



INSTITUTO POLITECNICO NACIONAL

Unidad Profesional Interdisciplinaria de Ingeniería y
Tecnologías Avanzadas

Sección de Estudios de Posgrado e Investigación

**“Correlaciones espectrales del patrón de
Speckles y su aplicación en la determinación
de parámetros ópticos de medios fotónicos
amorfos”**

Que para obtener el grado de:

Maestría en Tecnología Avanzada

PRESENTA:

Damián Jacinto Méndez

No. de Registro: B081218

Director de Tesis: Dra. Lilia Martínez Pérez¹

Codirector: Dr. Luis F. Rojas Ochoa²

10 de Diciembre de 2010

¹IPN – UPIITA

²CINVESTAV Departamento de Física

INSTITUTO POLITECNICO NACIONAL
SECRETARIA DE INVESTIGACIÓN Y POSGRADO

CARTA DE SESION DE DERECHOS

En la Ciudad de México el día 12 del mes de Diciembre del año 2010, el que suscribe **Damián Jacinto Méndez** alumno del programa de Maestría en Tecnología Avanzada con número de registro B081218, adscrito a la Unidad Profesional Interdisciplinaria en Ingeniería Y Tecnología Avanzadas, manifiesta que es autor intelectual del presente trabajo de tesis bajo la dirección de la **Dra. Lilia Martínez Pérez** y codirección del **Dr. Luis F. Rojas Ochoa** y cede los derechos del trabajo intitulado **Correlaciones espectrales del patrón de Speckles y su aplicación en la determinación de parametros ópticos de medios fotonicos amorfos**, al Instituto Politecnico Nacional para su difusión con fines académicos y de investigación.

Los usuarios de la información no deben reproducir el contenido textual, gráficas o datos del trabajo sin el permiso del autor y/o director del trabajo. Este puede ser obtenido escribiendo a la siguiente dirección central.sound@hotmail.com . Si el permiso se otorga, el usuario deberá dar el agradecimiento correspondiente y citar la fuente del mismo.



Damián Jacinto Méndez



INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL
SECRETARÍA DE INVESTIGACIÓN Y POSGRADO

**ACTA DE REGISTRO DE TEMA DE TESIS
 Y DESIGNACIÓN DE DIRECTORES DE TESIS**

México, D.F. a 11 de noviembre del 2010

El Colegio de Profesores de Estudios de Posgrado e Investigación de UPIITA en su sesión ordinaria No. 9 celebrada el día 18 del mes de noviembre conoció la solicitud presentada por el(la) alumno(a):

Jacinto	Méndez	Damián
Apellido paterno	Apellido materno	Nombre (s)
Con registro: B 0 8 1 2 1 8		

Aspirante de:

1.- Se designa al aspirante el tema de tesis titulado:
Correlaciones espectrales del patrón de Speckles y su aplicación en la determinación de parámetros ópticos de medios fotonicos amorfos

De manera general el tema abarcará los siguientes aspectos:

- 1)Desarrollo de técnicas experimentales para el estudio de las propiedades estadísticas y de transporte de las ondas electromagnéticas dispersadas por redes fotonicas desordenadas.
- 2)Elaboración de modelos teóricos y simulaciones numéricas para los resultados que se obtendrán en el punto anterior.

2.- Se designan como Directores de Tesis a los Profesores:

Director de tesis Dra. Lilia Martínez Pérez Codirector de tesis Dr. Luis Fernando Rojas Ochoa

3.- El trabajo de investigación base para el desarrollo de la tesina será elaborado por el alumno en:
Departamento de Física del Centro de Investigación y de Estudios Avanzados del I.P.N.

que cuenta con los recursos e infraestructura necesarios.

4.- El interesado deberá asistir a los seminarios desarrollados en el área de adscripción del trabajo desde la fecha en que se suscribe la presente hasta la aceptación de la tesis por la Comisión Revisora correspondiente:

Dra. Lilia Martínez Pérez

Aspirante

Damián Jacinto Méndez

Directores de Tesis

Dr. Luis Fernando Rojas Ochoa

Presidente del Colegio

M. en C. Griselda Sánchez Otero S. E. P.



ESTADOS UNIDOS MEXICANOS
 INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL
 UNIDAD PROFESIONAL INTERDISCIPLINARIA
 EN INGENIERÍA Y TECNOLOGÍAS AVANZADAS,
 SECCIÓN DE ESTUDIOS DE
 POSGRADO E INVESTIGACIÓN



INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL
SECRETARÍA DE INVESTIGACIÓN Y POSGRADO

ACTA DE REVISIÓN DE TESIS

En la Ciudad de México, D.F. siendo las 10:02 horas del día 10 del mes de diciembre del 2010 se reunieron los miembros de la Comisión Revisora de Tesis, designada por el Colegio de Profesores de Estudios de Posgrado e Investigación de La UPIITA para examinar la tesis titulada:

Correlaciones Espectrales del patrón de Speckles y su aplicación en la Determinación de Parámetros ópticos de medios fotónicos amorfos

Presentada por el alumno:

JACINTO
Apellido paterno

MÉNDEZ
Apellido materno

DAMIÁN
Nombre(s)

Con registro:

B	0	8	1	2	1	8
---	---	---	---	---	---	---

aspirante de:

MAESTRÍA EN TECNOLOGÍA AVANZADA

Después de intercambiar opiniones, los miembros de la Comisión manifestaron **APROBAR LA DEFENSA DE LA TESIS**, en virtud de que satisface los requisitos señalados por las disposiciones reglamentarias vigentes.

LA COMISIÓN REVISORA

Director(a) de tesis

DRA. LILIA MARTÍNEZ PÉREZ
1er VOCAL

DR. PRIMO ALBERTO CALVA CHAVARRÍA
PRESIDENTE

DRA. JANNA DOUDA
SECRETARIO

DR. LUIS FERNANDO ROJAS OCHOA
2º VOCAL

DRA. SARA GUADALUPE CRUZ Y CRUZ
3er VOCAL

PRESIDENTE DEL COLEGIO DE PROFESORES
S. E. P.

M. EN C. GRISELDA SÁNCHEZ ÓTERO

INSTITUTO POLITÉCNICO NACIONAL
UNIDAD PROFESIONAL INTERDISCIPLINARIA
EN INGENIERÍA Y TECNOLOGÍAS AVANZADAS
SECCIÓN DE ESTUDIOS DE
POSGRADO E INVESTIGACIÓN

CONTENIDO

Resumen	xi
Abstract	xiii
Glosario de símbolos y términos	xv
1 Introducción	1
2 Dispersión de luz	5
2.1 Dispersión simple	5
2.2 Dispersión cuasielástica “QLS”	7
2.2.1 Dispersión dinámica	7
2.2.2 Función de autocorrelacion temporal de la intensidad y movimiento de particulas en suspensión	7
2.2.3 Teoría basica sobre DLS	8
2.3 Dispersión múltiple	9
2.4 Espectroscopia de onda difusa	10
2.4.1 Función de correlación para dispersión de luz múltiple .	11
3 Respuesta temporal de un medio aleatorio	15
3.1 Campo dispersado por un medio aleatorio	15
3.2 Estadística del campo dispersado	17
3.3 Correlaciones en frecuencia del campo dispersado	19
3.4 Respuesta temporal de la intensidad	20
3.5 Teoría biespectral	23
3.6 Reconstrucción de la respuesta temporal	24

4	Calibración experimental	27
4.1	Patrones de ‘Speckle’medidos	27
4.2	Correlaciones en frecuencia medidas	30
4.3	Bifase espectral	32
4.4	Reconstrucción de la respuesta temporal	34
4.5	Modelo difusivo para el transporte de la luz	36
5	Materiales fotonicos amorfos	41
5.1	Películas delgadas de TiO_2	41
5.2	Autocorrelación espacial	44
5.3	Correlación de segundo orden medida	46
5.4	Correlación de tercer orden medida	48
5.5	Bifase espectral	50
5.6	Magnitud y fase de <i>Fourier</i>	52
5.7	Respuesta temporal reconstruida	56
5.8	Respuesta temporal y densidad óptica	58
6	Conclusiones y perspectivas	61
A	Estadística de los campos	63
A.1	Estadística Gaussiana conjunta	63
A.2	Estadística circular compleja Gaussiana	65
B	Téoria biespectral	69
B.1	Recuperación de señales a partir del Biespectro	69
B.2	Reconstrucción iterativa de la fase de <i>Fourier</i>	71
C	Captura y análisis	75
C.1	Software de captura	75
C.2	Software de análisis	78

ÍNDICE DE FIGURAS

2.1	Dispersión por una partícula	6
2.2	Geometría de transmisión	11
4.1	Montaje experimental	28
4.2	Speckles e Histograma	30
4.3	Correlación de segundo orden	31
4.4	Correlación de tercer orden	32
4.5	Bifase espectral	33
4.6	Fase de Fourier	33
4.7	Respuesta temporal	35
4.8	Desplazamiento en el tiempo	36
4.9	Solución por difusión	38
4.10	Pulso ajustado	39
4.11	Ajuste correlación de segundo orden	40
5.1	Sedimentación sobre un sustrato de vidrio	42
5.2	Imagen de SEM de partículas de TiO_2 sedimentadas.	43
5.3	Imagen de SEM de partículas de TiO_2 en corte transversal.	43
5.4	Autocorrección espacial.	45
5.5	Correlaciones de segundo en TiO_2 en escala lineal.	46
5.6	Correlaciones de segundo en TiO_2 en escala logarítmica.	47
5.7	Correlación de tercer orden en TiO_2 para la muestra de $43 \mu m$	48
5.8	Correlaciones de tercer orden en TiO_2	49
5.9	Bifase espectral.	50
5.10	Bifases para bloques de TiO_2	51
5.11	Magnitud de <i>Fourier</i>	52
5.12	Fase de <i>Fourier</i>	53
5.13	Respuesta temporal en bloque de $86 \mu m$	54

5.14	Ajuste de la respuesta temporal en bloque de $86\mu\text{m}$	55
5.15	Comparación de la respuesta temporal reconstruida con el modelo de difusión.	56
5.16	Densidad optica y propagación de pulsos.	58
C.1	Software de adquisición de imagenes.	76
C.2	Esquema de un correlador de segundo orden.	82

Resumen

En este trabajo se presentan resultados sobre la caracterización óptica de medios fotónicos amorfos utilizando una novedosa metodología experimental. Concretamente, esta metodología consiste en la reconstrucción de la respuesta temporal de la luz dispersada por sistemas opacos ante una perturbación óptica instantánea mediante el uso de funciones de correlación en corrimientos de frecuencia para la intensidad detectada. El arreglo experimental consta de una fuente de luz coherente (láser) de frecuencia variable, la cual se hace incidir sobre la muestra de interés. Una vez que la luz es dispersada por el material, un arreglo óptico realiza la imagen del patrón de *Speckles* resultante sobre un sensor CCD colocado en geometría de transmisión en el campo lejano.

Haciendo uso de las propiedades estadísticas del patrón de *Speckles*, constituido por la luz dispersada, se puede obtener información de la magnitud de Fourier de la respuesta temporal mediante el cálculo de la función de correlación espectral de segundo orden para la intensidad detectada. Adicionalmente, el cálculo de la función de correlación espectral de tercer orden de la intensidad nos permite hacer uso de una técnica de reconstrucción Biespectral que relaciona a las funciones de correlación de segundo y tercer orden con la fase de Fourier de la respuesta temporal del medio.

La calibración de nuestra técnica la llevamos a cabo comparando la respuesta temporal obtenida en bloques de Teflón, material ampliamente caracterizado, con predicciones teóricas del modelo de transporte difusivo para fotones en medios opacos. De este análisis se obtiene un excelente acuerdo entre experimentos y teoría, donde el valor determinado del parámetro característico que describe a este tipo de procesos; coeficiente de difusión de la luz, corresponde muy bien con valores ya reportados en la bibliografía.

Finalmente, aplicamos la metodología descrita a películas delgadas de diferentes espesores; donde estas películas están constituidas por auto ensamblados en aire de partículas esféricas de TiO_2 de aproximadamente 850 nm de diámetro. Analizando el grado de esparcimiento de la respuesta temporal del medio en función del espesor de la muestra, pudimos estimar la densidad óptica intrínseca del material. De esta manera, es posible caracterizar las propiedades ópticas más importantes de este tipo de sistemas en un solo experimento, tales como la turbidez y/o coeficiente de difusión de los fotones en el medio, así como la longitud característica de absorción, lo cual abre una nueva posibilidad para el estudio y caracterización óptica de este tipo de materiales mediante arreglos experimentales compactos y económicamente accesibles.

Abstract

In this work we present experimental characterization of random photonic media by using a novel experimental methodology. In specific we reconstruct the temporal response of a turbid medium by means of frequency intensity correlations. The experimental set up consist of a coherent tuneable light source which is focused on the sample of interest. Once the light has been scattered by the material, an optic arrange images the Speckle pattern in the far field over a CCD camera in transmission geometry.

The statistical properties of the Speckle pattern of the scattered light, allow us to obtain information about the Fourier magnitude of the temporal response by calculating second order intensity frequency correlation function. Additionally, third order intensity frequency correlation function allow us to reconstruct the Fourier phase by means of Biespectral techniques.

The experimental gauge was done by reconstructing the temporal response of a Teflon slab and comparing with the theoretical expected pulse shape in the diffusive photon transport regime for turbid media. Both results, experiment and theory show good agreement. Here we have determined the diffusion coefficient as a parameter that describes the physical process, in good agreement with values in literature for this material.

Finally we apply the methodology described as before to thin films of TiO_2 . Where the thin films are constituted by auto assembled spherical particles of aprox. 850nm of diameter. Then we show the explicit relationship of the temporal response and its dependence over the sample thickness. This results allow us to characterize most important optical properties of this material in one experiment, properties like: turbidity, transport, mean free path diffusion coefficient and characteristic absortion length.

Which opens a new possibility for the study and optical characterization of optically thick random media by compact and economically viable experimental set ups.

Glosario de símbolos y términos

$\langle \Delta R(\tau)^2 \rangle$	Desplazamiento cuadrático medio.
A_k	Amplitud aleatoria.
<i>c.c.</i>	complejo conjugado.
D_l	Coefficiente de difusión de la luz.
D_s	Coefficiente de difusión de una partícula.
f	Fuerza de fricción.
Φ	Flujo de fotones.
φ_k	Fase aleatoria.
η_I	Media de la intensidad de ruido.
μ_I	Media de la intensidad en el patrón de <i>Speckles</i> .
F_s	Factor de estructura dinámico.
Γ	Inverso del tiempo de relajación.
g_1	Función de autocorrelación en el campo.
g_2	Función de autocorrelación en la intensidad.
G_s	Función de autocorrelación de Van Hove.
I	Intensidad dispersada.
I_m	Intensidad medida.

I_t	Intensidad del patrón de <i>Speckles</i> .
I_η	Intensidad del ruido.
\tilde{I}	Intensidad normalizada.
J_1	Función de Bessel de primer orden del primer tipo.
k	Constante de Boltzman.
λ	Longitud de onda.
L	Espesor de una película.
M	Magnificación en un filtro espacial.
\vec{k}_i	Vector de onda incidente.
\vec{k}_s	Vector de onda dispersado.
k_0	Magnitud del vector de onda.
ℓ^*	Distancia libre promedio de transporte.
g	promedio del coseno del ángulo de dispersión.
μ_a	Coefficiente de absorción.
μ_s	Coefficiente de dispersión.
η	Número de densidad local
T	Temperatura absoluta.
ψ	Bifase espectral.
P_{xy}	Probabilidad conjunta.
$P(\nu)$	Transformada de Fourier de $p(t)$.
P_{I_η}	Distribución de intensidades de ruido.
P_{I_t}	Distribución de intensidades del patrón de <i>Speckles</i> .
$p(t)$	Distribución de tiempos de vuelo.

\vec{q}	Vector de dispersión.
ρ	Densidad.
R_H	Radio hidrodinámico.
R_I	Autocorrelación espacial.
T	Luz transmitida por unidad de área.
ν	Frecuencia.
v	Velocidad efectiva.
ω	Frecuencia angular.

CBS del inglés Coherent Back Scattering, se refiere al fenómeno de cono de retrodispersión coherente.

CCD del inglés Charged Coupled Device, dispositivo transductor para detectar luz.

DLS del inglés Dynamic Light Scattering, proceso de dispersión de luz.

DWS del inglés Difusive Wave Spectroscopy, técnicas para interpretar luz difusa.

LASER del inglés Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, fenómeno usado para la producción de luz coherente.

QLS del inglés Quasielastic Light Scattering, proceso de dispersión de luz donde se considera que la absorción es muy cercana a cero.

Speckle Patrón de interferencia de luz coherente.

SEM del inglés Scanning Electron Microscopy, tipo de microscopía por barrido de electrones.

TIFF del inglés Tagged Image File Format, tipo estandarizado de imagen digital.

CAPÍTULO 1

Introducción

El transporte de la luz en medios ópticamente densos es un tema de investigación básica actual ya que este tipo de sistemas son ubicuos en la naturaleza, por ejemplo la leche, las nubes, el tejido humano, solo por mencionar algunos. Por otro lado, en la industria también existe un gran interés por entender la propagación de la luz en este tipo de materiales debido a que los cambios en las propiedades físico químicas de muchos de ellos se reflejan, regularmente, en variaciones de la opacidad de estos sistemas, donde los ejemplos van desde la elaboración de productos lácteos, estabilidad de emulsiones y pinturas, hasta la síntesis de fármacos. Estos materiales se denominan ópticamente densos en virtud de que a frecuencias ópticas lucen blancos o turbios, esto es debido a los procesos de dispersión múltiple de la luz que se llevan a cabo en su interior. Si la luz es dispersada más de una vez antes de escapar del medio, esta pierde rápidamente la memoria de la dirección de incidencia haciendo que la interpretación del transporte de la luz en el medio no sea trivial. En este tipo de medios se presentan diversos fenómenos relacionados con la pérdida de coherencia e interferencia de las ondas electromagnéticas como consecuencia de los múltiples eventos de dispersión que estas experimentan al propagarse en el medio.

El problema del transporte de la luz en medios opacos, ha sido ampliamente estudiado desde el punto de vista clásico[1] considerando a la propagación de fotones como un proceso aleatorio, a este modelo se le conoce como aproximación difusiva. Si consideramos que un fotón sigue una trayectoria balística antes de entrar a un medio donde hay una gran cantidad de obstáculos, cada fotón experimentará un cambio de dirección después de cada choque con

algún obstáculo en el medio por el que viaja, así, después de una determinada cantidad de choques este fotón encontrará su camino fuera del medio. Al camino que el fotón ha seguido a través del medio se le conoce como *camino aleatorio* y al tiempo que le toma a un fotón recorrer este camino aleatorio se le conoce como *tiempo de vuelo*. A la distribución de los tiempos de vuelo sobre todos los posibles caminos aleatorios que un fotón pueda seguir en el medio, se le da el nombre de *respuesta temporal*. Así, cuando uno trata al transporte de la luz por medio de una ecuación de difusión es posible obtener como solución a una función que representa a la distribución de los tiempos de vuelo en el medio, esto es, la respuesta temporal de dicho medio ante una perturbación instantánea.

Aunque la aproximación difusiva ofrece una herramienta de exploración en medios ópticamente densos, esta no considera los efectos de la interferencia de las ondas electromagnéticas dentro del medio[2], por que se asume que las fases de todos los fotones son completamente aleatorias, de tal forma que solo se considera a la intensidad de la luz en la descripción del proceso. Cuando se usa una fuente de iluminación coherente se presentan fenómenos relacionados a la interferencia de las ondas electromagnéticas, ejemplos de estos fenómenos son el llamado patrón de *Speckles* y el cono de retrodispersión coherente. El patrón de *Speckles* no puede ser explicado en términos de un proceso difusivo para la propagación de la luz, en cambio es muy bien explicado por la superposición de las ondas que recorren los posibles caminos aleatorios en el medio[3]. Desde este punto de vista, la intensidad en un punto del patrón de *Speckles* es el resultado de la superposición aleatoria de las ondas dispersadas por todos los posibles caminos en el medio por el que la luz viaja. Estos hechos, han traído cambios en la forma de analizar el transporte de la luz en el régimen de dispersión múltiple, en el cual los cambios de fase juegan un papel fundamental.

Por otro lado, las propiedades estadísticas del patrón de *Speckles* proporcionan información importante acerca de las características dispersoras del medio, así como de la fuente de iluminación [4, 5, 6]. Para obtener la información presente en el patrón de *Speckles*, uno tiene que recurrir al análisis de las funciones de autocorrelación de la intensidad detectada en diferentes tiempos, frecuencias, ángulos o posiciones[7]. Trabajos previos han demostrado que se puede caracterizar un medio ópticamente denso midiendo las correlaciones en intensidad del patrón de *Speckles*, dichos trabajos se han enfocado

en el cálculo de funciones de correlación de segundo orden en corrimientos de frecuencia[8, 9, 10]. Esta Tesis, se enfoca en el uso de correlaciones en corrimientos de frecuencia de segundo y de tercer orden para estudiar el patrón de *Speckles* producido por un medio aleatorio, ya que dichas correlaciones contienen la información necesaria para la reconstrucción de la respuesta temporal en este tipo de medios.

Hasta donde conocemos, este trabajo representa uno de los primeros intentos exitosos en utilizar las propiedades estadísticas del patrón de *Speckles* para cuantificar las propiedades ópticas de medios opacos, como lo es la respuesta temporal de este tipo de sistemas ante perturbaciones ópticas instantáneas. Dada la simplicidad y alto desempeño de la técnica experimental descrita en este trabajo, consideramos que nuestra propuesta representa una nueva alternativa viable y accesible para el estudio y caracterización de materiales fotónicos.

A continuación se describe el contenido de cada uno de los capítulos que componen a esta Tesis:

Capítulo 2 En este capítulo se describen brevemente los modelos teóricos de la dispersión de luz en diferentes regímenes: La forma en que dispersa la luz una partícula aislada, dispersión de luz en sistemas diluidos homogéneos y sistemas donde predomina la dispersión múltiple.

Capítulo 3 Aquí se plantean los principios estadísticos utilizados para describir el campo electromagnético dispersado en un medio opaco y su relación con las funciones de correlación para la intensidad detectada. Además se da una breve descripción de la metodología para la reconstrucción de la respuesta temporal mediante el uso de técnicas biespectrales.

Capítulo 4 En este capítulo se detalla el proceso de calibración, incluyendo el procesamiento y análisis de datos, de la técnica de reconstrucción de la respuesta temporal de un medio aleatorio opaco. Para dicha calibración se ha escogido el Teflón, cuyas propiedades ópticas son bien conocidas.

Capítulo 5 Este capítulo comienza con una pequeña descripción de las propiedades físicas del material estudiado en este trabajo, dióxido de

Titanio (TiO_2), así como del protocolo de preparación de las muestras estudiadas. A continuación se presentan los resultados experimentales y el análisis teórico correspondiente a varias películas delgadas de partículas de TiO_2 . La dependencia de la respuesta temporal, pulsos como función de la anchura de la muestra es asociada con las propiedades ópticas de los sistemas: naturaleza de la propagación, densidad y absorción óptica.

Capítulo 6 Finalmente, este capítulo contiene las conclusiones y perspectivas generadas en el presente trabajo de Tesis.

CAPÍTULO 2

Dispersión de luz

Para describir la interacción de la luz con la materia, uno debe considerar que la luz posee propiedades de partícula y onda simultáneamente. Si pensamos que la luz es una onda electromagnética, es decir un campo eléctrico y magnético acoplados que varían en el espacio y tiempo, podemos ver que el resultado de la interacción de la luz con la materia propicia la variación de la configuración espacial de las cargas eléctricas, variación que se encuentra en fase con la onda incidente. Así que estas cargas actuaran como dipolos eléctricos oscilantes, es decir como fuentes secundarias de luz (luz dispersada). Después de que la luz ha recorrido cierta distancia en un medio dispersor, podemos observar cambios en la fase inicial y la intensidad, cambios que están directamente relacionados con el tamaño de las partículas dispersoras, su forma e interacciones moleculares. Gracias a esto podemos obtener información acerca de la estructura y dinámica del sistema haciendo uso de técnicas de dispersión de luz.

2.1 Dispersión simple

La materia dispersa luz (onda electromagnética) debido a la inducción de varios dipolos eléctricos oscilantes, que sirven de fuentes para la luz dispersada. El momento dipolar eléctrico depende de la polarizabilidad y el campo eléctrico de la radiación incidente como:

$$\vec{m} = \alpha \vec{E} \tag{2.1}$$

donde

$$|\vec{E}| = E_0 \exp[i(2\pi\nu t - kx)] \quad (2.2)$$

aquí $v = \frac{c}{\lambda}$ y $|\vec{k}| = k = \frac{2\pi}{\lambda}$. En un experimento de dispersión de luz se detecta directamente la intensidad de la luz dispersada, $I_S = E_S E_S^* = |E|^2$, en lugar del campo eléctrico debido a las complicaciones que la detección de este último implica.

La intensidad de luz medida es función, entre otras cosas, del tamaño del objeto dispersor. Si el objeto dispersor es pequeño comparado con la longitud de onda o si la diferencia entre los índices de refracción del objeto y el medio sustentante (contraste) es pequeño entonces la dispersión es isótropa, no depende del ángulo de observación, y a este régimen se le conoce como dispersión de Rayleigh-Gans-Debye. Por otro lado, si el tamaño del objeto dispersor es comparable a la longitud de onda se utiliza la teoría de Mie para describir la dispersión de la luz como función del ángulo de detección.

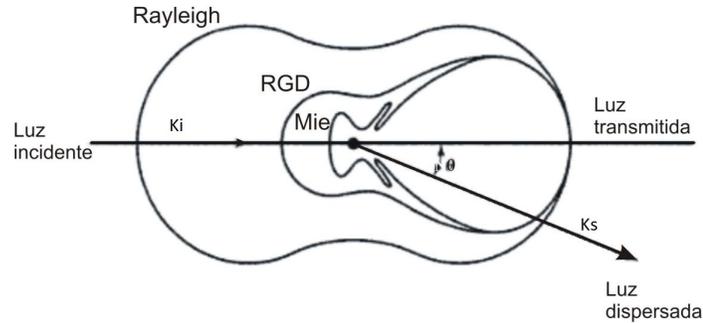


Figura 2.1: Intensidad de luz dispersada en función del tamaño de la partícula

Ahora podemos definir una cantidad que es central a la teoría de dispersión, el vector de dispersión \vec{q} que es la diferencia entre el vector de onda incidente k_0 y el vector de onda dispersado k_s (Figura 2.1).

$$\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s \quad (2.3)$$

2.2 Dispersión cuasielástica “QLS”

La dispersión de luz se considera cuasielástica cuando la magnitud del vector de onda se conserva y lo único que cambia es su dirección, es decir el medio dispersor no absorbe energía de la onda.

2.2.1 Dispersión dinámica

La dispersión de luz cuasielástica también es conocida con el nombre de dispersión dinámica de luz (*DLS* por sus siglas en inglés) o espectroscopia de correlación de fotones. Si las partículas dispersoras cambian de posición, las fluctuaciones temporales de la intensidad dispersada reflejarán directamente el movimiento Browniano de las partículas dispersoras. Para analizar cuantitativamente la movilidad de partículas suspendidas en un medio continuo por medio de dispersión de luz dinámica, resulta útil expresar las fluctuaciones temporales de la intensidad dispersada en términos de funciones de correlación temporales.

2.2.2 Función de autocorrelación temporal de la intensidad y movimiento de partículas en suspensión

El factor de estructura dinámico $F_s(\vec{q}, \tau)$ contiene toda la información concerniente al movimiento de las partículas dispersoras y se define como la transformada de Fourier de la función de autocorrelación de Van Hove $G_s(\vec{r}, t)$

$$F_s(\vec{q}, \tau) = \int d\vec{r} G_s(\vec{r}, t) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \quad (2.4)$$

donde

$$G_s(\vec{r}, \tau) = \langle n(\vec{0}, t) n(\vec{r}, t + \tau) \rangle \quad (2.5)$$

Aquí, $n(\vec{r}, t)$ es el número de densidad local de partículas dispersoras (el número de partículas dispersoras fluctuando en el tiempo debido al movimiento Browniano, en un pequeño subvolumen del volumen dispersor centrado en la posición \vec{r}) en un tiempo dado. Para soluciones muy diluidas, $G_s(\vec{r}, \tau)$ define la probabilidad de encontrar una partícula dispersora dada en un tiempo $t + \tau$ y posición \vec{r} , si la misma partícula fue localizada al tiempo t en la posición $\vec{0}$.

El promedio $\langle \cdot \rangle$ se toma sobre todo el volumen dispersor y sobre todo el tiempo de medición. Para un movimiento difuso de partículas, también llamado ‘camino aleatorio’, $G_s(r, \tau)$ solo depende de la distancia $r = |\vec{r}|$ y esta dado como

$$G_s(r, t) = \left[\frac{2\pi}{3} \langle \Delta R(\tau)^2 \rangle \right]^{3/2} \exp\left(-\frac{3r(\tau)^2}{2\langle \Delta R(\tau)^2 \rangle}\right) \quad (2.6)$$

con $\langle \Delta R(\tau)^2 \rangle$ el desplazamiento cuadrático medio de la partícula dispersora. El movimiento Browniano de la partícula es ocasionado por las fluctuaciones térmicas de la densidad de las moléculas del solvente. La partícula dispersora entonces sigue un camino aleatorio a través del volumen dispersor y se puede calcular como

$$\langle \Delta R(\tau)^2 \rangle = 6D_s\tau \quad (2.7)$$

donde D_s es el coeficiente de autodifusión. La transformada de Fourier de 2.6 nos lleva al correspondiente factor de estructura dinámico, que es el principal interés en un experimento de dispersión de luz

$$F_s(q, \tau) = \exp\left(-q^2 \langle \Delta R(\tau)^2 \rangle_T \frac{\tau}{6}\right) = \exp(-D_s q^2 \tau) \quad (2.8)$$

Adicionalmente, la relación de Stokes-Einstein

$$D_s = \frac{kT}{f} = \frac{kT}{6\pi\eta R_H} \quad (2.9)$$

nos permite calcular el radio hidrodinámico R_H de la partícula dispersora, si la temperatura T y la viscosidad del solvente η son conocidos y el coeficiente de autodifusión es medido por dispersión de luz dinámica. Debemos notar que R_H es el radio de una esfera equivalente, que experimenta una fuerza de fricción f durante su movimiento Browniano en el solvente, idéntica en magnitud a aquella que experimenta nuestra partícula dispersora que no es necesariamente una esfera.

2.2.3 Teoría básica sobre DLS

Para experimentos de dispersión estática de luz, la cantidad a ser medida es la intensidad de luz promedio en el tiempo. Por otro lado, para experimentos de dispersión dinámica de luz lo que interesa medir son las fluctuaciones de la luz dispersada $I(q, t)$. Para este propósito, la fluctuación del

patrón de interferencia es descrito por una función de autocorrelación temporal $\langle I(q, t)I(q, t + \tau) \rangle$. Para partículas dispersoras que muestran movimiento Browniano en solución la función de correlación de intensidad decae exponencialmente y se puede relacionar con el factor de estructura dinámico (o amplitud de la función de autocorrelación $F_s(q, t)$) por medio de la relación de *Siegert*

$$\begin{aligned} F_s(q, t) &= \exp(-D_s q^2 \tau) \\ &= \langle E_s(q, t) E_s^*(q, t + \tau) \rangle \\ &= \sqrt{\frac{\langle I(q, t) I(q, t + \tau) \rangle}{\langle I(q, t)^2 \rangle}} - 1 \end{aligned} \quad (2.10)$$

Para partículas monodispersas, $F_s(q, t)$ es una exponencial con tasa de decaimiento $\Gamma = D_s q^2$ (tiempo de relajación $(D_s q^2)^{-1}$). Denotamos como $g_2(q, t)$ a la función de autocorrelación normalizada en intensidad que está dada por

$$g_2(q, t) = \frac{\langle I(q, t) I(q, t + \tau) \rangle}{\langle I(q, t)^2 \rangle} \quad (2.11)$$

Entonces la relación entre la amplitud de la función de correlación $g_1(q, t)$ (o factor de estructura dinámico) y la función de autocorrelación normalizada puede ser escrita a través de la relación de *Siegert* como

$$g_2(q, \tau) = 1 + \beta |g_1(q, \tau)|^2 \quad (2.12)$$

El radio hidrodinámico de las partículas dispersoras puede ser determinado entonces en sistemas muy diluidos, en los cuales las interacciones entre partículas son despreciables. Por otro lado, en caso de que existan interacciones entre partículas la dispersión de luz provee una poderosa herramienta para el análisis de dichas interacciones.

2.3 Dispersión múltiple

La dispersión dinámica de luz resulta una poderosa herramienta para el estudio de la estructura y dinámica de sistemas complejos. Pero una limitación significativa de esta técnica ha sido la falta de consistencia cuando se estudian

sistemas que presentan fuerte dispersión múltiple. Ha sido con experimentos recientes que la aplicación de técnicas de dispersión de luz se ha extendido al estudio de medios ópticamente densos, es decir que exhiben un alto grado de dispersión múltiple. A estas nuevas técnicas se les conoce con el nombre de espectroscopia de onda difusa (*DWS* por sus siglas en inglés) y se basa en la naturaleza difusiva del transporte de luz para relacionar las variaciones temporales (o en frecuencia) de la luz dispersada con el movimiento (o estructura) de los dispersores.

Entonces *DWS* nos permite extender las aplicaciones de *DLS* a sistemas donde la dispersión múltiple domina, es decir materiales que son esencialmente opacos.

2.4 Espectroscopia de onda difusa

La teoría detrás de la técnica *DWS* se basa en la descripción de la propagación de luz en un medio ópticamente grueso (alto grado de dispersión múltiple) en términos de la aproximación difusiva. En esta aproximación, las correlaciones de fase de las ondas dispersadas son ignoradas y solo se consideran las intensidades dispersadas[11]. Esto significa que cada fotón recorre un camino aleatorio después de entrar al medio y la aproximación de difusión describe la distribución de estos caminos aleatorios considerándola como una distribución de densidad de energía.

Para dispersores mucho más pequeños que la longitud de onda λ , la dispersión de cada partícula es isotrópica y la dirección de propagación de luz se vuelve aleatoria desde el primer evento de dispersión, o equivalentemente sobre una distancia ℓ que se conoce como distancia de extinción (o camino libre promedio).

En este caso, el transporte de la densidad de energía, $U(\mathbf{r}, t)$ puede ser descrito sobre escalas de longitud más grandes a ℓ por la ecuación de difusión

$$\frac{\partial}{\partial t}U(\mathbf{r}, t) = D_\ell \nabla^2 U(\mathbf{r}, t) \quad (2.13)$$

donde D_ℓ es el coeficiente de difusión de la luz. Entonces, $D_\ell = c\ell/3$ donde c es la velocidad efectiva de la luz en el medio. Para partículas de tamaño comparable a la longitud de la luz λ , la dispersión es anisotrópica y el número de eventos de dispersión promedio, n_0 , requeridos para hacer que la luz pierda memoria de la dirección de incidencia debe ser mayor que uno. La escala de

longitud a la que ocurre este proceso se conoce como camino libre promedio de transporte, ℓ^* , definida por $\ell^* = n_0\ell$. Esto significa que para partículas de tamaño comparable con la longitud de onda, la ecuación de difusión solo es válida sobre escalas de longitud mayores a ℓ^* y $D_\ell = c\ell^*/3$.

En la practica esto quiere decir que la teoria *DWS*, basada en la aproximación de difusión, solo es valida para muestras de espesor mucho mayor a ℓ^* , es decir, que los fotones tienen que atravesar esta distancia para que el proceso se vuelva aleatorio y se pueda describir como un proceso difuso.

2.4.1 Función de correlación para dispersión de luz múltiple

Por simplicidad asumiremos que el sistema a tratar consta de partículas esféricas idénticas en tamaño iluminadas por un haz de luz monocromático de longitud de onda λ . La luz dispersada que sale de la muestra es medida en una area pequeña cerca de la superficie.

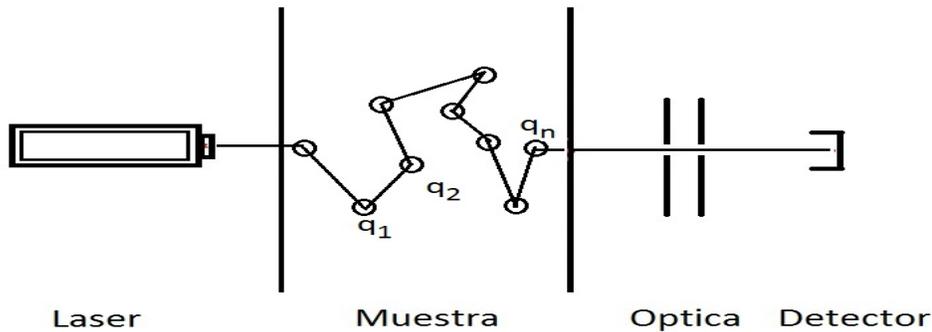


Figura 2.2: La luz que entra al sistema se vuelve difusa después de n_0 eventos de dispersión o equivalentemente al recorrer una distancia ℓ^* dentro del material.

De esta forma, tanto el movimiento de los dispersores (objetos móviles) as como el acoplamiento de la onda incidente al medio dispersor (objetos estáticos) pueden ser estudiados monitoreando las fluctuaciones temporales y/o en frecuencia de la luz dispersada. En un experimento *DLS*, estas fluctuaciones son usualmente caracterizadas por una función de autocorrelación temporal normalizada

$$g_1(\tau) = \frac{\langle E(0)E^*(\tau) \rangle}{\langle |E(0)|^2 \rangle} \quad (2.14)$$

donde $E(\tau)$ es la intensidad del campo eléctrico en un punto de detección a un tiempo τ . Para una secuencia dada de eventos de dispersión en las posiciones r_1, \dots, r_n con sus correspondientes vectores de dispersión $q_i = k_i - k_{i-1}$, el producto del campo eléctrico a un tiempo τ con el del tiempo 0 será

$$E^{(n)}(\tau)E^{(n)*}(0) = |E^{(n)}(0)|^2 \exp \left[i \sum_{i=1}^n \mathbf{q}_i \cdot \Delta \mathbf{r}_i(\tau) \right] \quad (2.15)$$

donde $\delta \mathbf{r}_i(\tau) = \mathbf{r}_i(\tau) - \mathbf{r}_i(0)$ es la distancia de la i -ésima partícula moviéndose a un tiempo τ , el argumento de la exponencial representa el corrimiento de fase debido al movimiento de los n dispersores a un tiempo τ .

Asumiendo que los campos que siguen diferentes caminos interfieren incoherentemente, la contribución promedio de la función de autocorrelación normalizada de los caminos de orden n es

$$\langle E^{(n)}(\tau)E^{(n)*}(0) \rangle = I_0 P(n) \left\langle \prod_{i=1}^n \exp^{i\mathbf{q}_i \cdot \Delta \mathbf{r}_i(\tau)} \right\rangle \quad (2.16)$$

aquí $P(n)$ es la fracción de la intensidad total dispersada, I_0 , en el camino aleatorio de orden n y el $\langle \rangle$ denota promedio sobre el desplazamiento de la partícula $\Delta \mathbf{r}(\tau)$ y la distribución de vectores de dispersión \vec{q} . Para n grandes el transporte de luz dentro del medio es bien descrito por la aproximación de difusión.

Para n grandes podemos imponer la condición que la suma de los vectores de dispersión intermedios sea igual a la diferencia entre el vector de onda incidente y el vector de onda de salida

$$\sum_i^n \mathbf{q}_i = \mathbf{k}_n - \mathbf{k}_0 \quad (2.17)$$

Además debemos asumir que los eventos de dispersión consecutivos no están correlacionados, esto es, que la distribución de q_i está determinado únicamente por el factor de forma de una sola partícula. Entonces el lado derecho de la ecuación 2.16 se transforma en

$$P(n) \exp \langle -i\mathbf{q} \cdot \Delta \mathbf{r}(\tau) \rangle^n \quad (2.18)$$

Si los dispersores se mueven de manera aleatoria (movimiento *Browniano*), la distribución de $\Delta \mathbf{r}(\tau)$ es *Gaussiana*, esto significa que el vector de dispersión es independiente del desplazamiento cuadrático medio de la partícula y cada promedio se hace de manera independiente, entonces la función de correlación se puede escribir como

$$g_1^n(t) = \langle E^{(n)}(\tau) E^{(n)*}(0) \rangle = I_0 P(n) e^{-n \langle q^2 \rangle_q \langle \Delta r^2(\tau) \rangle / 6} \quad (2.19)$$

donde $\langle \dots \rangle_q$ denota el promedio sobre todos los vectores de dispersión ponderado por la probabilidad de dispersión o factor de forma $F(q)$. Para difusión simple $\langle \Delta r^2(\tau) \rangle / 6 = 6D\tau$ donde D es el coeficiente de difusión de las partículas.

La ecuación 2.19 puede ser generalizada para tratar dispersores anisotrópicos, que son típicamente usados en experimentos. Aquí la dispersión de una sola partícula tiene un pico en la dirección de la onda incidente, y $\langle q^2 \rangle$ es menor que $2k_0^2$. Usando la relación $\ell/\ell^* = \langle 1 - \cos \theta \rangle$ tenemos que

$$\langle q^2 \rangle = \langle [2k_0 \sin(\theta/2)]^2 \rangle = 2k_0^2 \langle 1 - \cos \theta \rangle = 2K_0^2 \frac{\ell}{\ell^*} \quad (2.20)$$

Con esta expresión y el desarrollo por cumulantes de la ecuación 2.19 podemos evaluar el promedio sobre q y obtener una expresión para la contribución de los caminos de orden n a la función de autocorrelación

$$g_1^n(t) = I_0 P(n) \exp^{-2 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{\ell^*}} \quad (2.21)$$

Y si escalamos n definiendo n^* como $n^* = n/n_0 = (\ell/\ell^*)n$, para $n \gg n_0$, $P(n)$ puede ser escrita como función de n^* . Físicamente esto refleja el hecho de que sobre escalas de longitud mayores a ℓ^* , la dispersión parece isotrópica y la ecuación de difusión de fotones es adecuada para describir el transporte de luz. Como resultado de esta aproximación tenemos

$$g_1(\tau) = \sum_{n^*=1}^{\infty} P(n^*) \exp^{-2(\tau/\tau_0)n^*} \quad (2.22)$$

Esto refleja una renormalización del camino libre promedio para dispersores anisotrópicos, entonces puede considerarse que la luz recorre caminos aleatorios igualmente distribuidos con una distancia promedio de ℓ^* . Caminos largos reflejan la contribución agregada de varios eventos de dispersión. Esto implica que cada partícula debe moverse distancias muy pequeñas para hacer

que la fase de la onda cambie completamente, y esto ocurre en tiempos muy cortos, así que DWS puede acceder a tiempos de decaimiento bastante pequeños en comparación con DLS.

La clave para la solución de 2.22 es la determinación de $P(n^*)$. Esta tarea se simplifica enormemente si pasamos al límite continuo. Es decir, si aproximamos la suma sobre todos los n^* con una integral sobre las trayectorias $s = n^* \ell^*$ y obtenemos

$$g_1(\tau) = \int_0^\infty ds P(s) \exp^{-(2\tau/\tau_0)s/\ell^*} \quad (2.23)$$

Finalmente por comparación con los experimentos, debemos notar que usualmente siempre medimos funciones de autocorrelación en intensidad

$$\frac{\langle I(\tau)I(0) \rangle}{\langle I(0) \rangle^2} = 1 + \beta g_2(\tau) \quad (2.24)$$

donde β es un factor determinado por la óptica que hace que $g_2(0) = 1$. Para la mayoría de los sistemas de interés experimental, el campo eléctrico dispersado es una variable aleatoria *Gaussiana* y la función de autocorrelación de intensidad está relacionada con la función de autocorrelación del campo por la relación de *Siegert*

$$g_2(\tau) = 1 + \beta |g_1(\tau)|^2 \quad (2.25)$$

CAPÍTULO 3

Respuesta temporal de un medio aleatorio

La respuesta temporal de un medio aleatorio ante una perturbación óptica instantánea proporciona información relevante acerca de las propiedades ópticas del medio. Anteriormente se ha demostrado que es posible reconstruir dicha respuesta temporal utilizando funciones de correlación de segundo orden en la intensidad medida, siempre y cuando se tenga conocimiento previo de la forma de la señal esperada, por ejemplo, usando el modelo de difusión para calcular la forma del pulso de salida y ajustando los parámetros del modelo para reproducir la señal medida. Por otro lado, recientemente se ha demostrado que la información acerca de la fase de la señal de respuesta se puede obtener utilizando funciones de correlación de tercer orden en la intensidad medida[12]. Combinando lo anterior con la información obtenida de las funciones de segundo orden es posible reconstruir la respuesta temporal del medio sin la necesidad de algún conocimiento a priori de la señal esperada[14].

3.1 Campo dispersado por un medio aleatorio

Cuando un campo monocromático ilumina a un medio aleatorio, el campo total en un punto después de haber atravesado el medio puede ser expresado como la superposición de muchas ondas parciales dispersadas. Cada una de estas ondas tiene magnitud y fase aleatoria, relativa a la onda incidente, lo

16CAPÍTULO 3. RESPUESTA TEMPORAL DE UN MEDIO ALEATORIO

que nos permite describir el campo como una suma de fasores aleatorios. Este modelo de suma de fasores aleatorios es el fundamento de la descripción estadística del fenómeno de *Speckle* discutida por *Goodman*[15].

Usando el modelo de suma de fasores aleatorios, obtenemos una expresión general y conveniente para el campo dispersado por un medio aleatorio invariante en el tiempo. Aquí asumimos un modelo escalar para el campo eléctrico dispersado, lo que físicamente significa que consideraremos solamente una polarización lineal. Sin embargo es posible extender este modelo a un modelo vectorial generalizado directamente.

En algún punto específico dentro del medio aleatorio, el campo monocromático incidente de frecuencia ν , es:

$$e_{in}(t) = E_i \exp(j2\pi t) + c.c. , \quad (3.1)$$

donde E_i es la amplitud compleja y c.c. representa el complejo conjugado. Entonces, en alguna localización específica del detector el campo eléctrico resultante linealmente polarizado es representado como

$$e_{out}(t) = E_o(\nu) \exp(j2\pi \nu t) + c.c. , \quad (3.2)$$

donde la amplitud compleja del campo eléctrico de salida $E_o(\nu)$ es una variable aleatoria dependiente de la frecuencia del campo aplicado. Las propiedades estadísticas del medio aleatorio pueden ser estudiadas usando la estadística de $E_o(\nu)$. El modelo de suma de fasores aleatorios representa a $E_o(\nu)$ como

$$E_o(\nu) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N A_k \exp(-j\phi_k(\nu)) , \quad (3.3)$$

donde A_k es la magnitud aleatoria y $\phi_k(\nu)$ es la fase aleatoria de la k -ésima onda parcial elemental. El número de ondas elementales está dado por N , la cual se asume lo suficientemente grande tal que $N \rightarrow \infty$ puede ser usado. Las magnitudes aleatorias A_k son modeladas independientes de la frecuencia, por lo que asumimos que las secciones de dispersión de los dispersores no varían con cambios pequeños de frecuencia y por lo tanto son independientes de la frecuencia. La fase aleatoria, en el otro caso, es muy sensible a los pequeños cambios en frecuencia. Cada fase aleatoria $\phi_k(\nu)$ es modelada como una fase acumulada después de recorrer el k -ésimo camino cuyo tiempo de vuelo aleatorio es t_k , resultando en

$$\phi_k(\nu) = 2\pi\nu t_k, \quad (3.4)$$

lo cual se cumple si la dispersión es elástica, es decir que solo la dirección del vector de onda cambia más no su magnitud.

Para que el modelo de suma de fasores aleatorios sea práctico en cuanto a que nos provea de información acerca del medio aleatorio, se deben realizar algunas consideraciones acerca de las propiedades estadísticas de las ondas dispersadas. Tal y como lo hizo *Goodman*[15] debemos asumir que:

- i. Las magnitudes aleatorias A_k son estadísticamente independientes y están idénticamente distribuidas.
- ii. las fases aleatorias $\phi_k(\nu)$ son estadísticamente independientes e igualmente distribuidas en el intervalo $-\pi$ a π .
- iii. la magnitud aleatoria A_k y la fase aleatoria $\phi_k(\nu)$ de cada onda parcial dispersada son estadísticamente independientes.

Estas consideraciones son equivalentes a especificar que las ondas parciales elementales, representadas por los términos de magnitud y fase en el modelo de suma de fasores aleatorios en la ecuación 3.3, son todos estadísticamente independientes.

En la ecuación 3.4 relacionamos las amplitudes aleatorias con los *tiempos de vuelo* (aleatorios) t_k , los cuales en general no estarán uniformemente distribuidos pero tendrán una densidad de probabilidad que denotamos por $p(t)$. Tan pronto como el ancho de $p(t)$ sea grande en comparación con $1/\nu$, las fases aleatorias estarán uniformemente distribuidas cuando se toma el módulo de 2π confirmando la consideración (ii).

3.2 Estadística del campo dispersado

Bajo las consideraciones hechas (i)–(iii) listadas en la sección 3.1, el campo de salida $E_o(\nu)$ de un medio aleatorio, medido a una frecuencia ν y modelado por una suma de fasores aleatorios como en 3.3, tiene estadística de primer orden que es Gaussiana circular compleja de media cero. En este caso la estadística del campo de *Speckle* se dice que es completamente conocida. Cuando escribimos el campo eléctrico de salida en su forma compleja $E_o(\nu) = x + jy$, la probabilidad conjunta para la parte real e imaginaria es

$$P_{xy} = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{x^2 + y^2}{\sigma^2}\right), \quad (3.5)$$

donde

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \frac{\langle A_k^2 \rangle}{2}. \quad (3.6)$$

Los brackets $\langle \dots \rangle$ representan al promedio sobre el ensamble de todas las posibles configuraciones del medio aleatorio. Considerando que las magnitudes aleatorias A_k están idénticamente distribuidas, podemos simplificar la expresión en (3.6)

$$\sigma^2 = \frac{\langle A^2 \rangle}{2}. \quad (3.7)$$

La intensidad de salida de un medio aleatorio está dada por

$$I(\nu) = |E_o(\nu)|^2. \quad (3.8)$$

Cuyo promedio en el ensamble es calculado de (3.5) para dar $\langle I(\nu) \rangle = 2\sigma^2$, este resultado muestra que considerar las magnitudes aleatorias independientes de la frecuencia (para cambios de frecuencia pequeños) junto con las consideraciones i–iii, implica que la intensidad de salida promedio en el ensamble es también independiente de la frecuencia.

$$\langle I \rangle = \langle A^2 \rangle. \quad (3.9)$$

A continuación mostramos que la respuesta temporal de un medio aleatorio se puede obtener utilizando las correlaciones entre los patrones de intensidad, *Speckle*, medidas en dos o más frecuencias. Este desarrollo requiere conocimiento de la estadística de orden superior del campo. Como se muestra en el apéndice A, bajo las consideraciones i–iii, la estadística para el conjunto de campos dispersados $E_o(\nu_1), E_o(\nu_2) \dots E_o(\nu_M)$ medidos a diferentes frecuencias, es Gaussiana circular compleja de media cero. El campo aleatorio de salida, medido a M frecuencias discretas es

$$\mathbf{z} = \begin{pmatrix} E_o(\nu_1) \\ E_o(\nu_2) \\ \vdots \\ E_o(\nu_M) \end{pmatrix}. \quad (3.10)$$

La función de probabilidad conjunta para el vector aleatorio \mathbf{z} es

$$p_z(\mathbf{z}) = \frac{1}{\pi^M |\mathbf{C}_z|} \exp(-\mathbf{z}^H \mathbf{C}_z^{-1} \mathbf{z}), \quad (3.11)$$

donde \mathbf{z}^H es la transpuesta Hermitiana de \mathbf{z} y \mathbf{C}_z es la matriz de covarianza compleja cuyos (i, j) - *esimos* están dados por $[\mathbf{C}_z]_{i,j} = \langle E_o(\nu_i) E_o^*(\nu_j) \rangle$. Debido a que \mathbf{z} es Gaussiana circular compleja, podemos utilizar el teorema del momento Gaussiano[20] para expresar los momentos de orden superior como la suma de productos de momentos de segundo orden, los cuales son los elementos de \mathbf{C}_z .

3.3 Correlaciones en frecuencia del campo dispersado

Las ondas parciales dispersadas en un medio aleatorio tienen una distribución de *tiempos de vuelo* que denotamos por $p(t)$. Definiendo a la dispersión de los *tiempos de vuelo* Δt como

$$\Delta t = \sqrt{\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2} \quad (3.12)$$

E_o se decorrelacionará con el campo $E_o(\nu + \Delta\nu)$ cuando el cambio en la frecuencia satisface la condición $\Delta\nu\Delta t \sim 1$. Genack propuso que la correlación entre dos campos a diferentes frecuencias se escribe como[18, 19]

$$\langle E_o(\nu + \Delta\nu) E_o^*(\nu) \rangle = \langle I \rangle P(\Delta\nu), \quad (3.13)$$

donde $P(\Delta\nu)$ es la transformada de Fourier de $p(t)$, dado por

$$P(\Delta\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} dt p(t) \exp(-j2\pi\Delta\nu t). \quad (3.14)$$

En la practica resulta difícil medir la correlación de segundo orden del campo directamente en frecuencias ópticas para luz dispersada por un medio aleatorio. Por otra parte, es conveniente medir la función de correlación en intensidad $\langle I(\nu + \Delta\nu) I(\nu) \rangle$. Esta correlación es de cuarto orden en el campo, y además ya que el campo tiene estadística Gaussiana circular compleja, el teorema del momento gaussiano[20] puede ser aplicado a la expresion (3.13) para obtener

$$\langle I(\nu + \Delta\nu)I(\nu) \rangle = \langle I \rangle^2 + \langle I \rangle^2 |P(\Delta\nu)|^2 . \quad (3.15)$$

La correlación de segundo orden en intensidad contiene información acerca de la magnitud de Fourier de $p(t)$. Debido a que la fase de Fourier está ausente en 3.15, no es posible reconstruir $p(t)$ sin hacer uso de información *a priori*.

Recientemente se ha mostrado que la correlación de tercer orden en intensidad contiene suficiente información acerca de la fase de Fourier de $p(t)$ para permitir su reconstrucción, basado en las mediciones de la intensidad sin asumir ningún tipo de modelo para $p(t)$. La correlación de tercer orden, que es de sexto orden en el campo, puede ser evaluada usando el teorema del momento Gaussiano en conjunto con (3.13) para obtener

$$\begin{aligned} \langle I(\nu)I(\nu + \Delta\nu_1)I(\nu + \Delta\nu_1 + \Delta\nu_2) \rangle = \\ \langle I \rangle^3 + \langle I \rangle^3 |P(\Delta\nu_1)|^2 + \langle I \rangle^3 |P(\Delta\nu_2)|^2 \\ + \langle I \rangle^3 |P(\Delta\nu_1 + \Delta\nu_2)|^2 + 2 \langle I \rangle^3 \operatorname{Re} \{ P(\Delta\nu_1) \\ \times P(\Delta\nu_2) P^*(\Delta\nu_1 + \Delta\nu_2) \} . \end{aligned} \quad (3.16)$$

Aquí, es matemáticamente conveniente definir una intensidad normalizada $\tilde{I} = (I - \langle I \rangle) / \langle I \rangle$, en cuyo caso la correlación de segundo y tercer orden de la intensidad normalizada, se puede escribir como

$$\langle \tilde{I}(\nu + \Delta\nu)\tilde{I}(\nu) \rangle = \langle I \rangle^2 |P(\Delta\nu)|^2 \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} \langle \tilde{I}(\nu)\tilde{I}(\nu + \Delta\nu_1)\tilde{I}(\nu + \Delta\nu_1 + \Delta\nu_2) \rangle = 2 \operatorname{Re} \{ |P(\Delta\nu_1)| |P(\Delta\nu_2)| \\ \times |P^*(\Delta\nu_1 + \Delta\nu_2)| \} . \end{aligned} \quad (3.18)$$

Donde podemos ver que la correlación de tercer orden de la intensidad normalizada de la ecuación (3.18) es igual a la componente real del biespectro[21] de $p(t)$. Este resultado permite el uso de una técnica biespectral[12, 21] para reconstruir la distribución de *tiempos de vuelo* $p(t)$ [22] como se detalla en la sección 3.5.

3.4 Respuesta temporal de la intensidad

Aquí se muestra que la respuesta temporal en la intensidad sobre el promedio del ensamble es igual a la distribución de los *tiempos de vuelo* $p(t)$. El campo

eléctrico de un pulso ultrarápido aplicado al medio aleatorio esta dado por $a_{in}(t)$, y el campo de salida por a_{out} . Ambas de estas señales reales tienen una frecuencia óptica central ν_0 y son escritas como

$$a_{in}(t) = u(t) \exp(j2\pi\nu_0 t) + c.c. \quad (3.19)$$

$$a_{out}(t) = v(t) \exp(j2\pi\nu_0 t) + c.c. \quad (3.20)$$

donde $u(t)$ y $v(t)$ son las amplitudes complejas de los pulsos de entrada y salida respectivamente. La función $v(t)$ es la salida estocástica compleja de un medio aleatorio en respuesta a la entrada determinística compleja $u(t)$. La intensidad de salida medida por un fotodetector tendrá un valor promedio en el ensamble

$$\langle I(t) \rangle = \langle |v(t)|^2 \rangle. \quad (3.21)$$

Siendo consistentes con la salida de un sistema lineal[23], si la respuesta de un sistema lineal a la señal de entrada $\exp(j2\pi\nu t)$ es la señal de salida $H(\nu) \exp(j2\pi\nu t)$ entonces $H(\nu)$ es la función de transferencia del sistema lineal. Refiriendonos a las ecuaciones (3.1) y (3.2), podemos ver que la función de transferencia del sistema aleatorio es el campo de salida: $H(\nu) = E_o(\nu)/E_i$. Entonces, la función de transferencia del medio aleatorio puede ser reescrita usando la ecuación (3.13) como

$$\langle H(\nu + \Delta\nu) H^*(\nu) \rangle = \langle |H(\nu)|^2 \rangle P(\Delta\nu), \quad (3.22)$$

donde la cantidad $\langle |H(\nu)|^2 \rangle = \langle I \rangle / |E_i|^2$ es una constante.

Denotando a la transformada de Fourier de $v(t)$ como $V(\nu)$ y de $u(t)$ como $U(\nu)$, podemos usar la relación $V(\nu) = U(\nu)H(\nu + \nu_0)$ para expresar $v(t)$ como

$$v(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\nu U(\nu) H(\nu + \nu_0) \exp(j2\pi\nu t). \quad (3.23)$$

Substituyendo la ecuación (3.23) en (3.21) tenemos la intensidad promedio en el ensamble

$$\begin{aligned} \langle I(t) \rangle = & \left\langle \int_{-\infty}^{\infty} d\nu' U(\nu') H(\nu' + \nu_0) \exp(j2\pi\nu' t) \right. \\ & \left. \times \int_{-\infty}^{\infty} d\nu'' U^*(\nu'') H^*(\nu'' + \nu_0) \exp(-j2\pi\nu'' t) \right\rangle, \quad (3.24) \end{aligned}$$

22CAPÍTULO 3. RESPUESTA TEMPORAL DE UN MEDIO ALEATORIO

Despues de intercambiar el orden de integración, hacemos el promedio en el ensamble y los cambios de variable $\Delta\nu = \nu' - \nu''$ y $\nu = \nu''$, la ecuación (3.24) se transforma en

$$\begin{aligned} \langle I(t) \rangle &= \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \int_{-\infty}^{\infty} d\Delta\nu \langle H(\nu + \nu_0 + \Delta\nu) \times H^*(\nu + \nu_0) \rangle \\ &\times U(\nu + \Delta\nu)U^*(\nu) \exp(j2\pi\Delta\nu t) . \end{aligned} \quad (3.25)$$

Con el uso de la ecuación (3.22) podemos reescribir

$$\langle H(\nu + \nu_0 + \Delta\nu) \times H^*(\nu + \nu_0) \rangle = \langle |H(\nu + \nu_0)|^2 \rangle P(\Delta\nu) . \quad (3.26)$$

También, si el ancho de banda del pulso de entrada es amplio en comparación con el rango de frecuencia sobre el cual $P(\Delta\nu)$ no es cero, entonces $U(\nu + \Delta\nu) \cong U(\nu)$. Esta aproximación puede ser interpretada como si se tuviera un ancho temporal del pulso de entrada mucho mas pequeño que las características temporales en la distribución de los *tiempos de vuelo* $p(t)$. Esta condición es necesaria si deseamos describir precisamente la estructura de $p(t)$, bajo estas consideraciones la ecuación (3.25) se puede simplificar como

$$\langle I(t) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \langle |V(\nu)|^2 \rangle \int_{-\infty}^{\infty} d\Delta\nu P(\Delta\nu) \exp(j2\pi\Delta\nu t) . \quad (3.27)$$

De la ecuación (3.14), la ecuación (3.27) es por definición igual a $p(t)$. Aplicando el teorema de *Parseval* tenemos

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\nu \langle |V(\nu)|^2 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle |v(t)|^2 \rangle . \quad (3.28)$$

Cuando ocupamos la ecuacion (3.21) en conjunto con las ecuaciones (3.27) y (3.28), la respuesta temporal promedio en intensidad normalizada sobre el ensamble es igual a la distribución de los *tiempos de vuelo* para las ondas dispersadas por el medio aleatorio y esta dada por

$$p(t) = \frac{\langle I(t) \rangle}{\int_{-\infty}^{\infty} dt \langle I(t) \rangle} . \quad (3.29)$$

3.5 Teoría biespectral

Las funciones de correlación de tercer orden poseen muchas ventajas sobre las correlaciones de segundo orden para la recuperación de la señal, proporcionando información de la fase de la señal a ser reconstruida (como lo muestran Lohmann y Wirnitzer[12]). Aquí mostramos que las mediciones de la correlación de tercer orden en frecuencia del patrón de *Speckle* permite que la respuesta temporal de un medio aleatorio sea reconstruida.

Para revisar algunos de los conceptos básicos, consideraremos que la señal real y arbitraria $f(t)$ cuya correlación temporal de tercer orden puede ser escrita como

$$g^{(3)}(\tau_1, \tau_2) = \int_{-\infty}^{\infty} dt f(t)f(t + \tau_1)f(t + \tau_2). \quad (3.30)$$

La transformada de Fourier de $g^{(3)}(\tau_1, \tau_2)$

$$G^{(3)}(\nu_1, \nu_2) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_2 g^{(3)}(\tau_1, \tau_2) \times \exp[-j2\pi(\nu_1\tau_1 + \nu_2\tau_2)], \quad (3.31)$$

es definido como el biespectro de la función $f(t)$. La función $f(t)$ puede ser expresada en términos de su transformada de Fourier $F(\nu)$ por

$$f(t) = \int_{-\infty}^{\infty} dt F(\nu) \exp(j2\pi\nu t). \quad (3.32)$$

Substituyendo la ecuación (3.32) en la ecuación (3.30) tenemos que el biespectro de $f(t)$ definido en la ecuación (3.31) puede ser escrito como

$$G^{(3)}(\nu_1, \nu_2) = F(\nu_1)F(\nu_2)F(-\nu_1 - \nu_2). \quad (3.33)$$

Dado que $f(t)$ es real, su transformada de Fourier es Hermitiana, permitiendo que la identidad $F(-\nu_1 - \nu_2) = F^*(\nu_1 + \nu_2)$ pueda ser usada en la ecuación (3.33) para obtener

$$G^{(3)}(\nu_1, \nu_2) = F(\nu_1)F(\nu_2)F^*(\nu_1 + \nu_2). \quad (3.34)$$

Debemos expresar la magnitud de Fourier de $f(t)$ en términos de su magnitud y fase como $F(\nu) = A(\nu) \exp[j\phi(\nu)]$, y el biespectro en términos de

su magnitud y fase como $G^{(3)}(\nu_1, \nu_2) = B(\nu_1, \nu_2) \exp [j\psi(\nu_1, \nu_2)]$. Entonces la relación entre la fase de Fourier y la fase biespectral de $f(t)$ obtenida en la ecuación (3.34) es

$$\psi(\nu_1, \nu_2) = \phi(\nu_1) + \phi(\nu_2) - \phi(\nu_1 + \nu_2). \quad (3.35)$$

La ecuación (3.35) muestra que la fase es una combinación lineal de fases de Fourier. También, si agregamos un componente de fase lineal arbitrario a la fase de Fourier de $p(t)$, reemplazando $\phi(\nu)$ por $\hat{\phi}(\nu) = \phi + \alpha\nu$, entonces de la ecuación (3.35) vemos que la fase biespectral es independiente del componente lineal de fase $\alpha\nu$. Por esta razón, el biespectro de $f(t)$ es inmune a la fase lineal de Fourier. En el dominio del tiempo, esto iguala a todas las funciones reales $f(t)$ que difieren por una cantidad arbitraria de tiempo teniendo el mismo biespectro.

La ecuación (3.35) puede ser usada para reconstruir la fase de Fourier de $f(t)$ desde su fase biespectral con un esquema simple[12]. Escribiendo las fases de Fourier y las biespectrales en notación discreta, donde $\phi_k = \phi(k\delta\nu)$ es la k -ésima fase de Fourier y $\psi_{i,j} = \psi(i\delta\nu, j\delta\nu)$ es la (i, j) -ésima componente de la fase biespectral, donde $\delta\nu$ es el incremento en la frecuencia de muestreo, permitiendo que la fase de Fourier sea reconstruida usando[12]

$$\phi_k = \frac{1}{k-1} \sum_{i=1}^{k-1} \phi_i + \phi_{k-i} - \psi_{i,k-i} \quad (3.36)$$

$$k = 2 \dots N_s$$

Donde $\phi_0 = 0, \phi_1 = \phi(\delta\nu)$ es arbitrario y N_s es el número de muestras. El valor arbitrario para ϕ_1 le da a la fase de Fourier reconstruida un grado de libertad que es equivalente a una fase lineal de Fourier indeterminada, que en el dominio del tiempo da un desplazamiento arbitrario. Alternativamente, escribiendo la ecuación (3.35) como un sistema de ecuaciones sobredeterminado para la fase de Fourier desconocida ϕ_k , podemos aplicar una técnica de reconstrucción de mínimos cuadrados[24, 25, 26].

3.6 Reconstrucción de la respuesta temporal

De una comparación entre las ecuaciones (3.18) y (3.34), la correlación de tercer orden en intensidad del campo de *Speckle* de un medio aleatorio es

igual a dos veces la parte real del biespectro de la respuesta temporal $p(t)$. Entonces, haciendo uso de la técnica biespectral, podemos reconstruir la fase de Fourier, y cuando esta es combinada con la magnitud de Fourier obtenida de la correlación de segundo orden en intensidad para la frecuencia, como se muestra en la ecuación (3.17), obtenemos la transformada de Fourier de la respuesta temporal, $P(\Delta\nu)$. Aplicando la transformada de Fourier inversa obtenemos la respuesta temporal $p(t)$.

Las intensidades normalizadas $\tilde{I}_1 = \tilde{I}(\nu_0)$, $\tilde{I}_2 = \tilde{I}(\nu_0 + \Delta\nu_1)$ e $\tilde{I}_3 = \nu_0 + \Delta\nu_1 + \Delta\nu_2$, cuando se usan en la correlación de tercer orden (3.18) y con la correlación de segundo orden (3.17), permiten que la fase biespectral de $p(t)$ sea escrita como

$$\psi(\Delta\nu_1, \Delta\nu_2) = \pm \cos^{-1} \left[\frac{\langle \tilde{I}_1 \tilde{I}_2 \tilde{I}_3 \rangle}{2 \left(\langle \tilde{I}_1 \tilde{I}_2 \rangle \langle \tilde{I}_2 \tilde{I}_3 \rangle \langle \tilde{I}_3 \tilde{I}_1 \rangle \right)^{1/2}} \right]. \quad (3.37)$$

La fase biespectral de (3.37) es usada en (3.35), para reconstruir la fase de Fourier por el método de la ecuación (3.36).

Note que en la ecuación (3.37) la medición de la correlación de *Speckles* solo provee el coseno de la fase biespectral. La principal consecuencia de esto es una ambigüedad de signo en la fase de Fourier reconstruida, llevando a un indeterminación en la respuesta temporal. Esto no es una limitación severa, considerando que la fase biespectral no cambia rápidamente de signo, el cual es el caso cuando la fase de Fourier es monotona. En este caso podemos tomar el inverso del coseno en (3.37) para producir valores positivos (o negativos) para la fase biespectral.

CAPÍTULO 4

Calibración experimental

El sistema modelo que se ha elegido para caracterizar es un bloque de partículas de teflón en la geometría de transmisión. Las propiedades de este material son bien conocidas y por tanto ofrece una excelente forma de probar que la técnica de reconstrucción de la respuesta temporal en base a al cálculo de funciones de correlación en intensidad de patrones de *Speckle* es robusta y por tanto confiable.

4.1 Patrones de ‘Speckle’medidos

El montaje experimental usado para obtener los patrones de ‘*Speckle*’ es el que se muestra en la figura 4.1. La fuente de luz monocromática es un laser sintonizable marca *TOPTICA Photonics* modelo DL 100 DFB de 782–785 nm y potencia máxima de 100 mW a 785 nm, que se usa para iluminar una muestra de partículas de Teflón y el detector es una cámara tipo Charged Coupled Device (CCD) de 640x480 pixeles, marca *PIXELFLY* con un rango dinámico de 12 bits.

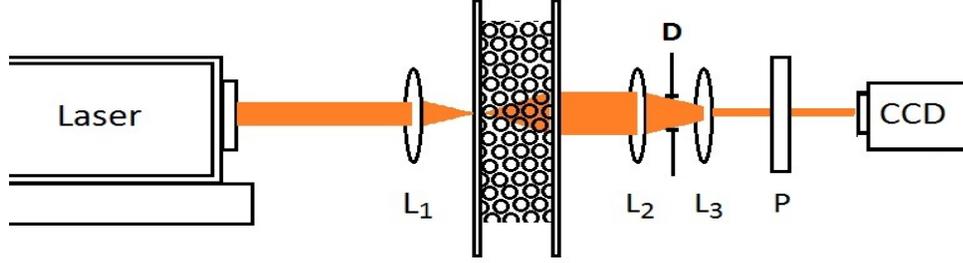


Figura 4.1: La lente L_1 colima el haz de luz tal que simule una fuente puntual en la entrada de la muestra, después de atravesar el medio las lentes L_2 y L_3 magnifican la señal de salida y la transportan al detector y el polarizador P discrimina la luz que no viene con la polarización inicial de la fuente

Después de adquirir un patrón de ‘*Speckle*’ de la muestra, calculamos el histograma de intensidades de la imagen corregida por las contribuciones de luz que no proviene del material. Para modelar el comportamiento de esta contribución no deseada, se propone un modelo empírico para la cantidad de luz medida, como la suma de las dos contribuciones, luz dispersada por el experimento y luz espuria[13].

$$I_m = I_t + I_n \quad (4.1)$$

Donde I_t es la intensidad real medida proveniente del patrón de *Speckles* e I_n es una contribución de ruido estadísticamente independiente. La distribución de intensidades del patrón de *Speckles* tiene la forma dada por

$$p_{I_t}(I_t) = \frac{1}{\langle I_t \rangle} \exp(-I_t / \langle I_t \rangle) \quad (4.2)$$

donde el promedio de la intensidad sobre el patrón de *Speckles* sin ruido esta dada por $\mu_I = \langle I_t \rangle$. La distribución de ruido sobre la imagen se modela como

$$p_{I_n}(I_n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_n} \exp\left[-\frac{1}{2} \frac{(I_n - \eta_I)^2}{\sigma_n^2}\right] \quad (4.3)$$

con una media dada por $\eta_I = \langle I_n \rangle$ y varianza dada por σ_n^2 . Por lo que la distribución de intensidades medidas I_m esta dada por la convolución de 4.2 y

4.3, suponiendo que ambas distribuciones son estadísticamente independientes, esta convolución resulta en

$$p_{I_m}(I_m) = \frac{1}{2\mu_I} \exp\left[-\frac{(I_m - \eta_I)}{\mu_I}\right] \times \exp\left[-\frac{1}{2} \frac{\sigma_n^2}{\mu_I^2} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{I_m - \eta_I - \sigma_n^2/\mu_I}{\sqrt{2}\sigma_n}\right)\right]\right] \quad (4.4)$$

Por lo que la media de la intensidad medida es $\langle I_m \rangle = \mu_I + \eta_I$. Haciendo uso de este modelo empírico para la distribución de intensidades medidas se encuentra que el desplazamiento en la intensidad η_I es proporcional a la media de la intensidad medida

$$\eta_I = \beta \langle I_m \rangle \quad (4.5)$$

Bajo este modelo, la intensidad real del patrón de *Speckles* tiene una intensidad media dada por

$$\mu_I = (1 - \beta) \langle I_m \rangle \quad (4.6)$$

Por lo que después de haber calculado el parámetro β para nuestra muestra podemos calcular la distribución de intensidades correspondientes solo a luz dispersada por el material, esto nos proporciona un estimado de la estadística de primer orden de la distribución de intensidades de los ‘Speckles’ y como puede observarse en la figura 4.2 esta modela una función de densidad de probabilidad exponencial negativa, comportamiento esperado para una estadística Gaussiana dada por la distribución 4.2[14, 16].

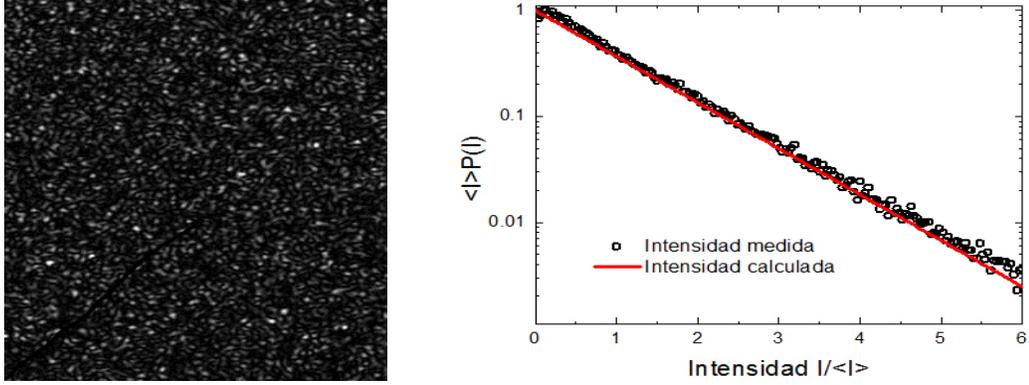


Figura 4.2: (Izquierda) Imagen típica de un patrón de ‘Speckles’, captadas a la salida del material por un sensor CCD. (Derecha) Histograma de la distribución de intensidades (símbolos abiertos) del patrón de ‘Speckle’.

4.2 Correlaciones en frecuencia medidas

Patrones de ‘Speckle’ fueron medidos para 300 frecuencias discretas del laser y con una frecuencia de muestreo $\delta\nu = 0.0886$ GHz, para calcular las funciones de correlación. Las correlaciones de segundo y tercer orden solo dependen de las diferencias en frecuencias entre las mediciones. Entonces, podemos promediar cada par (o triplete) del conjunto de datos disponible que representen una cierta distancia en frecuencia que es múltiplo entero de la frecuencia de muestreo y así mejorar la estadística en el cálculo de la función de correlación de segundo o tercer orden para un punto específico de la correlación.

Si denotamos a la intensidad normalizada de la muestra para cada incremento de frecuencia, como $\tilde{I}_i = \tilde{I}(\nu + i\delta\nu)$ para $i = 0, 1, \dots, N - 1$ donde N representa el número de muestras. Podemos calcular la función de correlación de segundo orden, promediando sobre todas las posibles combinaciones, como

$$\left\langle \tilde{I}(\nu) \tilde{I}(\nu + \Delta\nu) \right\rangle_{meas} = \frac{1}{N-i} \sum_{j=0}^{N-i-1} \left\langle \tilde{I}_j \tilde{I}_{j+i} \right\rangle \quad (4.7)$$

donde $\Delta\nu = i\delta\nu$ y $i = 0, 1, \dots, N - 1$, mediante este esquema podemos ver que la cantidad de pares usadas para calcular los puntos de la correlación a incrementos pequeños de frecuencia es mucho mayor que para incrementos grandes, lo que se traduce en menor cantidad de error para el muestreo a

frecuencias pequeñas que para frecuencias grandes. Si deseamos tener mejor estadística para los puntos mas alejados de la correlación debemos hacer medidas para valores de frecuencia mas alla del intervalo de interés.

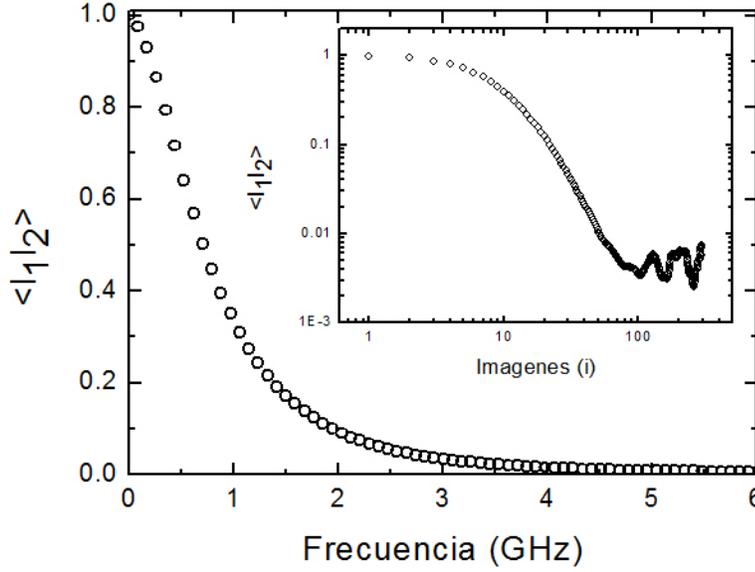


Figura 4.3: Función de correlación de segundo orden calculada de un conjunto de 300 imagenes con $\delta\nu = 0.0886$ GHz para un bloque de partículas de teflón de 9mm de espesor en geometría de trasmisión, en escala lineal y logaritmica.

En la imagen 4.3 se presenta la correlación de segundo orden calculada para 300 patrones de *Speckle*. Esta función nos proporciona una medida directa de $P(\nu)^2$

Para el cálculo de la función de correlación de tercer orden hacemos uso de un esquema que nos permita promediar cada triplete del conjunto de datos disponibles y asi disminuir el error debido al muestreo. Para formar cada punto de esta función de correlación elegimos todos las combinaciones de tripletes de imagenes que tengan la misma diferencia en frecuencia para $\Delta\nu_1$ y $\Delta\nu_2$. Entonces el esquema que nos permite hacer esto se escribe como

$$\left\langle \tilde{I}(\nu)\tilde{I}(\nu + \Delta\nu_1)\tilde{I}(\nu + \Delta\nu_1 + \Delta\nu_2) \right\rangle_{meas} = \frac{1}{N - i - j} \sum_{k=0}^{N-1-i-j} \left\langle \tilde{I}_k \tilde{I}_{k+i} \tilde{I}_{k+i+j} \right\rangle \quad (4.8)$$

donde $\Delta\nu_1 = i\delta\nu, \Delta\nu_2 = j\delta\nu$ y $i, j = 0, 1, \dots, N-1$, haciendo la consideracion que $i + j \leq N - 1$.

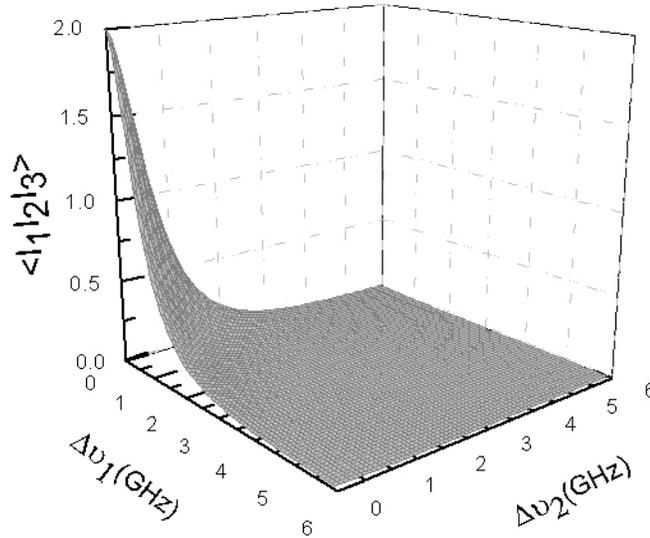


Figura 4.4: Función de correlación de tercer orden calculada de un conjunto de 300 imagenes. Estos datos se pueden utilizar para reconstruir la fase de Fourier de la respuesta temporal por medio de las ecuaciones 3.37 y 3.36

4.3 Bifase espectral

Como se vio en la sección 3.5, el bi espectro de una función $f(t)$ es la transformada de Fourier de su triple correlación temporal. Usando el bi espectro se puede calcular la fase de la respuesta temporal del medio usando la expresión 3.37, en la figura 4.5 se observa que la Bifase es una curva suave que crece monotonamente, esto en acuerdo con las consideraciones tomadas en la sección 3.5, en este caso se han tomado los valores positivos del inverso del coseno.

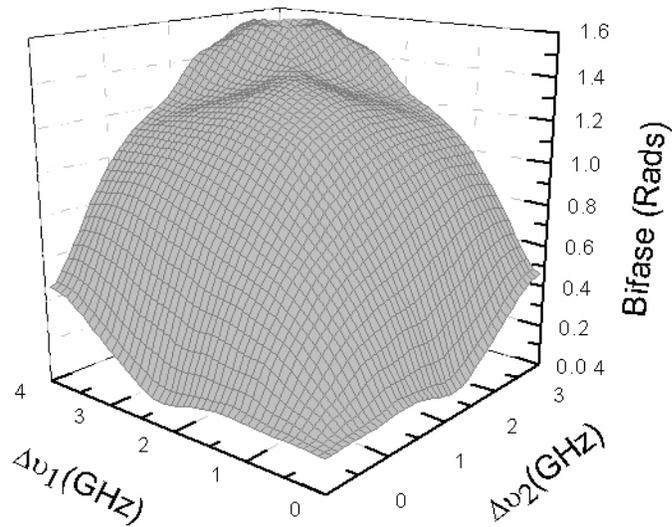


Figura 4.5: Bifase espectral calculada usando correlaciones de segundo y tercer orden.

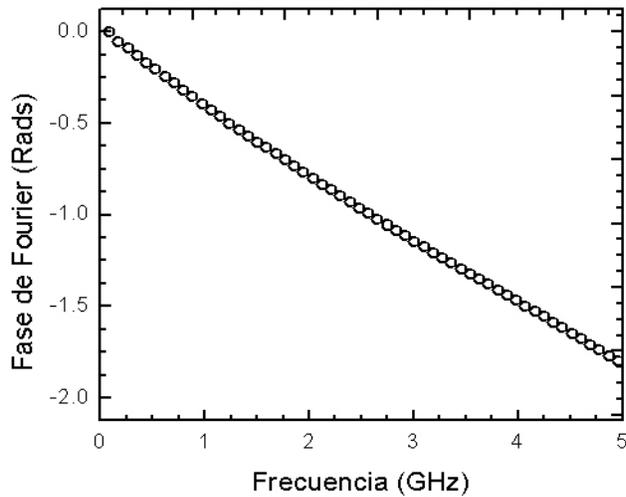


Figura 4.6: La fase de Fourier se puede calcular usando la forma recurrente 3.36

El cálculo de la fase se muestra en la figura 4.5, la fase calculada mediante el Biespectro tiene un grado de libertad, el efecto de escoger una fase inicial arbitraria es un desplazamiento del pulso de respuesta en el tiempo, esto no modifica la información de la señal, en cambio es útil para hacer un ajuste sobre el modelo teórico de difusión para tener una comparación.

4.4 Reconstrucción de la respuesta temporal

Para el cálculo de la respuesta temporal del medio aleatorio (bloque de partículas de Teflón de 9mm de espesor), primero determinamos la magnitud de Fourier usando las correlaciones de segundo orden y luego calculamos las fases de Fourier usando la información de la función de correlación de tercer orden.

- i. La magnitud de Fourier este relacionada directamente con la correlación de segundo orden y se calcula tomando la raíz cuadrada de la función de autocorrelación de intensidad en frecuencia de segundo orden calculada con la relación 4.7.

- ii. La fase de Fourier se calcula usando la fase biespectral, por medio de la relación de recurrencia 3.36.

Con la información de la magnitud y la fase de Fourier tenemos una función $F(\nu)$, que al aplicar una transformada de Fourier inversa 3.32, nos devuelve la información temporal.

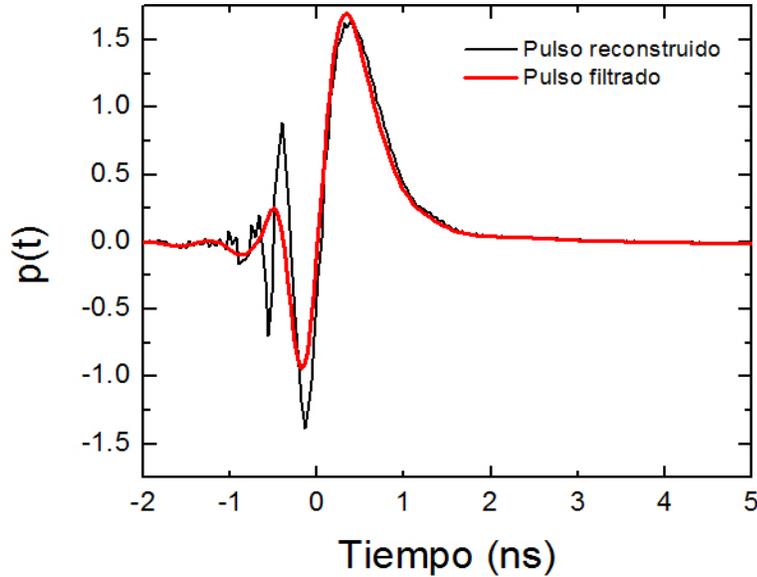


Figura 4.7: (*Negro*) Pulso reconstruido aplicando una iFFT a la señal compleja $F(\nu) = A(\nu) \exp(i2\pi\phi(\nu))$. (*Rojo*) Resultado despues de aplicar un filtro de Butterworth a la funcion $F(\nu)$ para una frecuencia de corte de 1.2 GHz y frecuencia de paro de 8 GHz

Para que la reconstrucción de la fase sea valida, debemos de cumplir las condiciones impuestas en la sección 3.5. Entre las cuales destacamos que la Bifase sea una función suave que crece monotonamente, pero debido a que los argumentos de la Bifase son las correlaciones de segundo y tercer orden, esta no tendrá el comportamiento esperado en puntos donde la estadística sea pobre, es decir en frecuencias altas. Para evitar este problema podemos utilizar un rango menor de frecuencias que las utilizadas para calcular las correlaciones, lo que nos lleva a una inevitable perdida de definición en el momento de aplicar la transformada inversa y obtener la respuesta temporal, entonces el perfil del pulso estará formado por pocos puntos. En cambio, si utilizamos las contribuciones de frecuencias altas y recontruimos el pulso, obtendremos a la salida una respuesta ruidosa, aquí podemos hacer uso de un filtro pasa bajas de tipo Butterworth. Asi podemos discriminar el ruido de las frecuencias altas donde la información de las correlaciones ya no representa el comportamiento del sistema, solo es ruido. La frecuencia de corte se ha elegido de tal forma que representa la sección de la Bifase que se comporta de la manera esperada. Lo antes mencionado se muestra en la figura 4.7, donde

se hace una comparación entre el pulso calculado usando todas las imágenes del conjunto de datos antes y después de aplicar el filtro pasa-bajas.

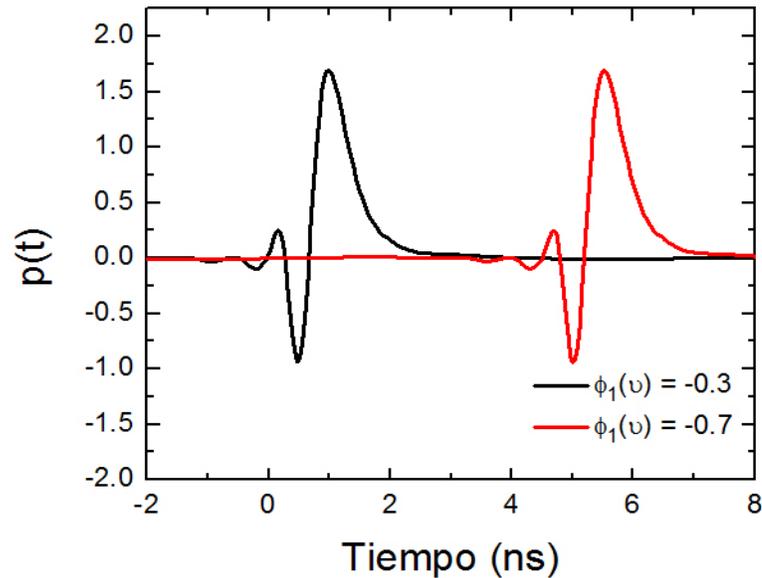


Figura 4.8: Ambos pulsos se reconstruyen usando todas las imágenes del conjunto de datos, son filtradas bajo los mismo parámetros, pero ambas tienen una fase inicial distinta, lo que provoca un corrimiento en el tiempo.

También mencionamos que la fase tiene un grado de libertad, al elegir una fase inicial $\phi_1(\nu)$ diferente para cada vez que se reconstruye la respuesta temporal, el resultado será un desplazamiento en el tiempo, todos los posibles pulsos en el tiempo tienen la misma Bifase asociada y es por esto que la Bifase es inmune a un corrimiento en el tiempo como se muestra en la figura 4.8.

4.5 Modelo difusivo para el transporte de la luz en medios ópticamente densos

Como se explicó en la sección 2.4, en un medio ópticamente grueso, es decir donde la dispersión múltiple domina, se puede considerar al transporte de luz como un proceso difuso, entonces la distribución de caminos aleatorios que un fotón debe recorrer antes de abandonar el material se puede ver como una función de densidad de energía.

La ecuación de difusión que gobierna a la densidad de flujo radiativo $\Phi(\mathbf{r}, t)$ (en unidades de Wm^{-2}) es[24]

$$\frac{\partial}{\partial t}\Phi(\mathbf{r}, t) + v\mu_a\Phi(\mathbf{r}, t) - \nabla \cdot D_l\nabla\Phi(\mathbf{r}, t) = vS_0(\mathbf{r}, t) \quad (4.9)$$

Donde v es la velocidad de transporte, $D_l = \frac{v}{3(\mu'_s + \mu_a)}$ es el coeficiente de difusión (en unidades de m^2s^{-1}), μ'_s es el coeficiente de dispersión reducido y μ_a es el coeficiente de absorción (ambos en unidades de m^{-1}), y $S_0(\mathbf{r}, t)$ representa a la fuente. Para que la aproximación de difusión sea válida debe cumplirse que $\mu'_s \gg \mu_a$.

Debe señalarse que las condiciones requeridas para obtener una estadística Gaussiana circular compleja de media cero describiendo al campo de ‘*Speckle*’ son independientes de aquellas requeridas para que el modelo de difusión sea válido. Por ejemplo, una sección de vidrio con superficie rugosa produce un campo dispersado con estadística Gaussiana, pero el transporte de luz no es bien descrito por el modelo de difusión. Entonces, las técnicas de correlaciones de segundo y tercer orden en general no se limitan a los medios aleatorios en el régimen de difusión.

Podemos usar funciones de *Green* para resolver la ecuación 4.9, haciendo las consideraciones pertinentes. Primero asumimos que todos los fotones incidentes son dispersados a una distancia

$$z_0 = [(1 - g)\mu_s]^{-1} \quad (4.10)$$

Esta aproximación es correcta cuando estamos interesados en observar el flujo de fotones lejos de la fuente. Además de esto asumiremos que el flujo de fotones es tal que $\Phi(\mathbf{r}, t)|_{z=d} = 0$ en la interfaz de la frontera física[17], esta condición de frontera puede ser impuesta añadiendo una fuente de energía negativa como se muestra en la figura 4.9. Esta fuente puede ser simulada por el método de las imágenes, en el cual, fuentes positivas que son funciones impulso en el espacio y tiempo son colocadas en $z = a + 2Ln$ y fuentes iguales pero negativas son colocadas en $z = -a + 2Ln$, donde n puede variar para todos los enteros y $a \ll L$.

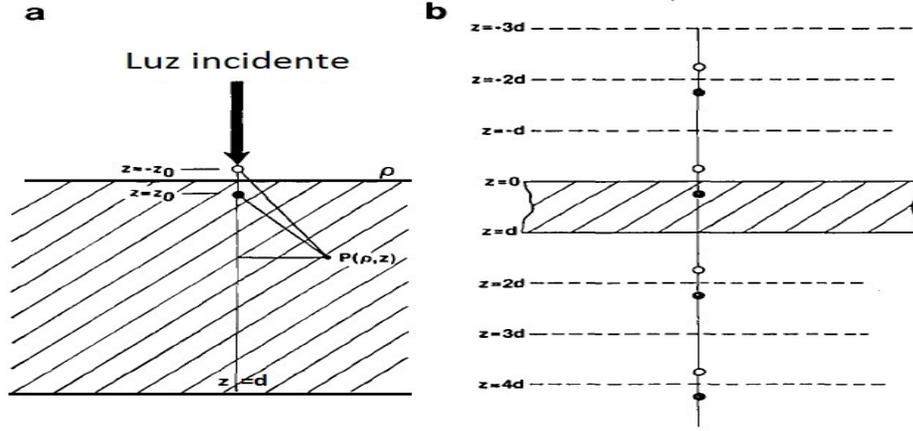


Figura 4.9: (a) Una fuente positiva y negativa en un medio semi-infinito. (b) Posición de las fuentes cuando se resuelve la ecuación de difusión usando la técnica de las imágenes.

Entonces calculamos la distribución en $L - a$, que es esencialmente la luz transmitida. Se puede considerar que el detector se encuentra en el campo lejano, así que la luz emerge de varios puntos y es necesario integrarla sobre la superficie considerada. Entonces tenemos

$$T(t, L) = \frac{\exp(-t/\tau_a)}{(4\pi D_1 t)^{1/2}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left\{ \exp \left[- \frac{[(2n-1)L - 2a]^2}{4D_1 t} \right] - \exp \left[- \frac{[(2n-1)L]^2}{4D_1 t} \right] \right\} \quad (4.11)$$

Donde n es la cantidad de dipolos que colocamos para simular las fuentes y los sumideros de fotones. Solo los primeros 3 dipolos contribuyen significativamente al ajuste de la luz transmitida. La forma del pulso es insensible para valores de $a \ll L$.

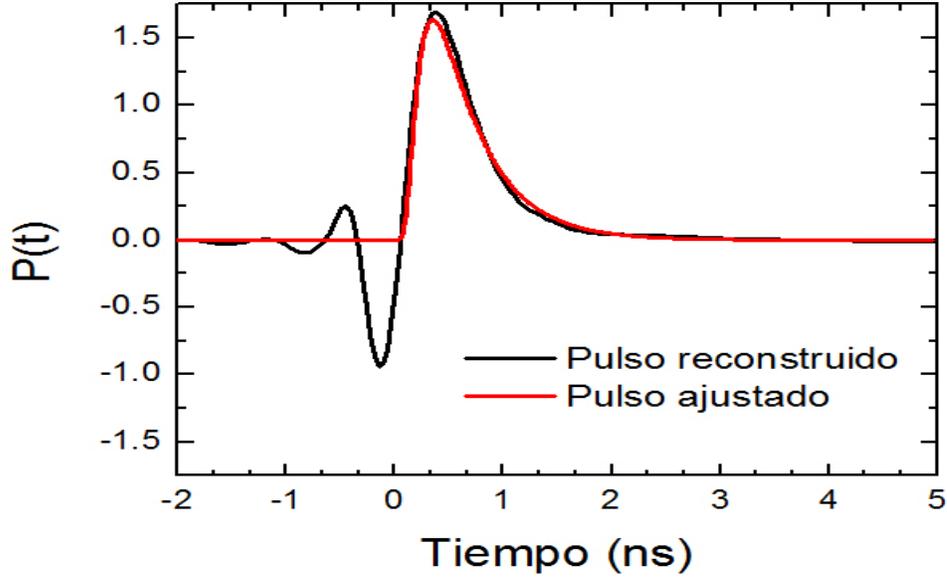


Figura 4.10: Usando el metodo de Levenberg-Marquardt para la minimización de error con minimos cuadrados ajustamos la curva del pulso reconstruido, aquí el parametro de ajuste es el camino libre promedio de transporte (ℓ^*) y como se puede observar hay un buen acuerdo para la señal reconstruida y el pulso del modelo de difusión para un bloque de 9mm de espesor cuando la velocidad promedio de la luz en el material es $0.7c$ y $\ell^* = 274\mu m$.

Como ultima etapa de verificación, reconstruiremos la función de autocorrelación en intensidad de segundo orden usando un modelo teórico que describe las correlaciones de largo alcance para luz coherente en un medio aleatorio[27].

$$\langle I(\omega)I(\omega + \Delta\omega) \rangle = \frac{x^2}{\cosh(2x) - \cos(2x)} \quad (4.12)$$

$$\text{donde } x = \left(\frac{\Delta\omega}{D_l} \right)^{1/2} \quad (4.13)$$

$$\text{y } D_l = \frac{v\ell^*}{3} \quad (4.14)$$

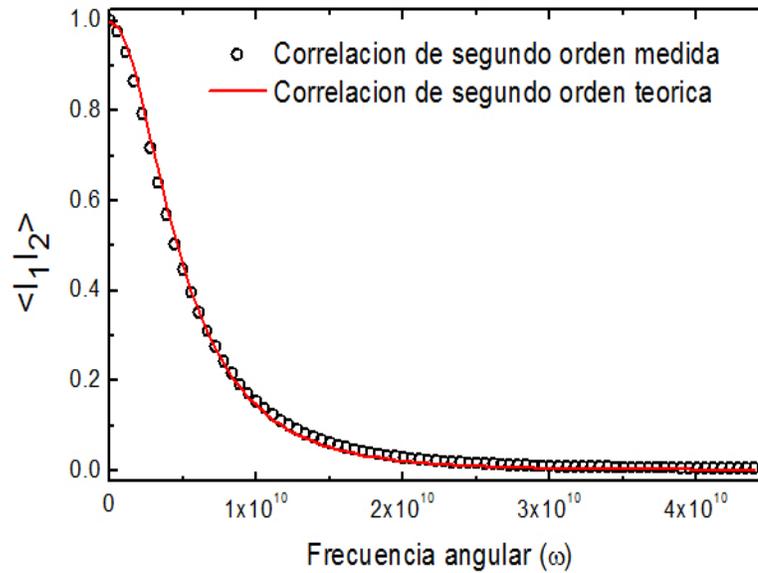


Figura 4.11: Para construir esta función de correlación se ha usado el parámetro obtenido del ajuste con el modelo de difusión, esto es $\ell^* = 274\mu m$ así como los demás parámetros usados, anchura de 9 mm y velocidad de la luz promedio en el material de $0.7c$ [27]

Con esto hemos calibrado la técnica de reconstrucción de la respuesta temporal para un medio formado por partículas de Teflón, nuestros cálculos han reportado una $\ell^* = 274\mu m$ que en comparación con el valor conocido de $\ell^* = 288\mu m$ [27] para este material así que tenemos un 4% de error relativo.

CAPÍTULO 5

Materiales fotonicos amorfos

La propagación de la luz en materiales dieléctricos micro estructurados es un tema de investigación en constante desarrollo, los avances recientes en este tema nos permiten ahora diseñar materiales compuestos, buscando que eventualmente se constituyan como los bloques elementales de los futuros circuitos fotonicos. El rápido avance en el desarrollo de este tipo de materiales permite que cada vez más laboratorios tengan acceso a ellos, lo cual genera la necesidad de desarrollar nuevas técnicas ópticas de caracterización y análisis que permitan extender la comunidad de investigación en el campo de la fotonica. En este capítulo aplicamos la técnica de reconstrucción de la respuesta temporal, presentada en el capítulo anterior, a materiales de interés fotonico; películas autoensambladas de partículas de TiO_2 . Una vez determinada la respuesta temporal para muestras de diferentes espesores, hacemos uso de la aproximación difusiva para el transporte de la luz en medios opacos para estimar propiedades ópticas de los sistemas: coeficiente de difusión de la luz y longitud de absorción.

5.1 Películas delgadas de TiO_2

El dióxido de titanio es un material semiconductor que puede ser encontrado en dos estados *rutilo* ($\rho = 4.25 \text{ g/cm}^3$) y *anatasa* ($\rho = 3.89 \text{ g/cm}^3$). Los anchos de banda correspondientes al *rutilo* y *anatasa* en bulto son 3.0eV y 3.2eV respectivamente. El índice de refracción del dióxido de Titanio depende ligeramente de la longitud de onda, tiene su máximo a una longitud de onda de 400 nm.

Las películas delgadas se forman al sedimentar partículas de TiO_2 sobre substratos de vidrio. Si la sedimentación se hace lo suficientemente rápido, las partículas no tienen tiempo de aglomerarse formando fases cristalinas sino más bien formando una película homogénea delgada de partículas aleatoriamente distribuidas, donde el factor de empaquetamiento de las partículas va del 0.64-0.74 de la fracción de volumen total.

Después de un proceso de centrifugación y secado se puede observar que el depósito logrado consiste en un sistema auto ensamblado que es más parecido a un cristal que a un sistema desordenado y además el secado posterior puede inducir esfuerzos en el material tal que se puedan presentar fracturas superficiales. Para evitar esta clase de inconvenientes se ha observado que si el proceso de centrifugado y secado se realiza de manera simultánea, se pueden obtener películas delgadas homogéneas libres de fracturas, donde el empaquetamiento de partículas es aleatorio.

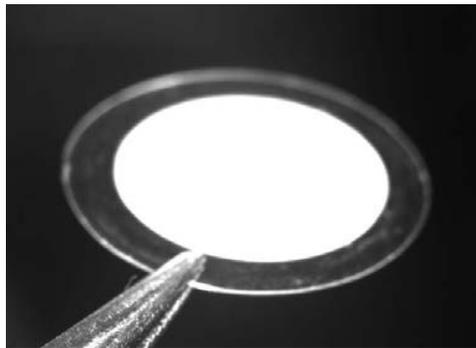


Figura 5.1: La centrifugación se realiza típicamente por 20 minutos a 40°C y un fuerza de centrifugado de 3770g.

En este caso se han sedimentado partículas de 845 ± 59 nm de diámetro siguiendo el procedimiento reportado en[28], como se observa en la imagen de *Scanning electron microscopy* (SEM) la muestra es bastante monodispersa y las partículas aproximadamente esféricas[29].

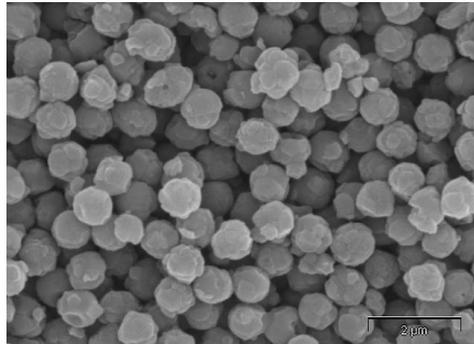


Figura 5.2: Imagen de SEM de partículas sedimentadas de TiO_2 en donde se puede observar que su tamaño promedio es ≈ 845 nm.

En la figura 5.2 observamos una muestra de partículas de TiO_2 sedimentadas sobre un sustrato de vidrio. Para preparar este sedimento se añaden partículas en solución coloidal a 1 ml de agua desionizada, centrifugamos por 20 minutos a 3770 g y luego sometemos a la película a un secado posterior en horno a $60^\circ C$.

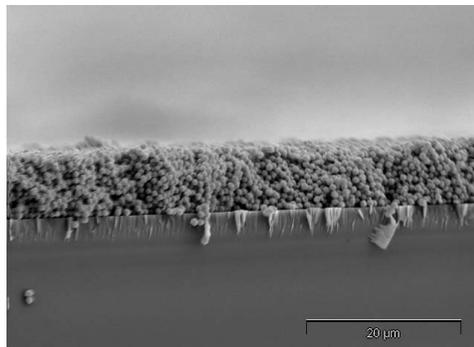


Figura 5.3: Mediante imágenes de SEM se puede estimar el espesor de las películas usadas, en este caso se muestra una película de $8.8 \pm 1.5 \mu m$ de espesor.

5.2 Autocorrelación espacial

Asumiendo que la estadística sobre los *Speckles* es ergódica, es decir, que los promedios espaciales y los promedios en frecuencia son equivalentes, entonces las cantidades descritas en las relaciones 3.17 y 3.18 se estiman realizando un muestreo espacial de la intensidad en el patrón de *Speckles*. Para asegurar una buena estadística en el cálculo de las correlaciones en frecuencia, el área de detección (tamaño de pixel en el CCD) debe ser pequeño comparado con el tamaño de un *Speckle* en plano del CCD[30, 31]. El tamaño promedio de los *Speckles* se calcula haciendo uso de la función de autocorrelación espacial, la cual se define como[16]

$$R_I(\Delta r) = \frac{\langle I(r_0 + \Delta r)I(r_0) \rangle}{\langle I \rangle^2}, \quad (5.1)$$

Donde $I(r_0)$ es la intensidad del patrón de *Speckles* en una cierta posición espacial r_0 en el plano de la imagen y Δr es un pequeño desplazamiento espacial. Para nuestro arreglo óptico, se calcula la $R_I(\Delta r)$ correspondiente a un campo electromagnético Gaussiano circular complejo en el plano objeto usando la teoría de la difracción escalar bajo la aproximación de *Fresnel*[32, 33]

$$R_I(\Delta r) = 1 + \left| 2 \frac{J_1\left(\frac{\pi D \Delta r}{M \lambda f}\right)}{\frac{\pi D \Delta r}{M \lambda f}} \right|^2, \quad (5.2)$$

donde $J_1(x)$ es la función de Bessel de primer tipo y de primer orden. En la figura 5.4 se muestra la función de autocorrelación de un patrón de *Speckles* típico en nuestros sistemas en comparación con el modelo teórico de la ecuación 5.2, donde $f = 75mm$, $\lambda = 782nm$, $D = 6mm$ y $M \approx 4$.

Para asegurarnos que la estadística es buena se requiere un gran número de mediciones estadísticamente independientes, para nuestras mediciones esto significa tener un gran número de *Speckles* en una imagen obtenida por el CCD. El número de *Speckles* independientes entonces está dado por la relación entre el área del CCD y el área promedio de un *Speckle*.

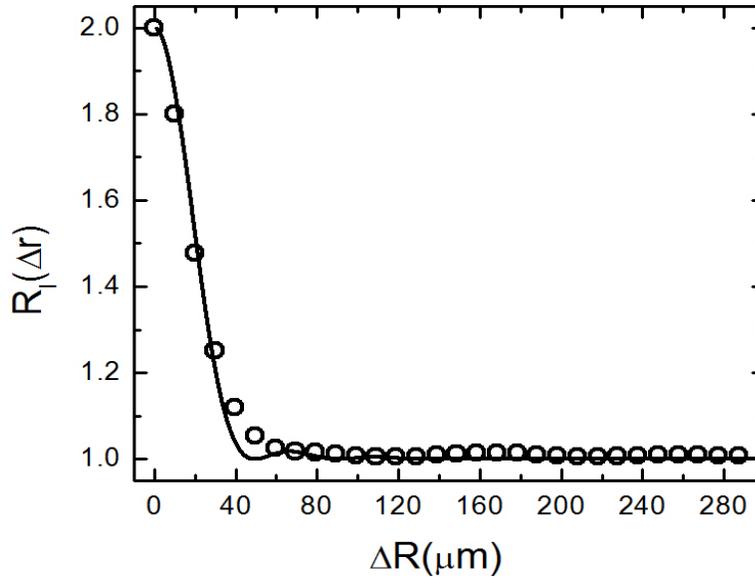


Figura 5.4: Función de autocorrelación determinada para una de las películas de partículas de TiO_2 . El diámetro promedio de los *Speckles*, tomado como la distancia de $\Delta r = 0$ al primer mínimo en la función, se estima en aproximadamente $100 \mu\text{m}$.

Si el tamaño promedio del *Speckle* es aproximadamente $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ y el área del detector es de $6.33 \text{ mm} \times 4.75 \text{ mm}$, entonces tenemos aproximadamente 3000 muestras estadísticamente independientes de la intensidad en un patrón de *Speckles* medido por una CCD de 640×480 pixeles con tamaño de pixel de $9.9 \mu\text{m} \times 9.9 \mu\text{m}$.

Uno puede ajustar el tamaño del *Speckle* ajustando el diámetro de apertura (D) del filtro espacial. Sin embargo, si el tamaño promedio empieza a ser cercano al tamaño del pixel, entonces los *Speckles* estarán subdeterminados y por tanto mal representados. Lo anterior hace recomendable tener un tamaño promedio de *Speckle* que sea entre 10 y 20 veces el tamaño del pixel.

5.3 Correlación de segundo orden medida

Patrones de *Speckle* fueron medidos usando el arreglo óptico mostrado en el esquema 4.1 para bloques de partículas esféricas de alto índice de refracción (≈ 2.5 en bulto) empaquetadas de forma aleatoria ($\Phi \approx 0.6$) con los siguientes espesores $L = 43\mu\text{m}$, $54\mu\text{m}$, $71\mu\text{m}$ y $86\mu\text{m}$. En cada caso se han medido patrones de *Speckle* para 700 frecuencias discretas del laser, con una frecuencia de muestreo de $\delta\nu = 0.9267\text{GHz}$, para el cálculo de las funciones de correlación. Luego la función de correlación se construye usando la relación dada en 4.7, donde cada punto de la función se calcula usando todas las posibles combinaciones del conjunto de datos para cada uno de los bloques de partículas de TiO_2 .

Debido al esquema dado en 4.7, los puntos de la función de correlación que se construyen en base a pequeñas diferencias de frecuencias tendrán menor cantidad de error debido al muestreo, ya que existen mas pares para promediar. Entonces, cuando se necesita calcular puntos lejanos en la función de correlación se debera considerar que estos son muy susceptibles al ruido.

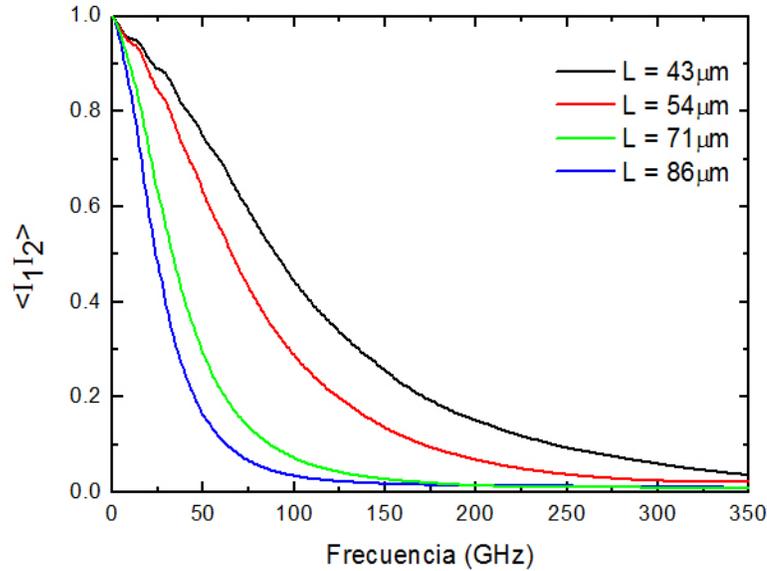


Figura 5.5: Funciones de correlación en frecuencia de segundo orden construidas a partir de 4.7 para los cuatro bloques de partículas de TiO_2 , de espesores: $L = 43\mu\text{m}$, $54\mu\text{m}$, $71\mu\text{m}$ y $86\mu\text{m}$, de arriba a abajo.

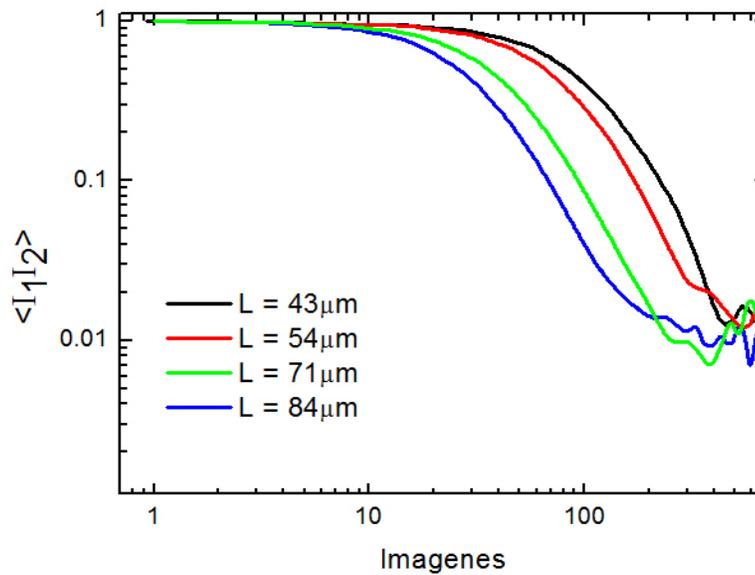


Figura 5.6: Funciones de correlación en frecuencia de segundo orden en escala logarítmica para cuatro bloques de partículas de TiO_2 , de espesores: $L = 43 \mu\text{m}$, $54 \mu\text{m}$, $71 \mu\text{m}$ y $86 \mu\text{m}$, de arriba a abajo.

Una consecuencia directa de considerar los puntos más alejados de la función de correlación para la reconstrucción de la respuesta temporal es la ambigüedad que se origina al no poder determinar la Bifase espectral con la relación dada en 3.37 debido a que las fluctuaciones de las colas de las correlaciones de segundo orden presentan valores para los cuales el coseno inverso está indeterminado. Por esto es aconsejable tomar datos más allá de la frecuencia de interés para así asegurar una cantidad suficiente de datos a ser promediados.

5.4 Correlación de tercer orden medida

El cálculo de la función de correlación de tercer orden en la intensidad se realiza haciendo uso del esquema presentado en 4.8, el cual hace uso de todas las combinaciones de tripletes de imágenes que tienen una misma separación en frecuencia. Este esquema de cálculo de la correlación de tercer orden es simétrico, así que solo un octante de la función contiene información relevante.

El hecho de que la correlación de tercer orden en la intensidad aporte información para la reconstrucción de la respuesta temporal viene de la relación que esta tiene con el el biespectro de la función $p(t)$ como se definió en 3.33.

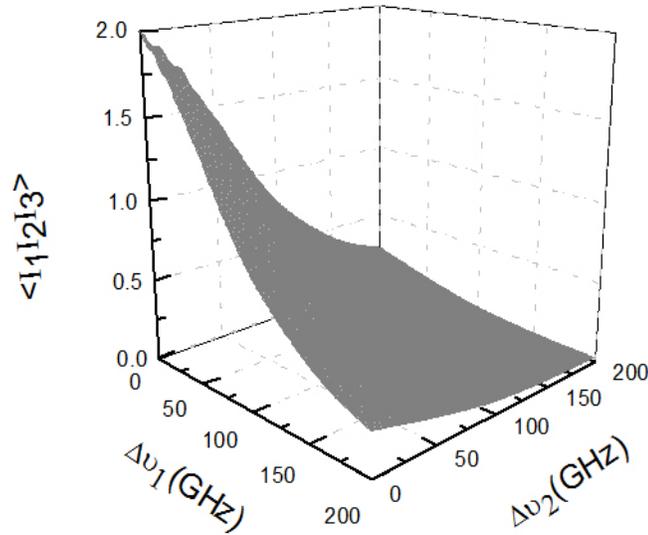


Figura 5.7: Función de correlación de tercer orden en la intensidad, calculada a partir del esquema en 4.8 para el bloque de partículas de TiO_2 de $43 \mu m$ de espesor.

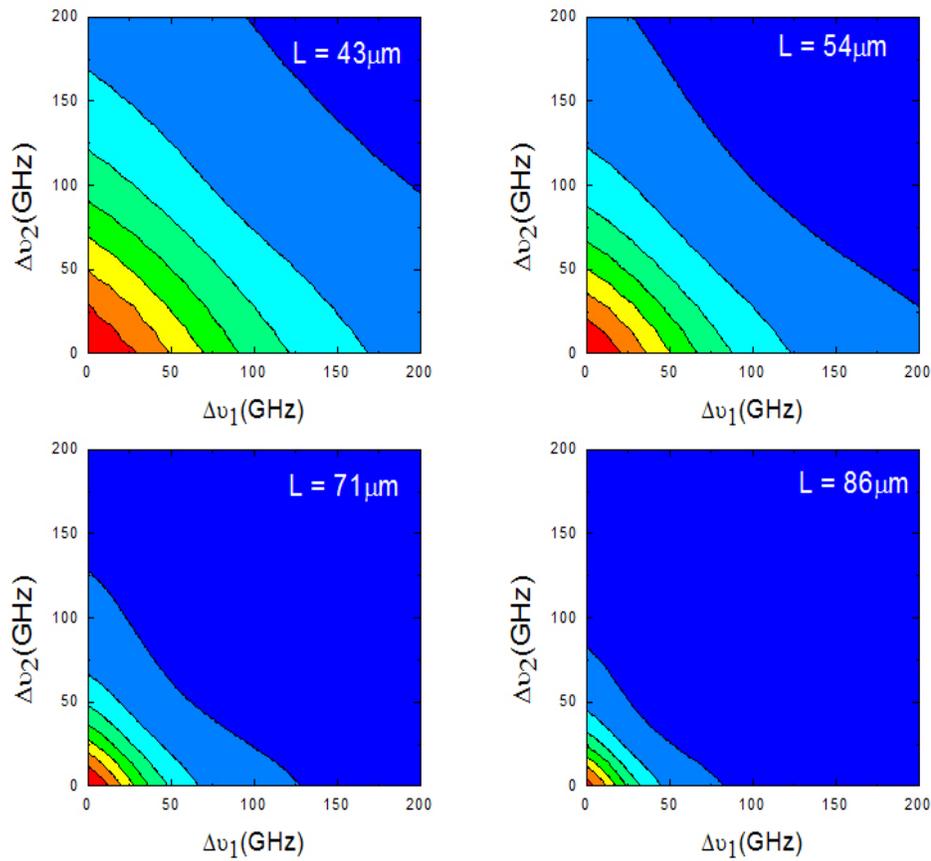


Figura 5.8: Comparación entre las correlaciones de tercer orden medidas para los bloques de partículas de TiO_2 de espesores: $L = 43\mu\text{m}$, $54\mu\text{m}$, $71\mu\text{m}$ y $86\mu\text{m}$.

En la figura 5.8 se puede observar la variación de la correlación de tercer orden para cada una de las películas de TiO_2 . Como se puede observar, el cambio del espesor de la película se refleja en correlaciones de menor alcance conforme el espesor decrece.

5.5 Bifase espectral

Cuando la Bifase espectral se reconstruye usando la relación dada en 3.37, se debe escoger un signo, esto no representa un problema si se considera que la Bifase crece monotonamente. Cuando se reconstruye la respuesta temporal, la cantidad de puntos de las correlaciones que se usan para hacer los calculos influye en resolución del pulso. Cuantos más puntos se usen mayor será la resolución del pulso, pero también debe mencionarse que los puntos que corresponden a las frecuencias altas usualmente tienen una cantidad de ruido importante. Así que para tener la mayor resolución se usan todos los puntos y después se filtra el pulso en la frecuencia eligiendo un filtro pasabajas tal que la frecuencia de corte se fije a la frecuencia a la que la Bifase ya no crece monotonamente.

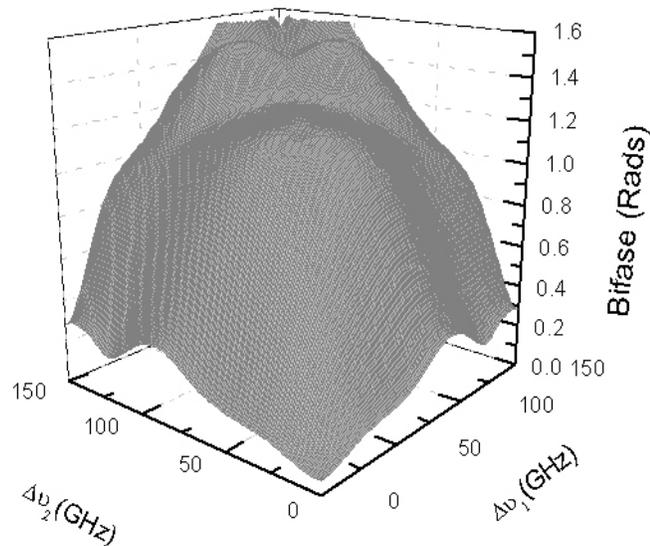


Figura 5.9: Bifase calculada para el bloque de partículas de TiO_2 de espesor $43 \mu\text{m}$, usando las correlaciones de segundo y tercer orden por medio de la relación dada en 3.37.

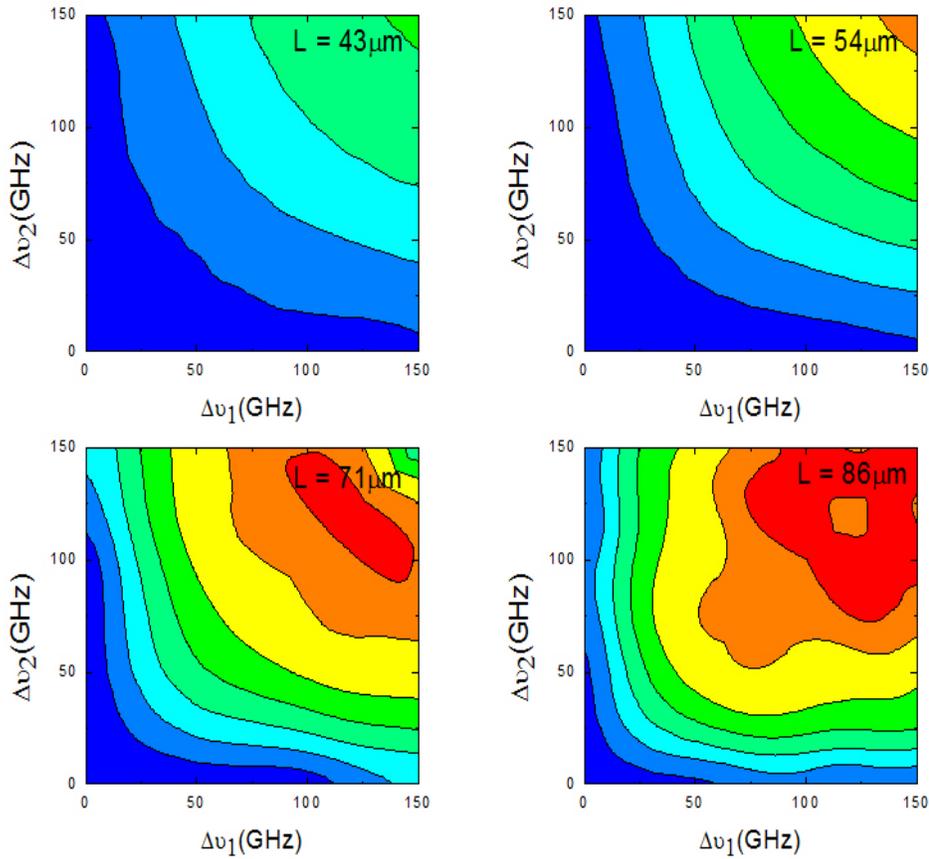


Figura 5.10: Comparación entre las bifases para los bloques de partículas de TiO_2 de espesores: $L = 43 \mu\text{m}$, $54 \mu\text{m}$, $71 \mu\text{m}$ y $86 \mu\text{m}$.

En la figura 5.10 podemos observar que conforme la frecuencia se incrementa, la Bifase para cada una de las partículas de TiO_2 aumenta el ruido, esto se reflejará en componentes de frecuencia que no contribuyen a la respuesta temporal y además en el deterioro de la señal reconstruida.

5.6 Magnitud y fase de *Fourier*

Para reconstruir la respuesta temporal de un medio aleatorio, primero se determina la magnitud de *Fourier* de la distribución de los tiempos de vuelo usando correlaciones de segundo orden en la intensidad de acuerdo con la ecuación 4.7. Después, combinando las correlaciones de segundo y tercer orden en la intensidad para construir la bifase espectral 3.37 y haciendo uso de la relación recursiva de la ecuación 3.36 se calcula la fase de *Fourier* faltante. Finalmente combinamos ambos resultados, magnitud y fase, para efectuar una transformada de *Fourier* rápida inversa y así obtener la respuesta temporal del medio ante una perturbación óptica instantánea.

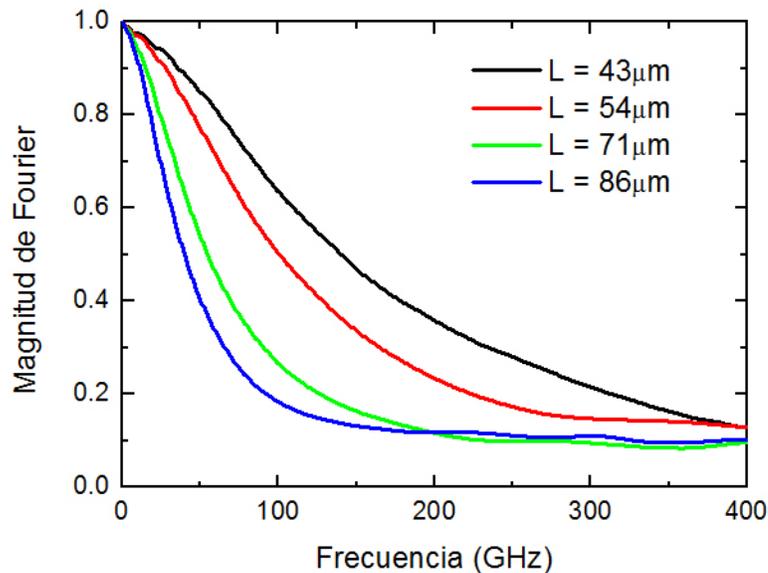


Figura 5.11: La magnitud de *Fourier* de la distribución de los tiempos de vuelo se relaciona directamente con la correlación de segundo orden mediante la ecuación 3.17

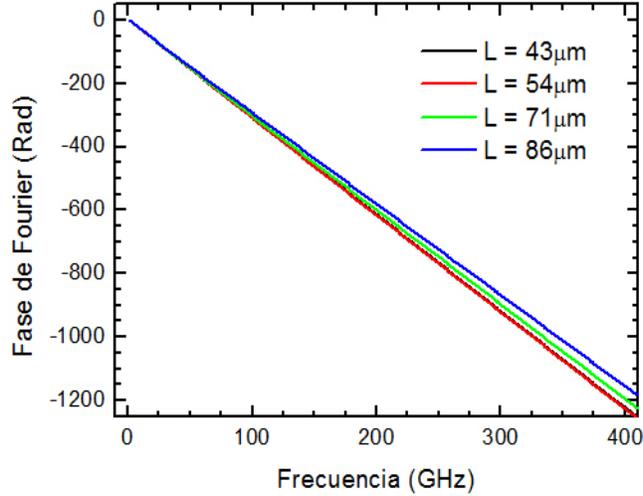


Figura 5.12: La fase de *Fourier* se construye como una combinación lineal de fases y bifases espectrales por medio la relación dada en la ec. 3.36

Con la magnitud y fase de *Fourier* determinados, podemos reconstruir la respuesta temporal aplicando una transformada inversa. Ya que la distribución de tiempos de vuelo fue definida como

$$f(t) = \int_{-\infty}^{\infty} dt F(\nu) \exp j\phi(\nu) \quad (5.3)$$

donde $F(\nu)$ es la magnitud de *Fourier* relacionada con la raíz cuadrada de la función de correlación en la intensidad de segundo orden y $\phi(\nu)$ la fase de *Fourier* que se calcula mediante las relaciones 3.37 y 3.36.

En el caso de las partículas de TiO_2 se debe considerar el parámetro de la absorción cuando se usa el modelo de difusión para hacer el ajuste sobre el pulso filtrado, en este caso no conocemos el valor efectivo de la velocidad de la luz en el medio, así que el ajuste se lleva a cabo sobre el coeficiente de difusión más que sobre ℓ^* . Entonces, para hacer uso del modelo de luz difusa 4.11 en este tipo de sistemas, tenemos dos parámetros a determinar, el coeficiente de difusión de la luz y el tiempo de absorción.

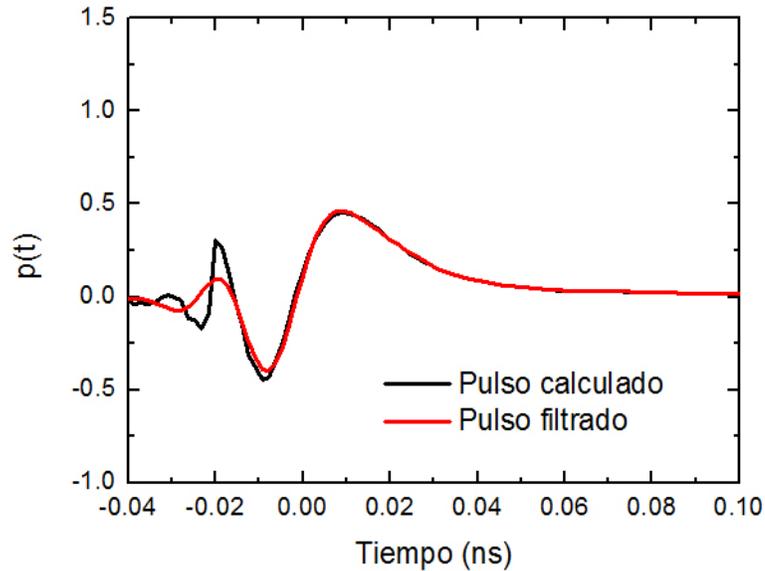


Figura 5.13: Pulso reconstruido usando 700 puntos de las funciones de correlación (negro) y pulso obtenido después de aplicar un filtro pasabajos de Butterworth(rojo) para el bloque de partículas de TiO_2 de $86\mu\text{m}$ de espesor.

En la figura 5.14 se muestra el ajuste sobre el pulso reconstruido para la muestra de $86\mu\text{m}$ de espesor, en este caso el valor del coeficiente de difusión es $49.5\text{m}^2/\text{s}$ y el tiempo de absorción es de $375.4 \times 10^{-12}\text{seg}$.

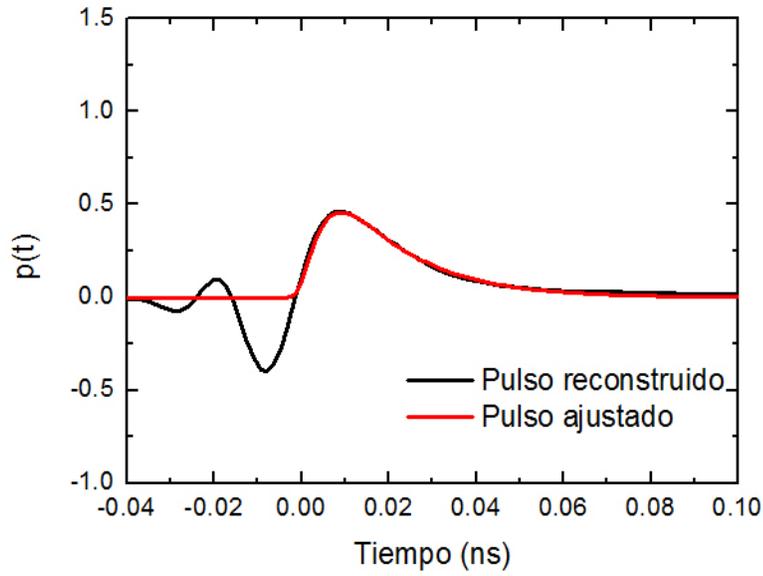


Figura 5.14: Pulso ajustado usando la expresión dada en 4.11 para la luz transmitida según el modelo de difusión de fotones, para el bloque de partículas de TiO_2 de $86\mu\text{m}$ de espesor.

5.7 Respuesta temporal reconstruida

A continuación, la figura 5.15 muestra las respuestas temporales, pulsos resultantes, obtenidas para cada una de las películas de partículas de TiO_2 estudiadas. De aquí podemos observar que el tiempo de vuelo fotónico (posición del máximo en el pulso reconstruido) se desplaza a valores más grandes conforme aumenta el espesor de la película, donde el tiempo más largo corresponde al bloque más grueso $L = 86 \mu\text{m}$. Este resultado nos indica que el parámetro más importante para determinar la forma de los pulsos obtenidos es el espesor de las muestras. Esto se anticipaba dado que todas las películas son del mismo material compuesto, aire más partículas de TiO_2 en la misma proporción, por lo que poseen las mismas propiedades ópticas intrínsecas; ej. índice de refracción efectivo.

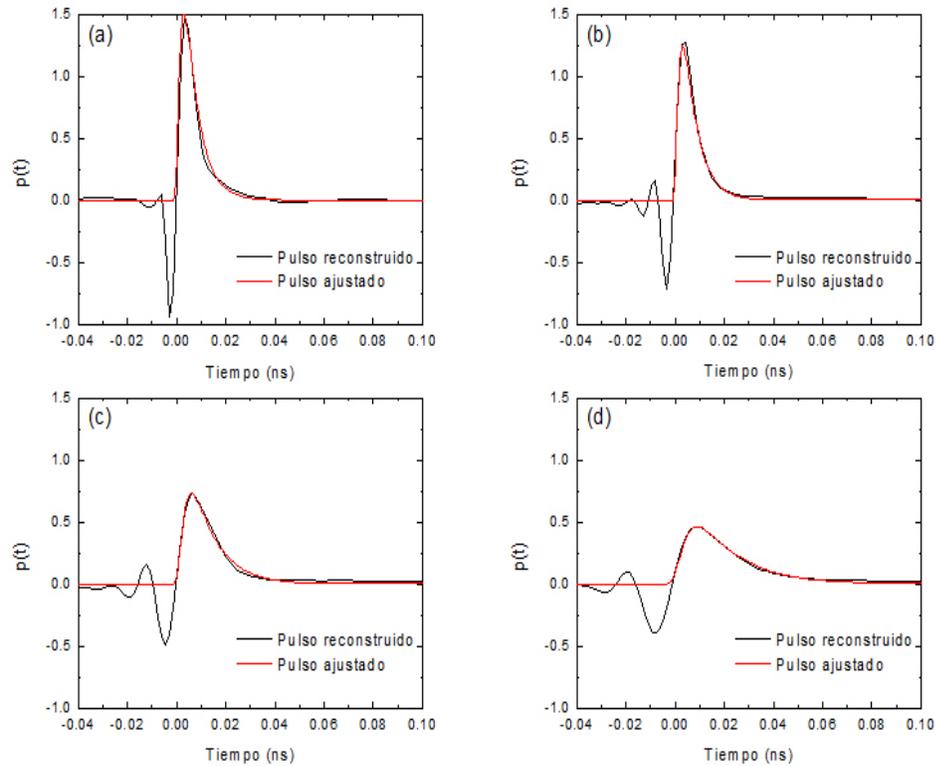


Figura 5.15: Comparación entre las respuestas temporales de los bloques de partículas de TiO_2 con el modelo de difusión para las muestras (a) $43 \mu\text{m}$, (b) $54 \mu\text{m}$, (c) $71 \mu\text{m}$ y (d) $86 \mu\text{m}$.

En la reconstrucción de la respuesta temporal, la fase lineal arbitraria ha sido escogida de forma que los pulsos reconstruidos coincidan en el instante inicial con el pulso calculado, utilizando la forma analítica de la aproximación difusiva, ilustrado en el ejemplo mostrado en la figura 5.14. Los resultados de la figura 5.15 muestran un acuerdo bastante bueno con los predichos por aproximación difusiva 4.11. Las oscilaciones en la respuesta temporal reconstruida son artefactos debidos al rango finito de frecuencias sobre el cual se ha reconstruido la fase de *Fourier*.

5.8 Respuesta temporal y densidad óptica en medios fotónicos amorfos

El tiempo de caída de la cola del pulso reconstruido puede ser descrito por una exponencial simple con razón de decaimiento $1/\tau$, que es el valor propio más pequeño de la ecuación de difusión en presencia de absorción[18].

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_a} + \frac{\pi^2 D_l}{L^2} \quad (5.4)$$

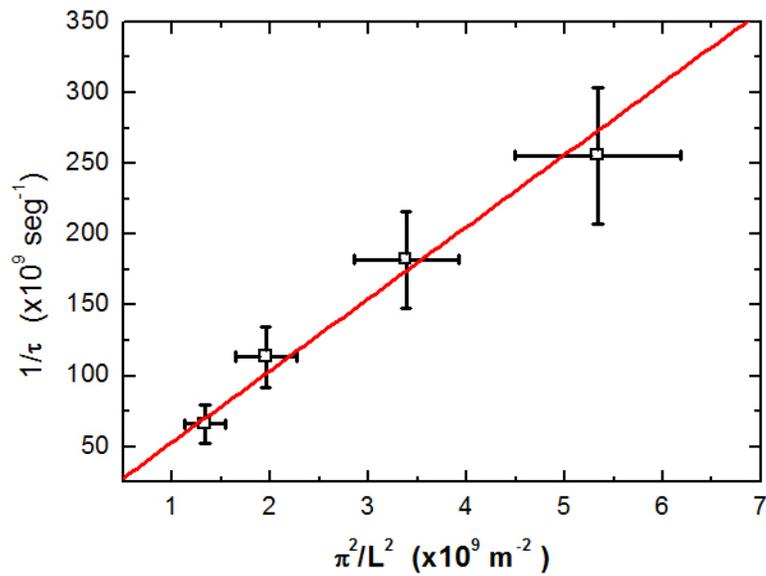


Figura 5.16: Los puntos representan la razón del decaimiento exponencial de la cola de los pulsos vs. $1/L^2$. La línea es un ajuste a los datos con la ecuación 5.4.

La figura 5.16 muestra la razón de decaimiento, $1/\tau$, para todas las películas estudiadas aquí y radiación incidente $782 \text{ nm} < \lambda < 785 \text{ nm}$, donde la línea es un ajuste a los datos con la ecuación 5.4. De este ajuste, el valor de la pendiente representa al coeficiente de difusión efectivo de la luz, $D_l = 50.7 \text{ m}^2/\text{s}$, y el valor de la ordenada en el origen al tiempo de absorción en el medio, $\tau_a = 401 \times 10^{-12} \text{ s}$. Estos valores presentan un buen acuerdo con los ajustes independientes de los pulsos usando el modelo difusivo.

Finalmente, podemos concluir que nuestros resultados demuestran que la respuesta temporal ante perturbaciones ópticas instantáneas se pueden describir por el modelo de difusión de fotones en medios ópticamente densos. Aún más, al comparar nuestros experimentos de fluctuaciones de la intensidad con un modelo mesoscópico, hemos corroborado la relación intrínseca existente entre las propiedades microscópicas espectrales con las propiedades estadísticas temporales del transporte de luz en medios dieléctricos aleatorios.

CAPÍTULO 6

Conclusiones y perspectivas

En este trabajo de Tesis se ha presentado una alternativa experimental para el estudio de las propiedades ópticas en medios ópticamente densos. Nuestra propuesta hace uso de técnicas que explotan la información estadística contenida en el patrón de *Speckles* constituido por la luz dispersada por el medio.

En específico, hemos construido la respuesta temporal (pulso de respuesta) ante una perturbación óptica instantánea de sistemas auto ensamblados (películas delgadas) de nanopartículas esféricas de dióxido de Titanio mediante el uso de funciones de correlación, en corrimientos de frecuencia, de segundo y tercer orden para la intensidad detectada en el campo lejano. La respuesta temporal así reconstruida no requiere de información *a priori* sobre la forma del pulso de respuesta, ya que toda la información necesaria está contenida en las correlaciones espectrales de segundo y tercer orden. Excepto por un corrimiento arbitrario de la fase de *Fourier*, este pulso está completamente determinado cuando el patrón de *Speckles* sigue una estadística Gaussiana circular compleja.

Al comparar directamente los pulsos de respuesta obtenidos con predicciones de la aproximación difusiva para el transporte de fotones observamos un buen acuerdo entre ambos, lo cual nos permite corroborar la naturaleza aleatoria del proceso de transporte de luz en medios opacos. Cuando el análisis se repite para películas delgadas de diferentes espesores del mismo material, nanopartículas de TiO_2 , podemos realizar estimados de las propiedades ópticas más importantes del medio, tales como la turbidez y/o coeficiente de difusión de los fotones además de la longitud característica de absorción.

El hecho de que la metodología de análisis descrita en esta Tesis combina procedimientos directos e indirectos para obtener información de las propiedades ópticas de medios opacos, al comparar resultados obtenidos de mediciones directas del sistema en cuestión con modelos que predicen la manera en la que la luz se transporta en este tipo de medios, nos va a permitir, en un principio, identificar patrones de *Speckles* asociados con diversos fenómenos ópticos. Entre los diversos fenómenos ópticos que generan patrones característicos de *Speckles* se cuentan la localización de luz, el efecto Faraday, el efecto Hall, variaciones locales del índice de refracción efectivo, solo por mencionar algunos.

Una de las potenciales aplicaciones a destacar de la metodología descrita en esta Tesis es la posibilidad de formación de imágenes en medios ópticamente densos por medio de la localización de inhomogeneidades superficiales y/o embebidas en el medio. Como en el caso del tejido humano, donde se puede formar imágenes en base al cambio de la composición del tejido, ya que este cambio se reflejará en el cambio de la opacidad y por tanto en la forma de la respuesta temporal.

APÉNDICE A

Estadística de los campos

A.1 Estadística Gaussiana conjunta

En esta sección demostraremos que cuando describimos el campo eléctrico por medio de una suma de fasores aleatorios y lo escribimos en su forma compleja $E_o = x + iy$, este tiene una probabilidad conjunta para la parte real e imaginaria que es Gaussiana de media cero.

Como se vio en la sección 3.1, el campo eléctrico a la salida del medio se puede expresar como

$$E_o(\nu) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N A_k \exp(-j\phi_k(\nu)) \quad (\text{A.1})$$

Entonces podemos expresar el k -ésimo fasor de esta suma en terminos de sus componentes real e imaginario, dados por $x_k(\nu_m) = A_k \cos \phi_k(\nu_m)$ y $y_k(\nu_m) = -A_k \sin \phi_k(\nu_m)$ respectivamente. Para cada frecuencia ν_m , *Goodman*[15] ha mostrado que bajo las consideraciones (i-iii) hechas en la sección 3.1 y aplicando el teorema del limite central, que estas componentes de $E_o(\nu_m)$ estan distribuidas como variables aleatorias Gaussianas de media cero. Sin embargo, el hecho de tener estadística *marginal* Gaussiana para cada frecuencia no implica que las partes real e imaginaria del campo para todas las frecuencias $\nu_1, \nu_2, \dots, \nu_M$ sean descritas por una estadística Gaussiana conjunta[40].

Para mostrar que la estadística de $E_o(\nu_m)$ es conjunta Gaussiana, aplicamos una forma multivariada del teorema del limite central dado por *Berger*[35, 41, 42]. Dejemos que $\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \dots, \mathbf{u}_N$ sea una secuencia de vectores aleatorios

reales, de media cero, independientes e idénticamente distribuidos de dimensión $2M$ con momentos finitos de orden dos ($\langle \|\mathbf{u}_k\|^2 \rangle < \infty$, donde $\|\cdot\|^2$ es la norma) y matriz de covarianza \mathbf{C}_u . El vector aleatorio \mathbf{u} formado por

$$\mathbf{u} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=1}^N \mathbf{u}_k \quad (\text{A.2})$$

tendra la función de densidad de probabilidad conjunta Gaussiana

$$p_u(\mathbf{u}) = \frac{1}{(2\pi)^M |\mathbf{C}_u|^{(1/2)}} \exp\left(-\frac{1}{2} \mathbf{u}^T \mathbf{C}_u^{-1} \mathbf{u}\right) \quad (\text{A.3})$$

después de que $E_o(\nu_m)$ es relacionado con \mathbf{u} , entonces satisface la condición de tener un momento de orden dos finito para demostrar la naturaleza Gaussiana conjunta de $E_o(\nu_m)$.

Para mostrar que los componentes real e imaginario de la ecuación A.1 son Gaussianos conjuntos para las frecuencias $\nu_1, \nu_2, \dots, \nu_M$ formamos los vectores $\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \dots, \mathbf{u}_N$ con las partes real e imaginaria del campo $E_o(\nu_m)$ como

$$\mathbf{u}_1 = \begin{pmatrix} x_1(\nu_1) \\ \vdots \\ x_1(\nu_M) \\ y_1(\nu_1) \\ \vdots \\ y_1(\nu_M) \end{pmatrix}, \mathbf{u}_2 = \begin{pmatrix} x_2(\nu_1) \\ \vdots \\ x_2(\nu_M) \\ y_2(\nu_1) \\ \vdots \\ y_2(\nu_M) \end{pmatrix}, \dots, \mathbf{u}_N = \begin{pmatrix} x_N(\nu_1) \\ \vdots \\ x_N(\nu_M) \\ y_N(\nu_1) \\ \vdots \\ y_N(\nu_M) \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

Dejemos que la matriz de covarianza sea particionada en submatrices

$$\mathbf{C}_u = \begin{bmatrix} \mathbf{C}_{xx} & \mathbf{C}_{xy} \\ \mathbf{C}_{yx} & \mathbf{C}_{yy} \end{bmatrix} \quad (\text{A.5})$$

El (i, j) -ésimo elemento de \mathbf{C}_{pq} esta dado por $[\mathbf{C}_{pq}]_{i,j} = \langle p(\nu_i)q(\nu_j) \rangle$, donde $p = x, y$ y $q = x, y$. De las consideraciones (i-iii) de la sección 3.1, los vectores formados por A.4 tenemos $\langle \mathbf{u}_k \rangle = 0$ para todo k . Consideremos la norma del vector

$$\|\mathbf{u}_k\|^2 = \sum_{m=1}^M A_k^2 \cos^2 \phi_k(\nu_m) + \sum_{m=1}^M A_k^2 \sin^2 \phi_k(\nu_m) \quad (\text{A.6})$$

Tomando el valor esperado de esta norma y considerando (iii) y la independencia estadística de la k -ésima magnitud y fase aleatoria tenemos

$$\langle \|\mathbf{u}_k\|^2 \rangle = \sum_{m=1}^M \langle A_k^2 \rangle \langle \cos^2 \phi_k(\nu_m) \rangle + \sum_{m=1}^M \langle A_k^2 \rangle \langle \sin^2 \phi_k(\nu_m) \rangle \quad (\text{A.7})$$

la fase esta uniformemente distribuida sobre el intervalo $-\pi$ a π , lo que nos da como resultado $\langle \cos^2 \phi_k(\nu_m) \rangle = 1/2$ y $\langle \sin^2 \phi_k(\nu_m) \rangle = 1/2$. Además, considerando (i) las magnitudes aleatorias estan idénticamente distribuidas, entonces $\langle A_k^2 \rangle = \langle A^2 \rangle$. Usando esto, tenemos

$$\langle \|\mathbf{u}_k\|^2 \rangle = M \langle A^2 \rangle \quad (\text{A.8})$$

de la ecuación 3.9, la cantidad $\langle A^2 \rangle$ es igual a la intensidad promediada en el ensamble $\langle I \rangle$, la cual es finita por definición. Entonces, por medio del teorema del limite central multivariado, el campo dispersado por un medio aleatorio $E_o(\nu_m)$ a frecuencias ν_m tiene estadística conjunta Gaussiana de media cero.

A.2 Estadística circular compleja Gaussiana

Cuando la matriz de covarianza de la ecuacion A.5 tiene una estructura especial el vector conjunto real Gaussiano de longitud $2M$ puede ser convenientemente representado como un vector imaginario aleatorio Gaussiano de longitud M . Las condiciones para que esto suceda son[15, 40]

$$\mathbf{C}_{xx} = \mathbf{C}_{yy}, \quad \mathbf{C}_{yx} = -\mathbf{C}_{xy} \quad (\text{A.9})$$

formando el vector complejo

$$\mathbf{z} = \begin{pmatrix} x(\nu_1) + jy(\nu_1) \\ \vdots \\ x(\nu_M) + jy(\nu_M) \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

podemos definir una matriz de covarianza compleja \mathbf{C}_z cuyos (i, j) -ésimos elementos están dados por $[\mathbf{C}_{i,j}] = \langle \mathbf{z}(\nu_i) \mathbf{z}^*(\nu_j) \rangle$. Cuando las ecuaciones A.9 se cumplen, $\mathbf{C}_z = 2(\mathbf{C}_{xx} - j\mathbf{C}_{xy})$. Bajo estas condiciones la función

de densidad de probabilidad conjunta para el vector complejo aleatorio \mathbf{z} puede ser escrita como[40]

$$p_z(\mathbf{z}) = \frac{1}{\pi^M |\mathbf{C}_z|} \exp(-\mathbf{z}^H \mathbf{C}_z^{-1} \mathbf{z}) \quad (\text{A.11})$$

donde \mathbf{z}^H es la transpuesta *Hermitiana* compleja de \mathbf{z} . Para mostrar que la estadística de los campos de salida $E_o(\nu_m)$ dados por la ecuación A.1 a frecuencias ν_m de un medio aleatorio es Gaussiana circular compleja, necesitamos mostrar que bajo las consideraciones (*i-iii*) las condiciones dadas por las ecuaciones A.9 se cumplen. Consideremos el (i, j) –ésimo elemento de \mathbf{C}_{xx}

$$\langle x(\nu_i)x(\nu_j) \rangle = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{l=1}^N \langle A_k A_l \cos \phi_k(\nu_i) \cos \phi_l(\nu_j) \rangle \quad (\text{A.12})$$

Y debido a que consideramos a las magnitudes y fases aleatorias estadísticamente independientes, podemos escribir

$$\begin{aligned} \langle x(\nu_i)x(\nu_j) \rangle &= \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \langle A_k^2 \rangle \langle \cos \phi_k(\nu_i) \cos \phi_l(\nu_j) \rangle \\ &+ \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N \langle A_k \rangle \langle A_l \rangle \langle \cos \phi_k(\nu_i) \rangle \langle \cos \phi_l(\nu_j) \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Bajo la consideración (*ii*), la fase aleatoria esta uniformemente distribuida sobre $-\pi$ a π y el segundo termino de A.13 es cero. Si relacionamos la fase aleatoria con el *tiempo de vuelo aleatorio* 3.4, y expandimos el coseno usando una identidad trigonométrica, la ecuación A.13 se transforma en

$$\langle x(\nu_i)x(\nu_j) \rangle = \frac{1}{2N} \sum_{k=1}^N \langle A_k^2 \rangle [\langle \cos 2\pi(\nu_i - \nu_j)t_k \rangle + \langle \cos 2\pi(\nu_i + \nu_j)t_k \rangle] \quad (\text{A.14})$$

El segundo promedio sobre el ensamble es igual a cero, por que las fases $2\pi\nu_i t_k$ y $2\pi\nu_j t_k$ son consideradas uniformes sobre $-\pi$ a π cuando tomamos *mod* 2π , entonces también lo es la fase $2\pi(\nu_i + \nu_j)t_k$, si embargo no podemos hacer la misma consideración acerca de la fase $2\pi(\nu_i - \nu_j)t_k$ por que el valor

de $\nu_i - \nu_j$ puede no ser suficientemente grande cuando se compare con los valores de t_k . Finalmente ya que las magnitudes aleatorias estan identicamente distribuidas, obtenemos el resultado

$$\langle x(\nu_i)x(\nu_j) \rangle = \langle A_k^2 \rangle \langle \cos 2\pi(\nu_i - \nu_j)t \rangle / 2 \quad (\text{A.15})$$

de la misma manera, los (i, j) – *esimos* elementos de \mathbf{C}_{yy} , \mathbf{C}_{xy} y \mathbf{C}_{yx} se transforman en

$$\langle y(\nu_i)y(\nu_j) \rangle = \langle A_k^2 \rangle \langle \cos 2\pi(\nu_i - \nu_j)t \rangle / 2 \quad (\text{A.16})$$

$$\langle x(\nu_i)y(\nu_j) \rangle = \langle A_k^2 \rangle \langle \sin 2\pi(\nu_i - \nu_j)t \rangle / 2 \quad (\text{A.17})$$

$$\langle y(\nu_i)x(\nu_j) \rangle = -\langle A_k^2 \rangle \langle \cos 2\pi(\nu_i - \nu_j)t \rangle / 2 \quad (\text{A.18})$$

Las expresiones dadas en las ecuaciones A.15–A.18 satisfacen las condiciones de A.9 para todos los (i, j) . Entonces los campos de salida $E_o(\nu_m)$ para las frecuencias ν_m de un medio aleatorio tienen estadística Gaussiana circular compleja bajo las consideraciones *i–iii*. Entonces el teorema de momento Gaussiano[20] puede ser aplicado para expresar los momentos de mas alto orden como la suma de productos del momento de segundo orden, que son los elementos de \mathbf{C}_z .

APÉNDICE B

Téoria biespectral

En esta sección mostraremos de manera breve la estrategia de nuestro método de reconstrucción de señales a partir del biespectro así como el algoritmo recursivo usado para computar numericamente la fase de la señal.

B.1 Recuperación de señales a partir del Biespectro

Empezaremos describiendo el escenario si tuviésemos que recuperar el espectro de potencia de la señal $g(t)$ a partir de la transformada de *Fourier* de $g^{(2)}(t)$ donde

$$g^{(2)}(t) = \int dx' g(t')g(t' + t), \quad (\text{B.1})$$

$$G^2(u) = G(u)G(-u) \quad (\text{B.2})$$

Reescribiendo $G^{(2)}(u)$ y $G(u)$ en amplitud y fase podemos escribir

$$|G^{(2)}(u)| = |G(u)| \cdot |G(-u)| \quad (\text{B.3})$$

$$\beta(u) = \varphi(u) + \varphi(-u) \quad (\text{B.4})$$

Si considerásemos que $\varphi(u)$ es simétrica, entonces

$$\varphi(u) = \varphi(-u) \Rightarrow 2\varphi(u) = \beta(u) \quad (\text{B.5})$$

Pero hacer esto nos deja con el problema de perder la parte antisimétrica de $\varphi(u)$ en el espectro de potencia $G^{(2)}(u)$. Esta pérdida podría ser compensada si además de conocer $G(u)G(-u)$, también $G(u-c)G(-u)$ (con c constante) fuese conocida. Esta segunda expresión podría romper la simetría de la primera expresión. Si dividiésemos ambas expresiones obtendríamos

$$\frac{G(u)}{G(u-c)} = H(u, c) \quad (\text{B.6})$$

este término supuestamente conocido, revelaría la diferencia de fases $\varphi(u) - \varphi(u-c)$. Si c se elige adecuadamente, podríamos desenredar esta ecuación, determinando $\varphi(u)$ excepto por una constante añadida.

Esta forma hipotética de recuperar información de primer orden, a partir de información de segundo orden, es similar a la estrategia usada al recuperar información de primer orden a partir de información de tercer orden. Dicho en los términos mencionados, calculamos el espectro de potencia compleja de la señal $G(u)$ a partir de el biespectro complejo $G^{(3)}(u_1, u_2)$.

La triple autocorrelación $g^{(3)}(t_1, t_2)$ de una función $g(t)$ puede ser interpretada como una generalización de mayor orden que la operación de correlación de la forma

$$g^{(3)}(t_1, t_2) = \int dx g(t)g(t+t_1)(t+t_2) \quad (\text{B.7})$$

Y su transformada de *Fourier* es llamada biespectro $G^{(3)} = (u_1, u_2)$

$$G^{(3)} = G(u_1)G(u_2)G(-u_1 - u_2), \quad (\text{B.8})$$

donde $G(u)$ es la transformada de *Fourier* de $g(t)$

Para reconstruir la señal, dejamos que $u_1 = u - c, u_2 = c$ en el biespectro, entonces

$$G^{(3)}(u - c, c) = G(u - c)G(c)G(-u) \quad (\text{B.9})$$

Esta expresión junto con

$$G^{(3)}(u, 0) = G(u)G(0)G(-u) \quad (\text{B.10})$$

es esencialmente el cociente B.6 que necesitábamos para nuestro algoritmo de reconstrucción. Notemos que la constante c es arbitraria, cosa que nos

ayudara a mejorar la relacion señal a ruido cuando el agoritmo recursivo sea presentado.

Dejaremos de lado la prueba formal en la que se demuestra que el biespectro de $g(t)$ contiene toda la información necesaria acerca de $g(t)$ [12],ya que no es objetivo de este apendice.

Si la función $g(t)$ es real y de extensión finita, $g(t)$ puede ser reconstruida a partir de su biespectro, excepto por un corrimiento a . Equivalentemente, la transformada de *Fourier* $G(u)$ de $g(t)$ puede ser determinada excepto por un factor de fase lineal $\exp(-2\pi iua)$.

B.2 Reconstrucción iterativa de la fase de *Fourier* a partir del Biespectro

En esta sección mostraremos el algoritmo recursivo para la obtención de la señal a partir del biespectro. Por razones practicas el algoritmo de reconstrucción es aplicado a una versión discreta de $G^{(3)}(p, q)$

$$\begin{aligned} G^{(3)}(p, q) &= G^{(3)}(p \cdot \Delta u_1, q \cdot \Delta u_2) \\ &= G(p \cdot \Delta u_1)G(q \cdot \Delta u_2)G(-p \cdot \Delta u_1 - q \cdot \Delta u_2) \\ &= G_p G_q G_{-p-q} \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

donde $\Delta u_1 = \Delta u_2$ es una distancia de muestreo accesible en el dominio del biespectro y G_p, G_q, G_{-p-q} son muestreos de la transformada de *Fourier* de la señal.

De B.11 podemos establecer tres relaciones de simetria

$$G^{(3)}(p, q) = G^{(3)}(q, p) \quad (\text{B.12})$$

$$G^{(3)}(p, q) = G^{(3)}(q, -p - q) \quad (\text{B.13})$$

$$G^{(3)}(p, q) = G^{(3)*}(-p, -q) \text{ si } g(t) \text{ es real} \quad (\text{B.14})$$

Aquí, B.12 representa una relexión en el eje $p = q$. La relación B.13 puede ser considerada una reflexión cortada en el eje $p = -2q$. La relación B.14 es un punto de reflexión en el origen. La relación B.14 solo es valida para señales reales y quiere decir que G_p es *Hermitiana*, i.e. $G_p = G_{-p}^*$.

Nuestra meta entonces es recuperar el espectro complejo $G_p = t_p \exp i\varphi_p$ de los datos del biespectro $G^{(3)}(p, q) = g_{p,q}^{(3)} \exp i\beta_{p,q}$. Para este fin, la ecuación B.11 se parte en dos ecuaciones una relacionada a las fases y otra con las amplitudes

$$\begin{aligned} \exp i(\varphi_p + \varphi_q - \varphi_{-p-q}) &= \exp i\beta_{p,q} \\ g_p g_q g_{-p-q} &= g_{p,q}^{(3)} \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

Para una señal real $g(t)$ el espectro de *Fourier* $G_p = A_p \exp i\varphi_p$ es *Hermítico*, esto es $G_p = G_{-p}^*$. Como consecuencia de esto $\varphi_p = -\varphi_{-p}$. Entonces es suficiente con determinar φ_p solo para índices positivos $p > 0$.

p	q	$\varphi_{p+q} = \varphi_p + \varphi_q - \beta_{p,q}$		Iteración
1	0	$\varphi_1 = \varphi_1 + \varphi_0 - \beta_{1,0}$	$\Rightarrow /$	$\langle 1 \rangle$
1	1	$\varphi_2 = \varphi_1 + \varphi_1 - \beta_{1,1}$	$\Rightarrow \varphi_2$	$\langle 2 \rangle$
2	0	$\varphi_2 = \varphi_2 + \varphi_0 - \beta_{2,0}$	$\Rightarrow /$	$\langle 3 \rangle$
2	1	$\varphi_3 = \varphi_2 + \varphi_1 - \beta_{2,1}$	$\Rightarrow \varphi_3$	$\langle 4 \rangle$
2	2	$\varphi_4 = \varphi_2 + \varphi_2 - \beta_{2,2}$	$\Rightarrow \varphi_4$	$\langle 5 \rangle$
3	0	$\varphi_3 = \varphi_3 + \varphi_0 - \beta_{3,0}$	$\Rightarrow /$	$\langle 6 \rangle$
3	1	$\varphi_4 = \varphi_3 + \varphi_1 - \beta_{3,1}$	$\Rightarrow \varphi_4$	$\langle 7 \rangle$
3	2	$\varphi_5 = \varphi_3 + \varphi_2 - \beta_{3,2}$	$\Rightarrow \varphi_5$	$\langle 8 \rangle$
3	3	$\varphi_6 = \varphi_3 + \varphi_3 - \beta_{3,3}$	$\Rightarrow \varphi_6$	$\langle 9 \rangle$
\vdots	\vdots	\vdots	\vdots	\vdots
n	0	$\varphi_n = \varphi_n + \varphi_0 - \beta_{n,0}$	$\Rightarrow /$	$\langle \rangle$
n	1	$\varphi_{n+1} = \varphi_n + \varphi_1 - \beta_{n,1}$	$\Rightarrow \varphi_{n+1}$	$\langle \rangle$
\vdots	\vdots	\vdots	\vdots	\vdots
n	n	$\varphi_{n+n} = \varphi_n + \varphi_n - \beta_{n,n}$	$\Rightarrow \varphi_{2n}$	$\langle \rangle$

Tabla B.1: Reconstrucción recursiva para fases en caso de señales reales.

En la tabla B.1 se muestran varios pasos para el cálculo de la fase, basados en la ecuación B.15 y usando la restricción $p > 0$. Como un punto importante debemos mencionar que la fase φ_1 no es determinable. Este hecho será

discutido despues de haber bosquejado los primeros pasos de la iteración de la tabla B.1.

$$\begin{aligned}
 \langle 2 \rangle \quad \varphi_2 &= 2\varphi_1 - \beta_{1,1} \\
 \langle 4 \rangle \quad \varphi_3 &= \varphi_1 + \varphi_1 - \beta_{2,1} = 3\varphi_1 - \beta_{1,1} - \beta_{2,1} \\
 &\vdots
 \end{aligned} \tag{B.16}$$

$$\langle n \rangle \quad \varphi_p = p\varphi_1 - \beta_{1,1} - \beta_{2,1} - \dots - \beta_{p-1,1} \tag{B.17}$$

Aparentemente, las fases de *Fourier* φ_p de G_p pueden ser determinadas excepto por un corrimiento lineal $p\varphi_p$. Esta restricción viene del hecho que el biespectro es inmune a un corrimiento lineal de fase en G_p . Y debido a que φ_1 es desconocido podemos establecerlo de manera arbitraria a cero.

Como resumen de lo anterior podemos concluir que φ_p puede ser determinado para $p > 1$ y que φ_0 y φ_1 pueden ser establecidos arbitrariamente a cero. Ademas la tabla B.1 muestra que el calculo de φ_n tiene diferentes representaciones que son independientes. Este hecho puede ser usado para mejorar la relación señal a ruido de la reconstrucción promediando los diferentes resultados en caso de un biespectro ruidoso.

El metodo descrito entoces usa todas las posibles representaciones de φ_n para calcular $\bar{\varphi}_n$, entonces la influencia del ruido es minimizada. Por lo que podemos establecer que los factores de fase necesarios para reconstruir la señales estan dados por[43]

$$\exp(i\varphi_p) = \sum_{0 < q < p/2} \exp i(\varphi_p + \varphi_{p-q} - \beta_{p,p-q}) \tag{B.18}$$

APÉNDICE C

Captura y análisis

Este apéndice contiene la información correspondiente a la parte técnica del desarrollo de herramientas de software para la implementación de la técnica de análisis descrita en este trabajo de tesis.

C.1 Software de captura

Los datos experimentales con los cuales hemos trabajado consisten en imágenes digitales en formato TIFF (Tagged Image File Format) obtenidas a partir de una cámara tipo CCD (Charged Coupled Device). Estas imágenes representan el patrón de *Speckles* como un arreglo bidimensional de elementos, donde cada elemento constituye a la intensidad medida, esta representación de la intensidad cuenta con un rango dinámico de 12 bits, es decir, el valor más pequeño que puede asumir un elemento en la imagen es cero y el valor máximo es 4095.

Este experimento requiere de la sincronización de varios dispositivos, como lo son, una fuente de luz *laser* de frecuencia variable, el detector CCD y opcionalmente un detector de intensidad. La automatización del experimento mediante software de control nos garantiza repetibilidad de resultados y optimización de tiempos.

El desarrollo del software de control se ha realizado en *Labview*© versión 8.5 propiedad de *National Instruments*. Además se ha hecho uso del *kit* de desarrollo para manejo de imágenes *Vision & development* versión 8.6.

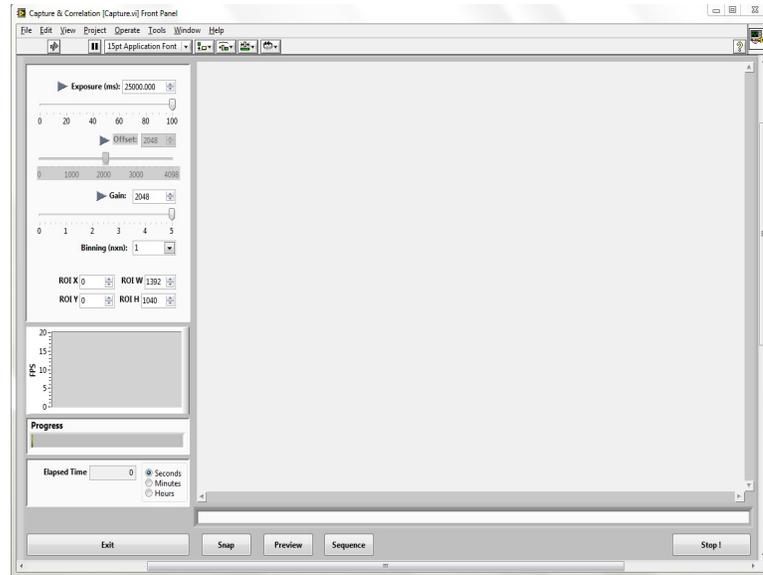


Figura C.1: Pantalla principal del software de captura de imágenes desarrollado para caracterizar medios ópticamente densos.

El programa está pensado para el control de dispositivos CCD de diferentes fabricantes y con diferentes características. Al momento se han implementado rutinas de control para cámaras PIXELFLY, QIMAGING y LUMENERA. Algunas de las características de las cámaras que este software puede controlar son: Tipo de imagen (escala de grises o RGB), rango dinámico (8, 10 y 12 bits), tiempo de exposición, región de interés (*ROI*), *binning*, valor de *offset* y *gain*.

La versatilidad del programa reside en la posibilidad de desarrollo de rutinas modulares que pueden ser añadidas con facilidad en un esquema de programación conocida como *master-slave*. Una rutina monitorea permanentemente las señales que el sistema operativo genera, donde estas señales pueden ser eventos generados por el usuario o por elementos de *hardware*, como por ejemplo un *trigger* externo que le indique al programa cuando empezar la captura.

El software originalmente fue pensado como una forma de adquirir datos para el experimento que consistía en monitorear la variación del patrón de *Speckles* en función de la frecuencia, pero, al observar que este podía ser

modificado facilmente, se han a~nado rutinas para la adquisici3n de datos provenientes de experimentos con conos de retrodispersi3n coherente (*CBS*) y experimentos donde el patr3n de *Speckles* fluctua en el tiempo.

Adem3s de esto, el software realiza algunas rutinas de an3lisis que permiten calibrar par3metros experimentales sin la necesidad de recurrir a software adicional. Entre las rutinas de an3lisis que el programa incluye son: Visualizaci3n de perfiles de intensidad continuos o para valores de $|\vec{q}|$ definidos, distribuci3n geom3trica y lineal de valores de $|\vec{q}|$ para el an3lisis de perfiles, calculo de la funci3n de autocorrelaci3n espacial e histograma de intensidades.

En el modo de captura, el programa depende de la cantidad de memoria RAM instalada en el sistema, ya que si se desea hacer uso de las m3ximas velocidades de captura de las camaras CCD entonces no es posible almacenar las im3genes en un medio masivo como los son los discos duros debido al tiempo de escritura. El programa fue dise~nado en un ambiente de 64 bits (es decir, el lenguaje de programaci3n y sistema operativo), asi que este puede mapear el m3ximo de memoria instalado para el almacenamiento de las im3genes digitales.

Los modos de captura mas importantes son:

Snap Adquiere una imagen desde el CCD y la muestra en pantalla, asi como la informaci3n relacionada al formato de la imagen.

Live preview Es el modo de visualizaci3n en tiempo real sin almacenamiento de las im3genes, esencialmente un modo de exploraci3n.

Snap & save Es el modo de captura mas b3sico, solo captura una imagen y la guarda en el disco duro con el nombre dado por el usuario.

Sequence Es el modo de captura donde una secuencia es grabada en la memoria y luego en el disco duro, este modo cuenta con varias opciones de captura, como por ejemplo la posibilidad de a~nadir una cantidad de tiempo predeterminada entre imagen adquirida.

Compound Sequence Este modo de captura permite grabar varias sesiones, donde cada sesi3n representa una secuencia.

Multi Tau Rutina en desarrollo, pensada para calcular funciones de correlación de segundo orden en tiempo real, esto permitirá medir sistemas cuyos tiempos característicos son muy largos.

C.2 Software de análisis

El desarrollo de esta parte del software se realizó en Matlab© versión R2009b propiedad de Mathworks inc. Y los códigos están escritos para ejecutarse desde el *prompt* de Matlab©, es decir, aun no se ha diseñado una interfaz de usuario gráfica.

Los códigos que se han diseñado son:

Corr2.m Permite calcular la correlación de segundo orden de la intensidad normalizada y hacer una corrección al ruido de fondo dado por el parámetro β .

Corr3.m Permite calcular la correlación de tercer orden de la intensidad normalizada y hacer una corrección al ruido de fondo dado por el parámetro β .

PulsoCorr.m Este código reconstruye la respuesta temporal haciendo uso de las funciones de correlación calculadas por *Corr2.m* y *Corr3.m*, además entrega los resultados de las correlaciones intermedias, el pulso en la frecuencia (magnitud y fase de *Fourier*) y la Bifase espectral.

Filtro.m Este código utiliza el pulso en la frecuencia dado por *PulsoCorr.m*, para filtrar la señal reconstruida en el tiempo.

Ajuste[TiO2].m Este código ajusta el pulso reconstruido y filtrado en el tiempo con el modelo de difusión dado por la ecuación 4.11 para la luz transmitida por unidad de área, en el caso de las muestras de dióxido de Titanio el ajuste se hace sobre el coeficiente de Difusión y el coeficiente de absorción.

A continuación se muestra el código usado para calcular la correlación de segundo orden:

```
ImgPath = uigetdir;

ImgName = input('Nombre generico de las imagenes: ');
ImgAm = input('Cantidad de imagenes: ');
ImgOffset = input('Numero de imagen de inicio: ');
NoiseName = input('Nombre generico del ruido: ');
NoiseAm = input('Cantidad de imagenes de ruido: ');
NoiseOffset = input('Numero de imagen de ruido de inicio: ');
Beta = input('Factor Beta: ');
J=1;

h = waitbar(0,'Leyendo imagenes de ruido...');

for I=NoiseOffset:(NoiseOffset+NoiseAm-1)
    waitbar(I/(NoiseOffset+NoiseAm-1),h);
    IPath = [ImgPath sprintf('\%s%d.tif',NoiseName,I)];
    NoiseArray(:, :, J) = imread(IPath, 'tif');
    J=J+1;
end

close(h);

NoiseMean = sum(NoiseArray,3)/NoiseAm;

clear NoiseArray
clear ImgArrayt

J=1;

h = waitbar(0,'Normalizando imagenes de speckle...');
```

```

for I=ImgOffset:(ImgOffset+ImgAm-1)
    waitbar(I/(ImgOffset+ImgAm-1),h);
    IPath = [ImgPath sprintf('\%s%d.tif',ImgName,I)];
    ImgArray(:, :, J) = single(imread(IPath, 'tif'));
    ImgArray(:, :, J) = (ImgArray(:, :, J) - NoiseMean
        - Beta * mean2(ImgArray(:, :, J)));
    ImgMean = mean2(ImgArray(:, :, J));
    ImgArray(:, :, J) = (ImgArray(:, :, J) - ImgMean) / ImgMean;
    J=J+1;
end

close(h);

h = waitbar(0, 'Calculo de Corr2...');

for I=0:(ImgAm-1)
    Corr2or(I+1) = 0;
    waitbar(I/(ImgAm-1),h);
    for J=0:(ImgAm-1-I)
        Corr2or(I+1) = Corr2or(I+1) + mean2(ImgArray(:, :, J+1) .*
            ImgArray(:, :, J+1+I));
    end
    Corr2or(I+1) = Corr2or(I+1) / (ImgAm-I);
end

close(h);

I=0:(ImgAm-1);
dlmwrite(sprintf('.\Out\Corr2[%s] [%d Imgs] [%d Noise]
[%.15f Beta].dat', ImgName, ImgAm, NoiseAm, Beta), [I'Corr2or'],
'Delimiter', '\t', 'precision', '%.7e');

```

En este caso el programa necesita un *path* donde se localicen las imagenes de *Speckle* y las imagenes de ruido. Las imagenes de ruido son un conjunto de imagenes de las fluctuaciones de intensidad debido a cambios termicos en el CCD, es decir la señal de corriente de oscuridad del CCD. Otro parametro importante es β , el cual establecera el factor de corrección adecuado para que la distribución de intensidades de los *Speckles* siga una estadística Gaussiana.

Y como respuesta el programa entrega la función de autocorrelación de la intensidad normalizada en un archivo llamado *Corr2.dat*, donde la primera columna representa el factor entero de espaciamento en frecuencia y la segunda columna el valor de la correlación.

La correlación de segundo orden se construye experimentalmente siguiendo la forma dada por

$$\left\langle \tilde{I}(\nu)\tilde{I}(\nu + \Delta\nu) \right\rangle_{meas} = \frac{1}{N-i} \sum_{j=0}^{N-i-1} \left\langle \tilde{I}_j\tilde{I}_{j+i} \right\rangle \quad (C.1)$$

Esta relación puede ser vista de manera esquematica con ayuda de la tabla C.2, en donde se considerará que se tiene un conjunto de 5 imagenes de patrones de *Speckles*. Si la frecuencia de muestreo es representada por ν , la frecuencia correspondiente a cada imagen esta dada por $\nu_j = \nu_0 + j\Delta\nu$, donde ν_0 representa la frecuencia inicial, es decir la frecuencia de la primera imagen y j es un valor entero que representa el número de imagen.

i=0	1,1	2,2	3,3	4,4	5,5
i=1	1,2	2,3	3,4	4,5	
i=2	1,3	2,4	3,5		
i=3	1,4	2,5			
i=4	1,5				

Figura C.2: En esta tabla se indica la manera en la que se operan las imagenes para construir un correlador de segundo orden, aquí, el contador i indica el punto de la función de correlación que se contruye tomando las combinaciones de imagenes dadas en esta fila.

Las operaciones que se realizan para construir un punto de la funcion de correlacion son:

- i. Primero se cálcula la cantidad de ruido medio, haciendo un promedio sobre las imagenes del ruido termico de la cámara CCD.
- ii. Después de esto, se trata cada una de las imagenes de *Speckle* con la siguiente operación

$$Imagen = Imagen - Noise_{promedio} - \beta * Imagen_{promedio}$$

es decir, a la imagen del patrón de *Speckle* (matriz) se le resta el valor del ruido promedio (matriz) y se le resta el valor promedio sobre la imagen multiplicado por el factor beta (esta operación devuelve un valor escalar).

- iii. Por ultimo se construye la correlación de segundo orden para cada patrón de *Speckles* corregido según el punto anterior con respecto a la forma mostrada en C.1 la cual puede ser vista de manera esquematica segun la tabla C.2.

REFERENCIAS

- [1] Schuster, A. *Astrophys. J. Radiation through a foggy atmosphere.* **vol.** 21, 1 (1905)
- [2] David A. Weitz and Davir J.Pine *Diffusing-wave spectroscopy.*
- [3] Ralf Lenke and George Maret *Multiple Scattering of Light: Coherent Backscattering and Transmission.* Scattering in Polymeric and Colloidal Systems, Gordon and Breach Publising Group, U.K. 1999.
- [4] A. Z. Genack *Optical transmission in disordered media.* Phys. Rev. Lett. **vol.** 58, 20432046 (1987).
- [5] C. A. Thompson, K. J. Webb, and A. M. Weiner *Diffusive media characterization using laser speckle.* Appl. Opt. **vol.** 36, 37263734 (1997).
- [6] C. A. Thompson, K. J. Webb, and A. M. Weiner *Imaging in scattering media by use of laser speckle.* Opt. Soc. Am. **vol.** 14, 22692277 (1997).
- [7] *New aspects of electromagnetic and acoustic wave difussion,* Springer Tracts in Modern Physics, 1998, **vol.** 144/1998, 1-34.
- [8] S. Feng and P. A. Lee, *Mesoscopic conductors and correlations in laser Speckle patterns.* Science, **vol.** 251, pp. 633–639, February 1991.
- [9] J. H. Li and A. Z. Genack, *Correlation in laser Speckle.* Phys. Rev. E, **vol.** 49, pp. 4530–4533, May 1994.
- [10] R. Berkovits and S. Feng, *Correlations in coherent multiple scattering.* Phys. Rep. **vol.** 238, no. 3, pp. 135–172,1994.
- [11] A. Ishimaru *Wave propagation and Scattering in Random Media.* **vol.**I (Academic New York 1978).

- [12] H. Bartelt, A.W. Lohmann and B. Wirnitzer *Phase and amplitude recovery from bispectra*. Optical society of America 0003-6935/84/183121-09 (1984).
- [13] Mark A. Webster *Random characterization from laser Speckle frequency correlations* PhD. Thesis, Purdue University, 2002.
- [14] Mark A. Webster, Kevin J. Webb and Andrew M. Weiner *Temporal response of a random medium from speckle intensity frequency correlations*. Optical Society of America. **vol.** 20 No. 11 Nov. 2003.
- [15] Goodman, Joseph W. *Statistical Optics*. Ed. John Wiley and Sons, 1985.
- [16] J. Goodman. *Statistical properties of laser speckle patterns* in *Laser Speckle and Related Phenomena*, 2nd ed., J. C. Dainty, ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1984).
- [17] Fellerw . in *An Introduction to Probability Theory and Its Applicaticrns*. **Vol.** 1 (J. Wiley, New Yor, N.Y.) 1968.
- [18] A. Z. Genack and J. M. Drake *Relationship between optical intensity, fluctuations and pulse propagation in random media*. Europhys. Lett. **vol.** 11, 331336 (1990).
- [19] A. Z. Genack. *Fluctuations, correlations and average transport of electromagnetic radiation in random media*. *Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media*, P. Sheng, ed. (World Scientific, Singapore, 1990), pp. 207-311.
- [20] I. S. Reed. *On a moment theorem for complex Gaussian processes* IRE Trans. Inf. Theory IT-8, 194-195 (1962).
- [21] A. W. Lohmann and B. Wirnitzer. *Triple correlations* Proc. IEEE 72, 889-901 (1984).
- [22] M.A. Webster, K.J. Webb and A.M. Weiner *Temporal Response of a Random Medium from Third-Order Laser Speckle Frequency Correlations*. Physical Review Letters, 10.1103/PhysRevLett.**88**.033901.
- [23] J. D. Gaskill. *Linear Systems, Fourier Transforms, and Optics* Wiley, New York, 1978.

- [24] Michael S. Patterson, B. Chance and B.C. Wilson *Time resolved reflectance and transmittance for the noninvasive measurement of tissue optical properties*. Optical society of America. 0003-6935/89/122331-06 1989.
- [25] C. A. Haniff. *Least-squares Fourier phase estimation from the modulo 2π bispectrum phase* J. Opt. Soc. Am. A **8**, 134-140 (1991).
- [26] C. L. Matson. *Weighted-least-squares phase reconstruction from the bispectrum* J. Opt. Soc. Am. A **8**, 1905-1913 (1991).
- [27] M. P. van Albada, J. F. de Boer and A. Lagendijk *Observation of Long-Range Intensity Correlation in the Transport of Coherent Light through a Random Medium*. Physical Review Letters, **vol.** 64 No. 23, 1990.
- [28] S. Eiden-Assmann, J. Widoniak, and G. Maret. Mater **16**,6 (2004).
- [29] J. S. Schütz-Widoniak *Synthesis and characterization of colloidal inorganic and metallic particles for optical and other applications*. Ph.D. thesis, University of Konstanz, 2005.
- [30] A. A. Scribot. *First-order probability density functions of speckle measured with a finite aperture* Opt. Commun. **11**, 238-241 (1974).
- [31] B. C. Park and M. S. Chung. *First-order probability density function of the integrated speckle* Opt. Commun. **83**, 5-9 (1991).
- [32] N. George, *Speckle at various planes in an optical system*. Opt. Eng. **25**, 754764 (1986).
- [33] H. Fujii and T. Asakura *Effect of the point spread function on the average contrast of image speckle patterns* Opt. Commun. **21**, 8084 (1977).
- [34] M. Reufer, Luis F. Rojas Ochoa and F. Scheffold *Transport of light in amorphous photonic materials*. Applied Physics Letters **91**, 171904 (2007).
- [35] M. A. Berger *An Introduction to Probability and Stochastic Processes*. Springer-Verlag, New York, 1993.
- [36] W. Schärfl *Light Scattering from Polymer Solutions and Nanoparticle Dispersions*. Springer laboratory.

- [37] D.J. Pine, D.A. Weitz, J.X. Zhu and E. Herbolzheimer *Diffusing-Wave Spectroscopy: dynamic light scattering in the multiple scattering limit*. Journal de Physique **No.**18 page 2101.
- [38] D.A. Weitz, J.X. Zhu, D.J. Durian, Hu Gang and D.J. Pine *Difusing Wave Spectroscopy: the technique and some applications*. Physica Scripta **vol.** T49, 610-621, 1993.
- [39] M.P. van Albada et al *Observation of long-range intensity correlation in the transport of coherent light through a random medium*. Phys. Rev Lett. 64(23), 2787 (1990).
- [40] A. Papoulis. *Probability, Random Variables, and Stochastic Processes* 3rd ed. (McGraw-Hill, Boston, Mass., 1991).
- [41] P. Billingsley. *Probability and Measure*. 3rd ed. (Wiley, NewYork, 1995).
- [42] D. Middleton. *An Introduction to Statistical Communication Theory* McGraw-Hill, New York, 1960.
- [43] A. W. Lohmann, G. Weigelt, and B. Wirnitzer. *Speckle Masking in Astronomy: Triple Correlation Theory and Applications* Appl. Opt. 32, 4028 (1983).