade pode ser fortemente suportada por *hole burning* espacial [125].

A característica mais expressiva de uma cavidade estável é o estreitamento de linha. Ao estender o comprimento da cavidade óptica, as flutuações de fase devida a recombinações espontâneas na largura de linha de um laser podem ser reduzidas dramaticamente. Para entender o estreitamento da emissão devido a aplicação de uma cavidade externa, antes será apresentada o ganho em uma volta na cavidade. Este pode ser expresso como:

$$\sqrt{G_{RT}} = r_1 r_2 e^{(g-\alpha_i)L} e^{-j\frac{2\pi n_{eff}}{\lambda} 2L} \tag{63}$$

onde g representa o coeficiente de ganho e α_i representa o coeficiente de perda, λ é o comprimento de onda, n_{eff} é o índice de refração efetivo e L é o comprimento da cavidade.

Esta equação pode ser decomposta nas condições de fase e amplitude dadas respectivamente pelas equações abaixo.

$$g_{th} = \alpha_i + \frac{1}{2L}\ln\left(\frac{1}{R_1 R_2}\right) = \alpha_i + \alpha_m \tag{64}$$

$$\lambda_N = \frac{2n_{eff}L}{N} \tag{65}$$

Nestas equações temos que N é um número inteiro que representa o número do modo e α_m define as perdas nos espelhos.

A intensidade do espectro de um campo elétrico emitido pelo diodo é uma Lorentziana com largura de linha dada pela fórmula de Schawlow-Townes[126]–[128].

$$\Delta\nu_q = \frac{h{\nu_q}^2 g_{th} n_{sp}}{8\pi P_{saída}}\alpha_m(1+\beta^2) \tag{66}$$

onde h é a constante de Planck, ν_q é a frequência do laser, n_{sp} é o número de fótons emitidos espontaneamente em um modo, $P_{saída}$ é a intensidade do modo. O fator de incremento espectral da largura de linha β é dado por $(dn/dG)(dG/DN)$, com valores típicos entre 2 e 8 [129].

A equação acima descreve o alargamento espectral da largura de linha devido a flutuações de fase e amplitude causadas pela adição indesejada de fótons emitidos espontaneamente no modo laser. O aumento no tamanho da cavidade diminui α_m que por sua vez reduz a largura de linha. Isto porque simultaneamente, o aumento da cavidade diminui fótons emitidos espontaneamente e aumenta o número total de fótons na cavidade para uma potência de saída fixa.

5.3 INTERFERÔMETRO *SPECKLE* COM DOIS COMPRIMENTOS DE ONDA

O interferômetro *speckle* com dois comprimentos de onda projetado para aplicações voltadas à medida de fase está apresentado no diagrama esquemático na FIG. 37; este foi baseado em interferômetros *speckle* de trabalhos anteriores [25]. O divisor de feixes BS1 divide o feixe objeto e feixe referência. O feixe referência é filtrado por um filtro espacial SF e colimado pela lente L5. Este, então, é refletido pelo divisor de feixe BS2 para a câmera CMOS (Thorlabs – DCC1545M).

O feixe objeto é expandido e colimado pelas lentes L2 e L3 a fim de se obter uma frente de onda plana. Esta, ilumina o vidro difusor para gerar o padrão *speckle*, e então é refletido pelo espelho M2 para se recombinar com o feixe referência na câmera com o divisor de feixes BS2. A interferência resulta em um padrão *speckle* envelopado por um interferograma de período espacial infinito, ou seja, sem franjas de contorno. Após posicionar um objeto em frente ao vidro difusor, a forma da frente de onda plana se adapta ao relevo do objeto, o que resulta no interferograma com franjas de contorno que descrevem a geometria da frente de onda, de acordo com a equações 53 e 54.

Os polarizadores P1 e P2 foram posicionados nos braços do feixe objeto e referência com o objetivo de aumentar o contraste das franjas. Outro método utilizado para melhorar a visibilidade foi aplicar o método subtrativo, aplicando um sinal senoidal em um transdutor piezo-elétrico PZT acoplado ao espelho M1.

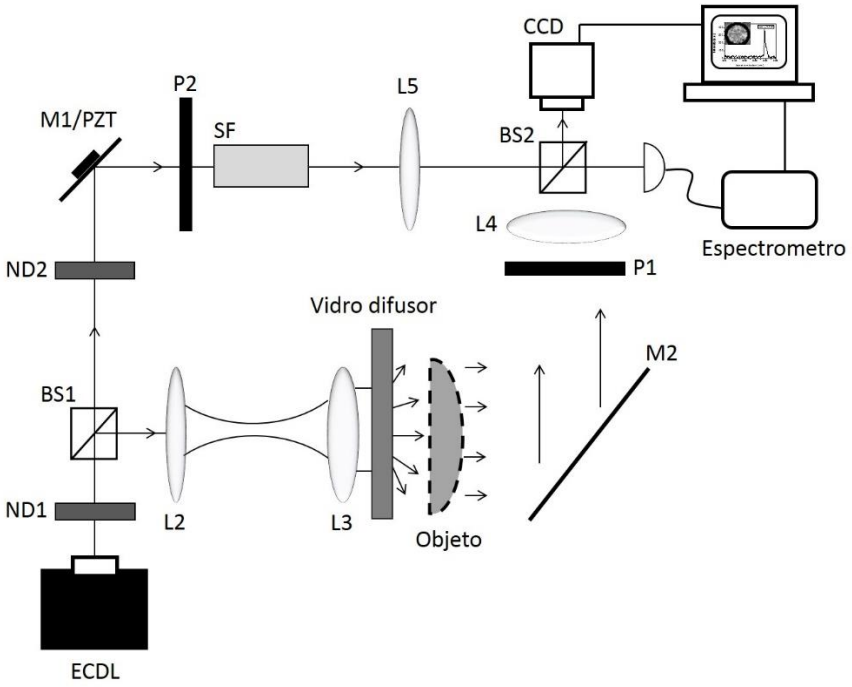

FIGURA 37 - Diagrama esquemático do interferômetro speckle para interferometria com múltiplos comprimentos de onda.

Para nosso estudo, o arranjo de Littman-Metcalf foi escolhido para a sintonia de duas frequências, pois este arranjo não altera o alinhamento do feixe de saída durante a sintonia das frequências com o espelho M1. A FIG. 38 apresenta um diagrama esquemático deste laser.

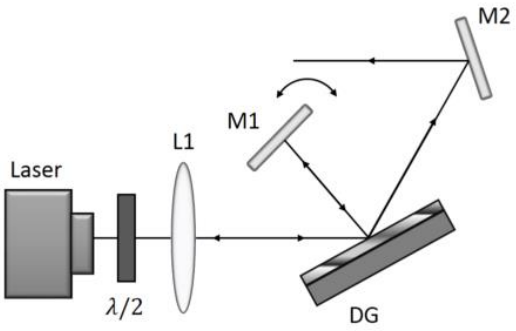

FIGURA 38 - Arranjo Littman-Metcalf para um ECDL.

O laser com cavidade estendida é composto por um laser de diodo comercial (Coherent, S-67-350C-50T) com emissão centrada em 672 nm e 350 mW de potência máxima. Um dissipador de calor termo-elétricamente controlado foi utilizado para estabilizar a temperatura do laser em 25ºC. Uma grade de difração (DG) de 2362.6 linhas/mm (Thermo Jarrel Ash), foi iluminada pelo feixe laser com incidência rasante, gerando uma emissão com uma linha estreita (entre 0.6 – 0.8 nm comparado com 1 - 1.5 nm sem a cavidade).

A primeira ordem de difração da grade é refletida pelo espelho M1 para retornar novamente ao diodo. Desta maneira, devido a dispersão da grade e o alinhamento de espelho, apenas uma banda estrita de frequências é amplificada. Com uma pequena mudança no alinhamento do espelho M1, o laser pode ser facilmente sintonizado, possibilitando uma ou duas emissões simultaneamente. Diferentes comprimentos de onda apresentam diferentes polarizações, devido a birrefringência apresentada pela grade de difração, o que permite balancear a intensidade relativa entre duas emissões com uma placa de meia-onda ($\lambda/2$) posicionada em frente ao laser.

Toda a montagem com o laser e o interferômetro pode ser observada na FIG. 36. O monitoramento da emissão do laser foi realizado em tempo real com o feixe referência que era transmitido pelo divisor de feixe BS2 (FIG. 37), utilizando um espectrômetro acoplado a fibra (Ocean Optics HR4000), com resolução de 0.24 nm.

A emissão dupla de um laser pode ser obtida por alguns métodos convencionais. Optou-se por usar um laser de diodo sem uma camada anti-reflexiva na fase de oscilação do laser. Assim o laser pode emitir sua frequência natural de oscilação e/ou a frequência induzida.

5.4 RESULTADOS

Primeiramente, caracterizamos a sintonia do laser com a cavidade estendida medindo a intensidade da emissão para diferentes pares de comprimentos de onda emitidos. Para cada ponto foi alterada a separação λ_1-λ_2 entre os picos. É esperado que sejam obtidos menores valores de λ_S correspondentes a maiores separações entre os comprimentos de onda, juntamente com uma intensidade menor do laser, porque o ganho do laser decai para emissões mais afastadas do centro de ganho do diodo [29]. A FIG. 39 mostra a intensidade emitida pelo laser em função do comprimento de onda sintético $\lambda_S = \lambda_1\lambda_2/(\lambda_1-\lambda_2)$ para as seguintes correntes aplicadas no diodo (300 mA, 380mA , 420 mA e 460 mA). As curvas mostram que λ_S pode ser sintonizado de 60 μm à 450 μm aproximadamente, para praticamente todas as correntes. Para os nossos experimentos, optamos por utilizar apenas uma corrente de alimentação de 300 mA, porque com o aumento da potência observamos um alargamento da largura de linha da emissão.

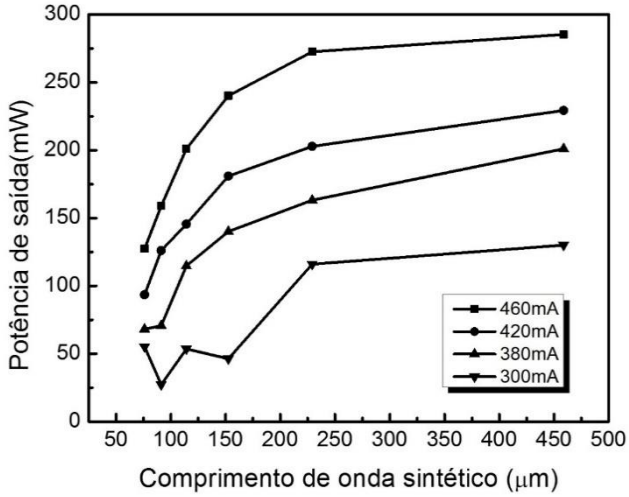

FIGURA 39 - Curva de sintonia de um ECDL como função do comprimento de onda sintético para várias correntes de alimentação. A curva sólida é apenas um guia para os olhos.

Para demonstrar como é possível controlar livremente o comprimento de onda sintético com um laser com cavidade externa foram realizados dois experimentos.

Em um primeiro experimento, interferogramas foram obtidos da interferência de uma frente de onda plana como referência e uma frente de onda plana após passar por um difusor, para gerar o padrão *speckle*, e este passar pelo objeto de estudo, neste caso, uma lente plano-convexa com uma polegada de diâmetro e comprimento focal de 50 mm. Para

cada imagem, o único parâmetro modificado foi o comprimento de onda sintético de uma emissão dupla de um laser de diodo. Os resultados na FIG. 40 mostram como a frequência espacial das franjas de contorno aumenta com a diminuição da frequência sintética. Para estas medidas, a emissão de λ_1 foi fixada em 659.58 nm e λ_2 variou de 657.23 a 659.48 nm.

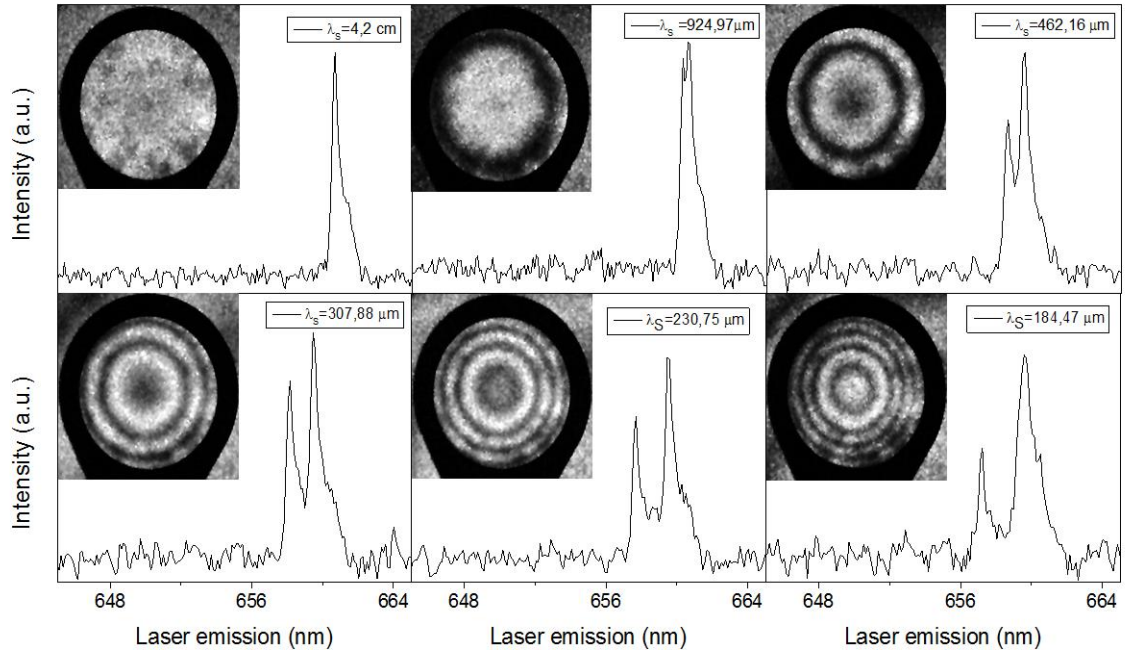

FIGURA 40 - Interferogramas diferentes de uma lente com comprimento focal f=5 cm obtidos com comprimentos de onda sintéticos selecionados.

Para um segundo experimento, uma frente de onda esférica obtida com o ajuste entre as lentes L2 e L3 foi utilizada. Com o ajuste do espelho M1 no laser com a cavidade estendida para gerar dois modos longitudinais com $\lambda_1 = 674.65$ nm e $\lambda_2 = 677.91$ nm, o que corresponde a um comprimento de onda sintético de $\lambda_S = 140.29$ µm. A FIG. 42a apresenta o espectro da emissão como uma função do número de onda, e a FIG. 42b apresenta sua transformada de Fourier ao quadrado. Ao examinar a distância entre dois mínimos adjacentes na FIG. 41b, é possível estimar o valor do comprimento de onda, com o valor de 140µm. A medida do interferograma correspondente a estas emissões com o interferômetro DPSI é apresentado na FIG. 41c com franjas circulares concêntricas. Ao mudar o alinhamento do espelho M1 e da placa de onda, a oscilação de outros modos longitudinais pode ser reforçada e a emissão ser facilmente sintonizada.

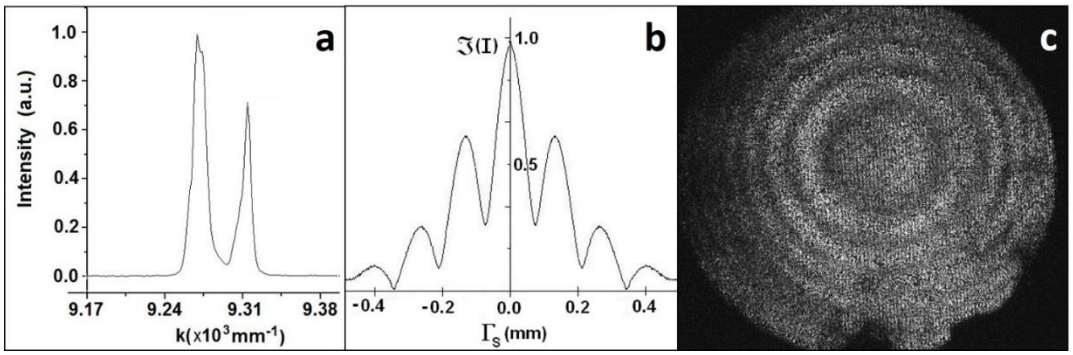

FIGURA 41 - a) Espectro de emissão do laser de diodo para λ_S =140.29 μm; b) Transformada de Fourier do espectro; c) franja de contorno gerado com dois comprimentos de onda por uma frente de onda esférica.

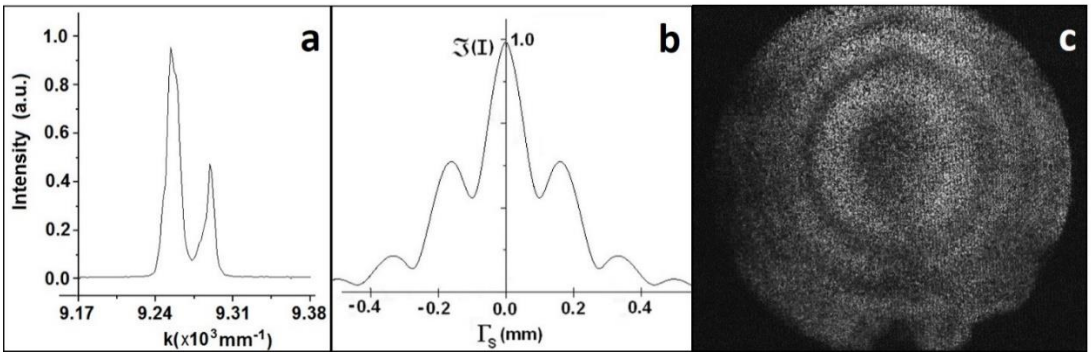

FIGURA 42 - a) Espectro de emissão do laser de diodo para λ_S =178.84 μm; b) Transformada de Fourier do espectro; c) franja de contorno gerado com dois comprimentos de onda por uma frente de onda esférica.

As FIG. 41a, b e c apresentam resultados similares à FIG. 40, mas a emissão do laser estava centrada em 675.35 nm e 677.91 nm, resultando em um comprimento de onda sintético de λ_S =178.84 μm.

Pela transformada de Fourier apresentada nas FIG. 41b e 42c, podemos concluir que a visibilidade das franjas em 41c é maior comparada a FIG. 42c. Com este fato, ao analisar ambos os interferogramas é possível observar uma visibilidade um pouco maior na primeira imagem em relação a segunda, entretanto, é preciso considerar que as diferenças entre as intensidades nos modos longitudinais não é o único fator que influencia na visibilidade dos interferogramas; outros fatores experimentais podem afetar a visibilidade do padrão de contorno [130]. E ao analisar as FIG.s 41c e 41b, podemos concluir que a primeira imagem 41c apresentou uma melhor visibilidade que a esperada; a mesma conclusão pode ser feita com a mesma comparação entre as FIG. 42c e 42b. Esta discrepância pode ser atribuída principalmente à baixa resolução do espectrômetro, que apresenta linhas de emissão com largura maior que o valor real, e fazendo com que a função V tenha um decaimento maior que a visibilidade do interferograma.

6 CONCLUSÕES

Neste trabalho, foram abordadas novas metodologias para o desenvolvimento e analise de lasers aleatórios com uma configuração baseada em realimentação localizada. Tais lasers representam uma nova classe de lasers que possibilitam novas geometrias para a fabricação de ressonadores com alta coerência temporal e baixa coerência espacial. Adicionalmente foi desenvolvido um método para analisar a luz difundida de uma superfície espalhadora baseado em interferometria *speckle* com múltiplos comprimentos de onda. Esta ferramenta permitirá facilitar futuras aplicações voltadas para o estudo de frentes onda. O método permite ajustar a resolução espacial de franjas de contorno para analisar os mais diferentes tipos de relevo, e com uma análise espectral de uma fonte com mais de um comprimento de onda é possível prever sua coerência e frequência espacial, que são correspondentes com as larguras e distâncias entre as frequências emitidas.

No âmbito de lasers randômicos, foi proposta a obtenção de estruturas desordenadas através de dispositivos que delimitam as regiões ativas, formadas por um polímero de DNA-CTMA dopado com DCM, entre duas superfícies rugosas espalhadoras onde os centros espalhadores desordenados são posicionados. A principal diferença deste dispositivo para um laser aleatório convencional é que não há retroalimentação distribuída imposta dentro do material ativo, sendo que as regiões espalhadoras ficam dispostas nas extremidades da área de bombeio. Esta arquitetura nos permitiu detectar pela primeira vez na literatura, a mesma assinatura espectral de dois aglomerados espalhadores desordenados, devido a toda estrutura trabalhar como um único oscilador óptico, onde os aglomerados atuam como elementos de realimentação e acoplamento de saída.

Primeiramente esta nova configuração foi testada em três tipos de dispositivos diferentes: um onde os elementos espalhadores são nano-partículas de TiO_2 e outras duas onde os centros espalhadores são produzidos pela rugosidade na interface entre o meio ativo e o ar, sedo estas rugosidades produzidas por ablação a laser e corte com uma lâmina. O mesmo comportamento qualitativo é observado utilizando ambos espalhadores, com clara evidência de laser aleatório randômico de toda a estrutura, demonstrando a universalidade da arquitetura proposta com realimentação localizada espacialmente.

Experimentos adicionais foram realizados com as amostras sem partículas de TiO_2, devido ao simples processo de fabricação que necessita apenas da realização de rugosidade nas bordas do meio ativo polimérico. Nós observamos assinaturas coerentes e incoerentes da emissão laser, dependendo da geometria do feixe de bombeio. A transição de regime coerente para incoerente é observada com o aumento da largura da área de bombeio.

A fim de evitar a manipulação do formato do feixe de bombeio e simplificar todo o arranjo experimental, nós projetamos um dispositivo com geometria otimizada, obtendo um laser aleatório de área larga com dimensões de 2,6 mm × 0,65 mm. Modos frequentes com largura espectral FWHM = 0,3 nm foram detectados nas extremidades do dispositivo. Isto demonstra que todo o filme polimérico atua como um único oscilador aleatório com dimensões de muitas centenas de micrometros, sendo o maior laser aleatório coerente já reportado até esta data, e um promissor dispositivo para iluminação, displays e aplicações com formação de imagem.

Com relação a análise de frentes de onda difusas, foi desenvolvido um método para formar franjas de contorno com interferometria *speckle* e dois comprimentos de onda com um único laser de cavidade externa foi estudado teoricamente e demonstrado experimentalmente. O ECDL demonstrou-se de fácil operação, propiciando uma emissão laser estável e com uma fina modulação de frequências devido a grade de difração de alta frequência espacial usada no sistema de retro-injeção. Isso permitiu que o comprimento de onda sintético fosse continuamente ajustado de 60 μm a 8 mm. A operação deste interferômetro para diversos comprimentos de onda permite a medida de frentes de onda com diferentes sensibilidades e precisões.

Foi demonstrado que o interferograma, que descreve o padrão de franjas em função da coordenada da frente de onda, pode ser obtido diretamente com a transformada de Fourier ao quadrado do espectro da emissão do laser. Este resultado aponta que, com a medida da emissão do laser, pode-se obter diretamente o perfil do interferograma *V* deste espectro e com valores mais precisos das frequências resultantes, independente da resolução do espectrômetro utilizado.

7 BIBLIOGRAFIA

[1] D. S. Wiersma, “Disordered photonics,” *Nat. Photonics*, vol. 7, no. February, pp. 188–196, 2013.

[2] R. Ambartsumyan, N. Basov, P. Kryukov, and V. Letokhov, “A laser with a nonresonant feedback,” *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 2, no. 9, pp. 481–485, 1966.

[3] D. S. Wiersma, “The physics and applications of random lasers,” *Nat. Phys.*, vol. 4, no. 5, pp. 359–367, 2008.

[4] H. Cao, “Random lasers,” *Opt. Photonics News*, no. January, pp. 24–29, 2005.

[5] B. Redding, M. A. Choma, and H. Cao, “Spatial coherence of random laser emission,” pp. 1–3, 2011.

[6] B. Redding, M. a. Choma, and H. Cao, “Speckle-free laser imaging using random laser illumination,” *Nat. Photonics*, vol. 6, no. 6, pp. 355–359, 2012.

[7] M. A. Noginov, *Solid-State Random Lasers*. 2012.

[8] H. Cao, Y. G. Zhao, H. C. Ong, S. T. Ho, J. Y. Dai, J. Y. Wu, and R. P. H. Chang, “Ultraviolet lasing in resonators formed by scattering in semiconductor polycrystalline films,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 73, no. 25, pp. 3656–3658, 1998.

[9] N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, “Laser action in strongly scattering media,” *Nature*, vol. 368, no. 6470. pp. 436–438, 1994.

[10] H. Cao, J. Y. Xu, Y. Ling, A. L. Burin, E. W. Seeling, X. Liu, and R. P. H. Chang, “Random lasers with coherent feedback,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 9, no. 1, pp. 111–119, 2003.

[11] M. Leonetti, C. Conti, and C. López, “Dynamics of phase-locking random lasers,” *Phys. Rev. A*, vol. 88, no. 4, p. 43834, 2013.

[12] M. Leonetti, C. Conti, and C. Lopez, “The mode-locking transition of random lasers,” *Nat. Photonics*, vol. 5, no. 10, pp. 615–617, Sep. 2011.

[13] S. K. Turitsyn, S. a. Babin, D. V. Churkin, I. D. Vatnik, M. Nikulin, and E. V. Podivilov, “Random distributed feedback fibre lasers,” *Phys. Rep.*, vol. 542, no. 2, pp. 133–193, 2014.

[14] Q. Song, S. Xiao, Z. Xu, J. Liu, X. Sun, V. Drachev, V. M. Shalaev, O. Akkus, and Y. L. Kim, “Random lasing in bone tissue,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 9, pp. 1425–1427, 2010.

[15] G. Strangi, S. Ferjani, V. Barna, A. De Luca, C. Versace, N. Scaramuzza, and R. Bartolino, “Random lasing and weak localization of light in dye-doped nematic liquid crystals.,” *Opt. Express*, vol. 14, no. 17, pp. 7737–7744, 2006.

[16] L. Sznitko, J. Mysliwiec, and A. Miniewicz, “The role of polymers in random lasing,” *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.*, vol. 53, no. 14, pp. 951–974, 2015.

[17] R. M. Balachandran, D. P. Pacheco, and N. M. Lawandy, “Laser action in polymeric gain media containing scattering particles.,” *Appl. Opt.*, vol. 35, no. 4, pp. 640–3, 1996.

[18] a. Tulek, R. C. Polson, and Z. V. Vardeny, “Naturally occurring resonators in random lasing of π-conjugated polymer films,” *Nat. Phys.*, vol. 6, pp. 303–310,

2010.
[19] Z. Yu, W. Li, J. a Hagen, Y. Zhou, D. Klotzkin, J. G. Grote, and a J. Steckl, "Photoluminescence and lasing from deoxyribonucleic acid (DNA) thin films doped with sulforhodamine.," *Appl. Opt.*, vol. 46, no. 9, pp. 1507–13, 2007.
[20] L. Sznitko, J. Mysliwiec, P. Karpinski, K. Palewska, K. Parafiniuk, S. Bartkiewicz, I. Rau, F. Kajzar, and A. Miniewicz, "Biopolymer based system doped with nonlinear optical dye as a medium for amplified spontaneous emission and lasing," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 3, p. 31107, 2011.
[21] A. Camposeo, P. Del Carro, L. Persano, K. Cyprych, A. Szukalski, L. Sznitko, J. Mysliwiec, and D. Pisignano, "Physically transient photonics: random versus distributed feedback lasing based on nanoimprinted DNA.," *ACS Nano*, vol. 8, no. 10, pp. 10893–8, 2014.
[22] P. K. and V. S. L. R. V. Ambartsumyan, N. Basov, "Non-Resonant Feedback in Lasers."
[23] A. F. Fercher, H. Z. Hu, and U. Vry, "Rough surface interferometry with a two-wavelength heterodyne speckle interferometer," *Appl. Opt.*, vol. 24, no. 14, p. 2181, Jul. 1985.
[24] D. M. Silva, E. a Barbosa, and N. U. Wetter, "Simple and versatile heterodyne whole-field interferometer for phase optics characterization.," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 83, no. 10, p. 103103, Oct. 2012.
[25] E. a. Barbosa, D. M. Silva, C. E. Nascimento, F. L. Galvão, and J. C. R. Mittani, "Progressive power lens measurement by low coherence speckle interferometry," *Opt. Lasers Eng.*, vol. 51, no. 7, pp. 898–906, Jul. 2013.
[26] P. J. de Groot, "Extending the unambiguous range of two-color interferometers," *Appl. Opt.*, vol. 33, no. 25, pp. 5948–5953, 1994.
[27] J. C. Wyant, "Testing aspherics using two-wavelength holography : use of digital electronic techniques," *Appl. Opt.*, vol. 23, no. 24, pp. 4539–4543, 1984.
[28] K. Creath, "Step height measurement using two-wavelength phase-shifting interferometry," *Appl. Opt.*, vol. 26, no. 14, pp. 2810–2816, 1987.
[29] N. U. Wetter, "Tunable dual wavelength emission and bandwidth narrowing of a laser diode array with a simple external cavity," *Appl. Phys. B*, vol. 86, no. 3, pp. 515–518, Sep. 2006.
[30] M. Born and E. Wolf, "Principles of optics," *Principles of Optics Electromagnetic Theory of Propagation INterference and Diffraction of Light 2nd edition by Max Born Emil Wolf New York NY Pergamon Press 1964*. pp. 1–952, 1999.
[31] R. B. Miles, W. R. Lempert, and J. N. Forkey, "Laser rayleigh scattering," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 12, pp. R33–R51, 2001.
[32] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics," *American Journal of Physics*, vol. 67. p. 841, 1999.
[33] J. I. Dadap, H. B. De Aguiar, and S. Roke, "Nonlinear light scattering from clusters and single particles," *J. Chem. Phys.*, vol. 130, no. 21, 2009.
[34] A. Ishimaru, "Wave Propagation and Scattering in Random Media and Rough Surfaces," *Proc. IEEE*, vol. 79, no. 10, pp. 1359–1366, 1991.
[35] W. Hergert and T. Wriedt, "The Mie Theory," *Mie Theory Basics Appl.*, pp. 53–71, 2012.
[36] R. M. Drake, "Mie scattering," *Am. J. Phys.*, vol. 53, no. 10, p. 955, 1985.
[37] J. W. Goodman, "Statistical properties of laser speckle patterns," *Laser Speckle Relat. Phenom.*, vol. 6, pp. 9–75, 1975.
[38] Dainty J. C., "Laser speckle and related phenomena," *Top. Appl. Phys.*, vol. 9, p. 298, 1975.

[39] J. C. Dainty, *Laser speckle and related phenomena*, vol. 9. 1975.
[40] A. Papoulis, "Probability, Random Variables, and Stochastic Processes," *McGraw-Hill*, pp. 149–151, 1984.
[41] M. Nieto-Vesperinas and N. García, "Non-circular gaussian speckle contrast in the exact theory of multiple scattering of waves from random rough surfaces," *Opt. Commun.*, vol. 35, no. 1, pp. 25–30, 1980.
[42] E. Jakeman, "Speckle Statistics With A Small Number Of Scatterers," *Opt. Eng.*, vol. 23, no. 4, pp. 234453–234453, 1984.
[43] W. T. Welford, "First order statistics of speckle produced by weak scattering media," *Opt. Quantum Electron.*, vol. 7, no. 5, pp. 413–416.
[44] A. Z. Genack, "Optical Transmission in Disordered Media," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, no. 20, pp. 2043–2046, 1987.
[45] F. C. MacKintosh and S. John, "Coherent backscattering of light in the presence of time-reversal-noninvariant and parity-nonconserving media," *Phys. Rev. B*, vol. 37, no. 4, pp. 1884–1897, 1988.
[46] P. E. Wolf and G. Maret, "Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 55, no. 24, pp. 2696–2699, 1985.
[47] G. Labeyrie, F. de Tomasi, J.-C. Bernard, C. Müller, C. Miniatura, and R. Kaiser, "Coherent Backscattering of Light by Cold Atoms," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 83, pp. 5266–5269, 1999.
[48] P. W. Anderson, "Absence of diffusion in certain random lattices," *Phys. Rev.*, vol. 109, no. 5, pp. 1492–1505, 1958.
[49] E. Akkermans, P. E. Wolf, and R. Maynard, "Coherent backscattering of light by disordered media: Analysis of the peak line shape," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 56, no. 14, pp. 1471–1474, 1986.
[50] K. M. Yoo, Y. Takiguchi, and R. R. Alfano, "Dynamic effect of weak localization on the light scattering from random media using ultrafast laser technology.," *Appl. Opt.*, vol. 28, no. 12, pp. 2343–9, 1989.
[51] E. Akkermans, P. E. Wolf, R. Maynard, and G. Maret, "Theoretical study of the coherent backscattering of light by disordered media," *J. Phys.*, vol. 49, no. 1, pp. 77–98, 1988.
[52] F. Rüting, P. a. Huidobro, and F. J. García-Vidal, "Emergence of Anderson localization in plasmonic waveguides," *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 22, p. 4341, 2011.
[53] A. Lagendijk, A. Lagendijk, B. Van Tiggelen, B. Van Tiggelen, D. S. Wiersma, and D. S. Wiersma, "Fifty years of Anderson localization," *Phys. Today*, 2009.
[54] P. Sheng and B. van Tiggelen, "Introduction to Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena. Second edition," *Waves in Random and Complex Media*, vol. 17, no. 2, pp. 235–237, 2007.
[55] S. John, "Electromagnetic absorption in a disordered medium near a photon mobility edge," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 53, no. 22, pp. 2169–2172, 1984.
[56] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, and T. V. Ramakrishnan, "Scaling theory of localization: Absence of quantum diffusion in two dimensions," *Physical Review Letters*, vol. 42, no. 10. pp. 673–676, 1979.
[57] A. Szameit, Y. V. Kartashov, P. Zeil, F. Dreisow, M. Heinrich, R. Keil, S. Nolte, a Tünnermann, V. a Vysloukh, and L. Torner, "Wave localization at the boundary of disordered photonic lattices.," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 8, pp. 1172–4, 2010.
[58] T. Sperling, W. Bührer, C. M. Aegerter, and G. Maret, "Direct determination of the transition to localization of light in three dimensions," *Nat. Photonics*, vol. 7, no. 1, p. 15, 2012.
[59] A. F. Ioffe and A. R. Regel, "Non-crystalline, amorphous, and liquid electronic

semiconductors," *Prog. Semicond.*, vol. 4, pp. 237–291, 1960.
[60] M. Segev, Y. Silberberg, and D. N. Christodoulides, "Anderson localization of light," *Nat. Photonics*, vol. 7, no. February, pp. 197–204, 2013.
[61] D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini, "Localization of light in a disordered medium," *Nature*, vol. 390, no. 6661, pp. 671–673, 1997.
[62] Gomez Rivas J, R. Sprik, a Lagendijk, L. Noordam, and C. Rella, "Midinfrared scattering and absorption in Ge powder close to the anderson localization transition," *Phys. Rev. E. Stat. Phys. Plasmas. Fluids. Relat. Interdiscip. Topics*, vol. 62, no. 4 Pt A, pp. R4540–3, 2000.
[63] M. Thijssen, R. Sprik, J. Wijnhoven, M. Megens, T. Narayanan, A. Lagendijk, and W. Vos, "Inhibited Light Propagation and Broadband Reflection in Photonic Air-Sphere Crystals," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 83, no. 14, pp. 2730–2733, 1999.
[64] W. T. Silfvast, "Laser Fundamentals," *American Journal of Physics*, vol. 65, no. 9. p. 932, 1997.
[65] L. J. Cox, *Solid-State Laser Engineering*, vol. 24, no. 9. 1977.
[66] C. Gouedard, D. Husson, C. Sauteret, F. Auzel, and A. Migus, "Generation of spatially incoherent short pulses in laser-pumped neodymium stoichiometric crystals and powders," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 10, no. 12. p. 2358, 1993.
[67] G. van Soest, M. Tomita, and A. Lagendijk, "Amplifying volume in scattering media.," *Opt. Lett.*, vol. 24, no. 5, pp. 306–308, 1999.
[68] W. L. Sha, C. H. Liu, and R. R. Alfano, "Spectral and temporal measurements of laser action of Rhodamine 640 dye in strongly scattering media.," *Opt. Lett.*, vol. 19, no. 23, pp. 1922–1924, 1994.
[69] S. Letokhov, "Generation of light by a scattering medium with negative resonance.," *Sov. Phys. JETP*, vol. 26, no. 4, pp. 835–840, 1968.
[70] J. L. Muñoz-Cobo, R. B. Perez, T. E. Valentine, Y. Rugama, and J. T. Mihalczo, "Stochastic transport theory of neutron and photon coupled fields: neutron and photon counting statistics in nuclear assemblies," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 27, no. 12, pp. 1087–1114, 2000.
[71] V. M. Markushev, V. F. Zolin, and C. M. Briskina, "Luminescence and stimulated emission of neodymium in sodium lanthanum molybdate powders," *Sov. J. Quantum Electron.*, vol. 16, no. 2, pp. 281–283, 1986.
[72] B. R. Prasad, H. Ramachandran, a K. Sood, C. K. Subramanian, and N. Kumar, "Lasing in active, sub-mean-free path-sized systems with dense, random, weak scatterers.," *Appl. Opt.*, vol. 36, no. 30, pp. 7718–24, 1997.
[73] S. Mujumdar and H. Ramachandran, "Spectral features in emissions from random amplifying media," *Opt. Commun.*, vol. 176, no. 1–3, pp. 31–41, Mar. 2000.
[74] A. Y. Zyuzin, "Transmission fluctuations and spectral rigidity of lasing states in a random amplifying medium," *Phys. Rev. E*, vol. 51, no. 6, pp. 5274–5278, Jun. 1995.
[75] A. Consoli and C. López, "Decoupling gain and feedback in coherent random lasers: experiments and simulations.," *Sci. Rep.*, vol. 5, p. 16848, 2015.
[76] S. Frolov, Z. Vardeny, K. Yoshino, A. Zakhidov, and R. Baughman, "Stimulated emission in high-gain organic media," *Physical Review B*, vol. 59, no. 8. pp. R5284–R5287, 1999.
[77] H. Cao, Y. Zhao, S. Ho, E. Seelig, Q. Wang, and R. Chang, "Random Laser Action in Semiconductor Powder," *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 11. pp. 2278–2281, 1999.
[78] H. Cao, J. Xu, S.-H. Chang, and S. T. Ho, "Transition from amplified spontaneous

emission to laser action in strongly scattering media," *Phys. Rev. E*, vol. 61, no. 2, pp. 1985–1989, 2000.
[79] J. Andreasen, A. A. Asatryan, L. C. Botten, M. A. Byrne, H. Cao, L. Ge, L. Labonté, P. Sebbah, A. D. Stone, H. E. Türeci, and C. Vanneste, "Modes of random lasers," *Adv. Opt. Photonics*, vol. 3, no. 1, p. 88, 2011.
[80] H. E. Türeci, L. Ge, S. Rotter, and A. D. Stone, "Strong interactions in multimode random lasers.," *Science*, vol. 320, no. 5876, pp. 643–6, 2008.
[81] M. Leonetti and C. López, "Active subnanometer spectral control of a random laser," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 7, 2013.
[82] T. Hisch, M. Liertzer, D. Pogany, F. Mintert, and S. Rotter, "Pump-controlled directional light emission from random lasers," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 111, no. 2, 2013.
[83] F. Hide, B. J. Schwartz, M. a. Díaz-García, and A. J. Heeger, "Conjugated polymers as solid-state laser materials," *Synth. Met.*, vol. 91, no. 1–3, pp. 35–40, 1997.
[84] J. D. Watson and F. H. C. Crick, "Molecular structure of nucleic aids: A structure for deoxyribose nucleic acid," *Nature*, vol. 171, no. 4356. pp. 737–738, 1953.
[85] N. C. Seeman, "DNA in a material world.," *Nature*, vol. 421, no. 6921, pp. 427–431, 2003.
[86] Y.-W. Kwon, C. H. Lee, D.-H. Choi, and J.-I. Jin, "Materials science of DNA," *J. Mater. Chem.*, vol. 19, no. 10, p. 1353, 2009.
[87] E. Hebda, M. Jancia, F. Kajzar, J. Niziol, J. Pielichowski, I. Rau, and A. Tane, "Optical Properties of Thin Films of DNA-CTMA and DNA-CTMA Doped with Nile Blue," *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, vol. 556, no. 1, pp. 309–316, 2012.
[88] G. J. Zhang, L. Wang, J. Yoshida, and N. Ogata, "Optical and optoelectronic materials derived from biopolymer, deoxyribonucleic acid (DNA)," in *APOC 2001: ASIA-PACIFIC OPTICAL AND WIRELESS COMMUNICATIONS: OPTOELECTRONICS, MATERIALS, AND DEVICES FOR COMMUNICATIONS*, 2001, vol. 4580, pp. 337–346.
[89] T. H. LaBean and H. Li, "Constructing novel materials with DNA," *Nano Today*, vol. 2, no. 2, pp. 26–35, 2007.
[90] R. Ghirlando, E. J. Wachtel, T. Arad, and a Minsky, "DNA packaging induced by micellar aggregates: a novel in vitro DNA condensation system.," *Biochemistry*, vol. 31, no. 31, pp. 7110–9, 1992.
[91] W. Long, W. Zou, X. Li, and J. Chen, "DNA optical nanofibers: preparation and characterization," *Opt. Express*, vol. 20, no. 16, pp. 18188–18193, 2012.
[92] H.-W. Fink, H. Schmid, E. Ermantraut, and T. Schulz, "Electron holography of individual DNA molecules," *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 4, 1997.
[93] P. Dutta and S. K. Mandal, "Charge transport in chemically synthesized, DNA-doped polypyrrole," *J. Phys. D (Applied Physics)*, vol. 37, no. 20, pp. 2908–2913, 2004.
[94] J. Yoshida, H. Takano, S. Narisawa, S. Takenaka, N. Nakai, M. Fukuda, and N. Ogata, "Thin film dye lasers based on DNA-lipid complex materials," 2007, vol. 6646, p. 664608.
[95] C. Hyun Kim, O. Yaghmazadeh, Y. Bonnassieux, and G. Horowitz, "Modeling the low-voltage regime of organic diodes: Origin of the ideality factor," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 9, 2011.
[96] P. P. Sorokin and J. R. Lankard, "Stimulated Emission Observed from an Organic Dye, Chloro-aluminum Phthalocyanine," *IBM J. Res. Dev.*, vol. 10, no. 2, pp. 162–163, 1966.
[97] M. Leonetti, R. Sapienza, M. Ibisate, C. Conti, and C. López, "Optical gain in DNA-

DCM for lasing in photonic materials.," *Opt. Lett.*, vol. 34, pp. 3764–3766, 2009.
[98] D. B. Hall, P. Underhill, and J. M. Torkelson, "Spin Coating of Thin and Ultrathin Polymer Films," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 38, no. 12, pp. 2039–2045, 1998.
[99] L. Cerdán, A. Costela, and I. García-Moreno, "Variable Stripe Length method for optical gain measurements: Characteristic lengths," *Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO EUROPE/EQEC), 2011 Conference on and 12th European Quantum Electronics Conference*. p. 1, 2011.
[100] a Costela, O. García, L. Cerdán, I. García-Moreno, and R. Sastre, "Amplified spontaneous emission and optical gain measurements from pyrromethene 567--doped polymer waveguides and quasi-waveguides.," *Opt. Express*, vol. 16, no. 10, pp. 7023–7036, 2008.
[101] K. L. Shaklee, "Direct Determination of Optical Gain in Semiconductor Crystals," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 18, no. 11, p. 475, 1971.
[102] L. W. Casperson and A. Yarint, "Spectral narrowing in High-Gain Lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 8, no. 2, pp. 80–85, 1972.
[103] S. Series and O. Sciences, *Organic Solid- State Lasers*. .
[104] L. Dal Negro, P. Bettotti, M. Cazzanelli, D. Pacifici, and L. Pavesi, "Applicability conditions and experimental analysis of the variable stripe length method for gain measurements," *Opt. Commun.*, vol. 229, no. 1–6, pp. 337–348, 2004.
[105] M. Leonetti, C. Conti, and C. López, "Random laser tailored by directional stimulated emission," *Phys. Rev. A*, vol. 85, no. 4, p. 043841, Apr. 2012.
[106] R. Dändlker and P. Jacquot, "Holographic Interferometry and Speckle Methods," *Sensors Set*, pp. 589–628, 2008.
[107] J. N. Butters and J. a. Leendertz, "Speckle pattern and holographic techniques in engineering metrology," *Opt. Laser Technol.*, vol. 3, no. 1, pp. 26–30, Feb. 1971.
[108] J. a Leendertz, "Interferometric displacement measurement on scattering surfaces utilizing speckle effect," *J. Phys. E.*, vol. 3, no. 3, pp. 214–218, 2002.
[109] J. a Stone, a Stejskal, and L. Howard, "Absolute interferometry with a 670-nm external cavity diode laser.," *Appl. Opt.*, vol. 38, no. 28, pp. 5981–94, Oct. 1999.
[110] J. Gass, a. Dakoff, and M. K. Kim, "Phase imaging without 2π ambiguity by multiwavelength digital holography," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 13, p. 1141, Jul. 2003.
[111] E. Hack, B. Frei, R. Ka, and U. Sennhauser, "Additive-subtractive two-wavelength ESPI contouring by using a synthetic wavelength phase shift," *Appl. Opt.*, vol. 37, no. 13, pp. 2591–2597, 1998.
[112] E. a Barbosa and A. C. L. Lino, "Multiwavelength electronic speckle pattern interferometry for surface shape measurement.," *Appl. Opt.*, vol. 46, no. 14, pp. 2624–31, May 2007.
[113] A. Yariv, "Quantum electronics," *Science*. 1988.
[114] S. W. Smith, "Fourier Transform Properties," *Sci. Eng. Guid. to Digit. Signal Process.*, pp. 185–208, 1997.
[115] A. Takamizawa, G. Yonezawa, H. Kosaka, and K. Edamatsu, "Littrow-type external-cavity diode laser with a triangular prism for suppression of the lateral shift of output beam," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 77, no. 4, 2006.
[116] M. G. Littman and H. J. Metcalf, "Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander," *Appl. Opt.*, vol. 17, no. 14, pp. 2224–2227, 1978.
[117] C. J. Hawthorn, K. P. Weber, and R. E. Scholten, "Littrow configuration tunable external cavity diode laser with fixed direction output beam," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 72, no. 12, pp. 4477–4479, 2001.
[118] L. A. Coldren, G. A. Fish, Y. Akulova, J. S. Barton, L. Johansson, and C. W. Coldren, "Tunable Semiconductor Lasers : A Tutorial," vol. 22, no. 1, 2004.

[119] L. A. Coldren and T. L. Koch, “External-Cavity Laser Design,” *J. Light. Technol.*, vol. 2, no. 6, pp. 1045–1051, 1984.
[120] L. C. Archundia-Berra and P. J. Delfyett, “External cavity multiwavelength semiconductor mode-locked lasers gain dynamics.,” *Opt. Express*, vol. 14, no. 20, pp. 9223–37, 2006.
[121] M. Matus, M. Kolesik, J. V Moloney, M. Hofmann, and S. W. Koch, “Dynamics of two-color laser systems with spectrally filtered feedback,” vol. 21, no. 10, pp. 1758–1771, 2004.
[122] S. Hoffmann, M. Hofmann, E. Bründermann, M. Havenith, M. Matus, J. V. Moloney, a. S. Moskalenko, M. Kira, S. W. Koch, S. Saito, and K. Sakai, “Four-wave mixing and direct terahertz emission with two-color semiconductor lasers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, no. 18, p. 3585, 2004.
[123] K. S. Repasky, A. R. Nehrir, J. T. Hawthorne, G. W. Switzer, and J. L. Carlsten, “Extending the continuous tuning range of an external-cavity diode laser.,” *Appl. Opt.*, vol. 45, no. 35, pp. 9013–9020, 2006.
[124] W. . Chow and S. W. Koch, *Semiconductor-Laser Fundamentals*. 1999.
[125] J.-F. Lepage and N. McCarthy, “Analysis of dual-wavelength oscillation in a broad-area diode laser operated with an external cavity.,” *Appl. Opt.*, vol. 41, no. 21, pp. 4347–55, Jul. 2002.
[126] N. Yu, M. Kats, C. Pflügl, M. Geiser, Q. J. Wang, M. a. Belkin, F. Capasso, M. Fischer, A. Wittmann, J. Faist, T. Edamura, S. Furuta, M. Yamanishi, and H. Kan, “Multi-beam multi-wavelength semiconductor lasers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, no. 16, p. 161108, 2009.
[127] M. W. Fleming and A. Mooradian, “Fundamental line broadening of single-mode (GaAl)As diode lasers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 38, no. 7, pp. 511–513, 1981.
[128] M. C. Schu and A. C. Reilly, “External Cavity Diode Lasers : Controlling Laser Output via Optical Feedback,” no. April, 2003.
[129] R. Jin, D. Boggavarapu, G. Khitrova, H. M. Gibbs, Y. Z. Hu, S. W. Koch, and N. Peyghambarian, “Linewidth broadening factor of a microcavity semiconductor laser,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 61, no. 16, pp. 1883–1885, 1992.
[130] E. A. Barbosa, “Positioning and localization of two-wavelength interferograms for wavefront reconstruction with volume holographic media,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 9, pp. 8743–8758, 2010.