

TIAGO DE ASSIS MOURA

**SOBRE AS OSCILAÇÕES OPTO-INDUZIDAS DE PARTÍCULAS
SEMICONDUCTORAS EM PINÇAS ÓPTICAS**

Tese apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Doctor Scientiae*.

Orientador: Márcio Santos Rocha

Coorientador: Joaquim Bomfim S. Mendes

**VIÇOSA - MINAS GERAIS
2022**

**Ficha catalográfica elaborada pela Biblioteca Central da Universidade
Federal de Viçosa - Campus Viçosa**

T

M929s
2022

Moura, Tiago de Assis, 1991-
Sobre as oscilações opto-induzidas de partículas
semicondutoras em pinças ópticas / Tiago de Assis Moura. –
Viçosa, MG, 2022.
1 tese eletrônica (165 f.): il. (algumas color.).

Inclui anexos.

Inclui apêndices.

Orientador: Márcio Santos Rocha.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Viçosa,
Departamento de Física, 2022.

Referências bibliográficas: f. 132-137.

DOI: <https://doi.org/10.47328/ufvbbt.2022.523>

Modo de acesso: World Wide Web.

1. Partículas (Física, química, etc.) - Propriedades ópticas.
2. Semicondutores - Testes. 3. Lasers. I. Rocha, Márcio Santos,
1978-. II. Universidade Federal de Viçosa. Departamento de
Física. Programa de Pós-Graduação em Física. III. Título.

CDD 22. ed. 539.77

Bibliotecário(a) responsável: Euzébio Luiz Pinto CRB-6/3317

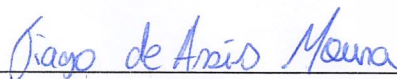
TIAGO DE ASSIS MOURA

SOBRE AS OSCILAÇÕES OPTO-INDUZIDAS DE PARTÍCULAS
SEMICONDUCTORAS EM PINÇAS ÓPTICAS

Tese apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física, para obtenção do título de *Doctor Scientiae*.

APROVADA: 22 de junho de 2022.

Assentimento:



Tiago de Assis Moura
Autor



Márcio Santos Rocha
Orientador

Aos meus pais Marta e Jurandyr por todo apoio durante todos esses anos.

Agradecimentos

Agradeço primeiramente a Deus, por me carregar nos momentos em que eu já não podia mais andar, por me fortalecer quando eu mais parecia e por permitir que eu conheça um pouco de sua criação.

Aos meus pais, meus eternos professores, Marta e Jurandyr, por acreditarem em mim mais do que eu mesmo pude acreditar, por sempre estarem presente e por me ensinarem que o trabalho e a honestidade valem mais do que qualquer diploma ou título.

Agradeço a minha família que sempre se importaram comigo e se propuseram a me ajudar. Aos amigos de república por toda a convivência e amizade e em especial ao Michel Bahia por ter me acolhido ainda calouro em Viçosa e ter me ajudado nesse momento inicial e aos amigos durante o doutorado: Gabriel Zeni, Hugo Moura, Igor Cabral, Leonardo Galo e Thales Mota. Aos DeMolays por todo companheirismo e fraternidade.

Agradeço aos colegas da salinha da pós graduação pelos debates, conversas fiadas, litros e litros de café, pelos discursões intermináveis sobre futebol e política. Em especial: Hamilton Teixeira (ele teria um treco se não fosse o primeiro), Bruno Carvalho, Emerson Miranda, Erik Procópio, Gabriel Vinicius, Juliano Fernandes, Kairon Oliveira, Milton Lopes, Oscar Toro, Ray Maronesi, Sylvestre Carvalho e Warley Campos. Aos amigos de toda uma vida: Elisson Bilheiro, Jacó Gomes e José Hilário.

Agradeço ao professor Alexandre Carvalho pela primeira iniciação científica que eu fiz, pelo primeiro contato com o laboratório e pelos primeiros passos na ciência. Aos colegas de laboratório: Aloísio Garcia, Carlos Henrique, Ethe Costa, Janaísa Luiza, José Caquito, Josiane Batista, Leandro Oliveira, Rayane Maria e Roberto Jr. Um agradecimento especial a Eduardo Ferreira, que me auxiliou nos primeiros passos no laboratório, e a Ulisses Moreira por toda colaboração e amizade durante o doutorado.

Agradeço ao meu Orientador Márcio Rocha, por todos esses anos de convivência e orientação. Muito obrigado por ter aceitado me orientar e ter transmitido um pouco do seu conhecimento e visão sobre a ciência.

Agradeço ao meu coorientador Joaquim Mendes, que para além da participação fundamental nesse trabalho, seus conselhos profissionais foram fundamentais não apenas para esse início de carreira, mas com certeza, para toda vida.

Agradeço aos funcionários da UFV e principalmente aos do DPF. Em especial ao Marcos Barbosa por ser sempre tão solícito na secretaria da pós graduação, ao Evandro por toda a amizade e papo furado na portaria e as moças da limpeza por sempre

organizarem e deixarem o ambiente propício aos estudos. Agradeço também a todos os professores do departamento em especial ao professor Leandro Rizzi pela ajuda fundamental na elaboração do modelo desenvolvido nesse trabalho.

Agradeço por último, e não menos importante, ao povo brasileiro, representado pelas agências de fomento CAPES, FAPEMIG e CNPq, pelo financiamento da pesquisa e pela concessão da bolsa de estudo. Viva a ciência brasileira!

O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001.

Ediscere, Scire, Agere... Veni, vidi, vici!

Ando devagar porque já tive pressa
E levo esse sorriso
Porque já chorei demais
Hoje me sinto mais forte
Mais feliz, quem sabe
Só levo a certeza
De que muito pouco sei,
Ou nada sei...

Almir Sater e Renato Teixeira

Resumo

MOURA, Tiago de Assis, D.Sc, Universidade Federal de Viçosa, junho de 2022. **Sobre as oscilações opto-induzidas em partículas semicondutoras em pinças ópticas.** Orientador: Márcio Santos Rocha. Coorientador: Joaquim Bomfim Santos Mendes.

Desde os trabalhos iniciais de Arthur Ashikin em 1970, as pesquisas sobre a manipulação de partículas através da técnica de pinças ópticas vem crescendo fortemente. A grosso modo, a técnica de pinças ópticas consiste em um feixe de laser (geralmente operando no modo TEM_{00}) altamente focalizado por uma objetiva de grande abertura numérica, capaz de aprisionar partículas próxima a região focal. A manipulação de partículas dielétricas e metálicas tem encontrado uma grande aplicação no estudo de processos bioquímicos e biofísicos, indo desde a investigação de parâmetros mecânicos de polímeros orgânicos à complexidade de mecanismos celulares. Com o desenvolvimento de novos materiais, se tornou necessário conhecer o comportamento desses materiais quando manipulados utilizando pinças ópticas. Nosso grupo foi o primeiro a estudar experimentalmente a manipulação óptica de partículas de isolantes topológicos (Bi_2Te_3 e Bi_2Se_3), mostrando que tais materiais exibem uma dinâmica oscilatória no plano perpendicular à direção de propagação do laser. Interpretamos o comportamento oscilatório das partículas de isolante topológico como sendo o resultado da competição entre a força de gradiente (sempre atrativa) e a resultante das forças de espalhamento e fotoforética (sempre repulsivas). Nesse trabalho, nós estudamos o comportamento das partículas semicondutoras (silício e germânio) quando manipuladas com pinças ópticas. Nós observamos que em ambos os casos o sistema também exhibe dinâmica oscilatória, mostrando que os efeitos das oscilações ópticamente induzidas não são uma característica exclusiva dos isolantes topológicos. Além disso, as oscilações das partículas semicondutoras apresentaram um atributo adicional, elas são altamente sensíveis a direção de polarização do laser. Semicondutores ao interagir com o laser podem modificar sua densidade de portadores e conseqüentemente todas as suas

propriedades ópticas. Nós propomos uma generalização do modelo de Ashkin no regime de Rayleigh para contabilizar o efeito da geração de portadores sobre as forças ópticas em partículas semicondutoras. Além disso, nós incluímos o efeito da geração de portadores no modelo efetivo que construímos para interpretar as oscilações nas partículas de isolante topológico. A dependência da polarização foi interpretada como sendo uma consequência da assimetria azimutal do feixe conforme previsto pela teoria de espalhamento Mie. Nós fomos capazes de aprisionar as partículas semicondutoras. As partículas de silício foram aprisionadas no feixe gaussiano quando a altura focal (distância entre o foco e a lamínula) era superior a $43 \mu\text{m}$. Enquanto que, as partículas de germânio, foram aprisionadas somente quando a armadilha foi modificada e utilizamos um feixe de Bessel focalizado. No feixe de Bessel as partículas de germânio foram aprisionadas para potências de até 50 mW (medidas na entrada da objetiva), acima de 50 mW a dinâmica oscilatória foi observada, porém, sem a dependência da polarização do feixe. A rigidez da armadilha obtida em ambos os casos foi da ordem de femto-Newton o que habilita o uso das partículas de semicondutores para o estudo onde baixas forças são necessários.

Palavras-chave: Pinça óptica. Semicondutores. Osciladores ópticos.

Abstract

MOURA, Tiago de Assis, D.Sc., Universidade Federal de Viçosa, June, 2022. **On opto-induced oscillations in semiconductor beads in optical tweezers.** Adviser: Márcio Santos Rocha. Co-adviser: Joaquim Bomfim Santos Mendes.

Since the initial work of Arthur Ashkin in 1970, research on particle manipulation through the optical tweezers technique has been growing strongly. In a simplified way, the optical tweezers technique consists of a laser beam (generally operating in TEM_{00} mode) highly focused by a large numerical aperture objective capable of trapping beads close to the focal region. The manipulation of dielectric and metallic beads has found great application in the study of biochemical and biophysical processes, ranging from the investigation of mechanical parameters of organic polymers to the complexity of cellular mechanisms. With the development of new materials, it became necessary to know the behavior of these new materials when manipulated using optical tweezers. Our group was the first to experimentally study the optical manipulation of topological insulator beads (Bi_2Te_3 e Bi_2Se_3), showing that such materials exhibit oscillatory dynamics in the plane perpendicular to the direction of laser propagation. We interpret the oscillatory behavior of topological insulator beads as the result of the competition between the gradient force (always attractive) and the resultant of the scattering and photophoretic forces (always repulsive). In this work, we studied the behavior of semiconductor beads (silicon and germanium) when manipulated by optical tweezers. We observe that in both cases the system also exhibits oscillatory dynamics, showing that the effects of optically induced oscillations are not an exclusive feature of topological insulators. In addition, the oscillations of semiconductor beads presented an additional attribute, they are highly sensitive to the polarization direction of the laser. Semiconductors when interacting with the laser can modify their carrier density and consequently all their optical properties. We propose a generalization of the Ashkin model in the Rayleigh regime to account for the effect of carrier generation on optical

forces in semiconductor beads. Furthermore, we included the effect of carrier generation in the effective model we built to interpret oscillations in topological insulator beads. The polarization dependence was interpreted as being a consequence of the azimuthal asymmetry of the beam as predicted by the Mie scattering theory. We were able to trap semiconductor beads. Silicon beads were trapped in the Gaussian beam when the focal height (distance between the focus and the coverslip) was greater than 43 μm . Whereas, germanium beads were trapped only when the trap was modified and a focused Bessel beam was used. In the Bessel beam, the germanium beads were trapped for powers up to 50 mW (measured at the entrance of the objective), above 50 mW, the oscillatory dynamics was observed, however, without dependence on the polarization of the beam. The trap stiffness obtained in both cases was of the femto-Newton order, which enables the use of semiconductor beads for the study where low forces are required.

Keywords: Optical tweezers. Semiconductors. Optical Oscillators.

Lista de ilustrações

- Figura 1 – Parâmetros do feixe gaussiano. **a)** Esquema ilustrando os parâmetros do feixe gaussiano dentro do cone de luz. **b)** Variação dos parâmetros do feixe gaussiano em função do deslocamento longitudinal normalizado pelo comprimento de Rayleigh. *Linha sólida vermelha:* variação da cintura do feixe normalizada por w_0 . *Linha sólida azul:* variação da fase de Gouy. *Linha sólida preta:* variação do raio de curvatura normalizado pelo comprimento de Rayleigh. *Parâmetros usados:* $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $n_m = 1,33$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$. **Fonte:** criação do autor. 37
- Figura 2 – Comportamento teórico das forças de gradiente em função do deslocamento radial no regime de Rayleigh, para z fixo ($z = 5 \mu\text{m}$). **a)** Componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente. **b)** Componente \hat{z} da força de gradiente. *Linha sólida vermelha:* $Re(\Gamma) > 0$. *Linha pontilhada azul:* $Re(\Gamma) < 0$. Demais parâmetros: $a = 50 \text{ nm}$; $n_m = 1,33$; $n_p = 1,5$ (linha vermelha), $n_p = 1,2$ (linha azul), $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$; $P_t = 200 \text{ mW}$. **Fonte:** criação do autor. 39
- Figura 3 – Comportamento teórico da componente \hat{z} da força de espalhamento em função do deslocamento radial no regime de Rayleigh, para z fixo ($z = 5 \mu\text{m}$). *Linha sólida vermelha:* $Re(\Gamma) > 0$. *Linha pontilhada azul:* $Re(\Gamma) < 0$. Demais parâmetros: $a = 50 \text{ nm}$; $n_m = 1,33$; $n_p = 1,5$ (linha vermelha), $n_p = 1,2$ (linha azul), $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$; $P_t = 200 \text{ mW}$. **Fonte:** criação do autor. 41
- Figura 4 – Geração da força radiométrica pelo aquecimento não homogêneo da partícula e do meio ao seu redor. *Esféricas vermelhas pequenas:* moléculas do meio com temperatura T_2 . *Esféricas azuis pequenas:* moléculas do meio com temperatura T_1 . *Esfera grande em cor gradiente:* partícula absorvente, o lado vermelho corresponde ao lado de incidência dos fótons do laser e o lado de maior aquecimento e consequentemente de maior temperatura. **Fonte:** criação do autor. 42
- Figura 5 – Esquema ilustrando o diagrama de energia para um átomo (nível discreto) e para 10^{23} átomos (bandas de energia). **Fonte:** criação do autor. 43

Figura 6 – Diagrama simplificado da estrutura de bandas eletrônica de isolantes, semicondutores e metais. Em <i>azul</i> : os estados eletrônicos ocupado pelos elétrons. Em <i>cinza claro</i> : estados eletrônicos vazios. A sobreposição das bandas de condução e de valência para os metais ilustra que para esses materiais as bandas são parcialmente cheias e assumem ambos os papéis. Fonte : criação do autor.	45
Figura 7 – Gráfico principal: Variação do coeficiente de absorção do Germânio em função da energia de excitação. Gráfico inserido : resalta a variação do coeficiente de absorção do germânio para valores de $E_{Fóton} < E_{gap}^D$. Fonte : os gráficos foram construídos pelo autor a partir dos dados experimentais obtidos por Nunley <i>et al.</i> (NUNLEY et al., 2016a) . . .	49
Figura 8 – Esquema ilustrando a origem das oscilações de plasma. a) Gás de elétrons livres em equilíbrio em $t=0$. b) Separação das cargas positivas e negativas devido a perturbação de um campo elétrico externo e o surgimento do campo elétrico restaurador (\vec{E}_{res}) após a perturbação em $t = t'$. Fonte : criação do autor.	53
Figura 9 – Variação das propriedades ópticas dos semicondutores em função do comprimento de onda de excitação. <i>Linha sólida vermelha</i> : $\lambda_p = 1 \mu m$. <i>Linha sólida azul</i> : $\lambda_p = 2 \mu m$. <i>Linha sólida preta</i> : $\lambda_p = 3 \mu m$. a) variação da parte real do índice de refração. b) Variação do coeficiente de extinção. c) variação da reflectância d) Variação do coeficiente de absorção devido aos portadores livres. <i>Demais parâmetros</i> : $\epsilon_{opt} = 16$; $\tau_a = 10^{-13}$ s. Fonte : criação do autor.	58
Figura 10 – Esquema ilustrando a absorção de fótons. a) Absorção banda-a-banda: 1) um fóton com energia $\hbar\omega$ é absorvido gerando um buraco na banda de valência com energia E_{Hb} e um elétron na banda de condução com energia E_{He} . 2) Como a energia do par e-b é maior que a energia de equilíbrio térmico na suas respectivas bandas ($E_{tv} = E_v - K_bT$ banda de valência e $E_{tc} = E_c + K_bT$ banda de condução), o portador (e-b) termaliza para a sua respectiva energia de equilíbrio liberando a energia $(E_{He} - E_{tc}) + (E_{Hb} - E_{tv})$ na forma de calor na rede cristalina. b) Absorção dos portadores livres: 1') um elétron (buraco) livre na banda de condução (valência) absorve um fóton com energia $\hbar\omega$ sendo excitado para um estado com energia maior E_{ePL} (E_{bPL}). 2') o elétron (buraco) quente decai para a energia de equilíbrio térmico da sua respectiva banda (E_{tv} para a banda de valência e E_{tc} para a banda de condução) liberando a energia $E_{ePL} - E_c$ ($E_v - E_{bPL}$, para banda de valência) na forma de calor para a rede cristalina. Fonte : adaptado da referência (MEYER; BARTOLI; KRUER, 1980).	60

Figura 11 – Esquema ilustrando a recombinação Auger. O processo de recombinação ocorre depois da criação do par e-b ilustrado por 1) e 2) da Figura 10a. 3) O elétron 1 na banda de condução se recombina com o buraco na banda de valência liberando uma energia E_r que é absorvida por outro elétron livre na banda de condução (elétron 2). 4) O elétron 2 absorve E_r sendo excitado para um estado de de energia $E_{tc} + E_r$. 5) O elétron 2 decai para a energia de equilíbrio térmico na banda de condução liberando a energia E_r na forma de calor na rede cristalina do semiconductor. **Fonte:** adaptado da referência (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980). 61

Figura 12 – Esquema ilustrando a distribuição das fontes de aquecimento em um semiconductor para uma recombinação puramente não radiativa. *Linha sólida preta:* superfície de recombinação não radiativa. *Linha tracejada preta:* limite do semiconductor. *Roxo escuro:* delimita a camada de absorção α^{-1} . *Roxo claro:* delimita a camada de recombinação não radiativa que inclui a camada de absorção e a camada de difusão dos portadores $\alpha^{-1} + L_D$. **Lado esquerdo:** ilustração da distribuição das fontes em um semiconductor de espessura x . **Lado direito:** ilustração da distribuição das fontes de aquecimento sobre uma partícula de germânio e Silício com $2,5 \mu\text{m}$ de raio. *Parâmetros:* $\alpha_{Ge}^{-1} = 0,57 \mu\text{m}$ (NUNLEY et al., 2016a); $\alpha_{Si}^{-1} = 1000 \mu\text{m}$ (SCHINKE et al., 2015); $D_{Ge} = 17 \text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $D_{Si} = 15 \text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-8} \text{s}$; $a = 2,5 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 63

Figura 13 – **a)** Fração da energia absorvida emitida como calor pela i -ésima fonte para a recombinação integralmente não radiativa em função do tempo de recombinação dos portadores (τ). *Linha sólida azul:* fração da energia absorvida emitida pela termalização dos portadores quentes (χ_T). *Linha sólida roxo claro:* fração da energia absorvida emitida pela recombinação não radiativa no bulk (χ_B^{NR}). *Linha sólida preta:* fração da energia absorvida emitida pela recombinação não radiativa na superfície (χ_S^{NR}). **b)** Comparação entre o comprimento de aquecimento generalizado (L_H , linha sólida cinza), os comprimentos de difusão térmico (L_T , linha sólida laranja) e de portadores (L_D , linha sólida roxo claro) e o comprimento de penetração (α^{-1} , linha sólida azul) em função do tempo de interação t da radiação com o semiconductor. **Gráfico inserido:** a mesma coisa, porém para $t \leq \tau$. *Parâmetros:* $E_{gap} = 0,80 \text{eV}$ (MEYER; KRUEER; BARTOLI, 1980); $s = 2500 \text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $D = 15 \text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-8} \text{s}$; $D_t = 0,26 \text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\hbar\omega = 1,15 \text{eV}$. **Fonte:** criação do autor. 65

Figura 14 – Esquema ilustrando a distribuição das fontes de aquecimento em um semiconductor para uma recombinação puramente radiativa. *Linha tracejada preta*; limite do semiconductor. *Roxo escuro*: delimita a camada de absorção α^{-1} . *Roxo claro*: delimita a camada de recombinação radiativa, que inclui a camada de absorção e a camada de difusão dos portadores $\alpha^{-1} + L_D$, uma vez que em toda essa distribuição existe uma probabilidade não nula de ocorrer a absorção por um portador livre. **Lado esquerdo**: ilustração da distribuição das fontes em um semiconductor de espessura x . **Lado direito**: ilustração da distribuição das fontes de aquecimento sobre uma partícula de germânio e silício de $2,5 \mu\text{m}$. *Parâmetros*: $\alpha_{Ge}^{-1} = 0,57 \mu\text{m}$ (NUNLEY et al., 2016a); $\alpha_{Si}^{-1} = 1000 \mu\text{m}$ (SCHINKE et al., 2015); $D_{Ge} = 17 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $D_{Si} = 15 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-6} \text{ s}$; $a = 2,5 \mu\text{m}$. **Fonte**: criação do autor. 67

Figura 15 – **a)** Fração da energia absorvida emitida como calor pela i -ésima fonte para a recombinação integralmente radiativa em função do tempo de recombinação dos portadores (τ). *Linha sólida verde*: fração da energia emitida na forma de fótons (χ_{rad}). *Linha sólida azul*: fração da energia absorvida convertida em calor pela termalização dos portadores quentes induzidos (χ_T^{PG}). *Linha sólida roxo claro*: fração da energia absorvida convertida em calor devido a absorção dos portadores livres (χ_T^{APL}). **b)** Comparação entre o comprimento de aquecimento generalizado (L_H , linha sólida cinza), os comprimentos de difusão térmico (L_T linha sólida laranja), comprimento de difusão dos portadores (L_D , linha sólida roxo clara), e o comprimento de penetração (α^{-1} , linha sólida azul) em função do tempo de interação t entre o semiconductor e a radiação. **Gráfico inserido**: a mesma coisa, porém para $t \leq \tau$. *Parâmetros*: $\alpha_1 = 1700 \text{ cm}^{-1}$; $\alpha_{PL} = 300 \text{ cm}^{-1}$; $E_g = 0,80 \text{ eV}$; $\hbar\omega = 1,15 \text{ eV}$; $D_t = 0,26 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$; $D = 15 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$. **Fonte**: criação do autor. 68

- Figura 16 – Variação da temperatura na superfície do semiconductor (germânio) na posição de incidência da radiação em função do tempo de interação entre o semiconductor e a radiação. **a)** Recombinação integralmente não radiativa, $\tau = 10^{-8}$ s. **b)** Recombinação integralmente radiativa, $\tau = 10^{-6}$ s. *Linha sólida vermelha:* calculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 2 \mu\text{m}$ e $z = 2 \mu\text{m}$. *Linha sólida azul:* calculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 4 \mu\text{m}$ e $z = 7 \mu\text{m}$. *Parâmetros:* $w_0 = 0,36 \mu\text{m}$; $P = 10 \text{ mW}$; $a = 2,5 \mu\text{m}$; $R = 0,39$; $\rho_s = 5323 \text{ Kg.cm}^{-3}$; $c = 320 \text{ j.(Kg.K)}^{-1}$; parâmetros para o cálculo de L_H são os mesmos utilizados na Figura 13b (recombinação não radiativa) e na Figura 15b (recombinação radiativa). **Fonte:** criação do autor. 69
- Figura 17 – Diferença entre a temperatura na superfície do semiconductor (germânio) na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função do tempo de interação entre o semiconductor e a radiação. **a)** Recombinação integralmente não radiativa, $\tau = 10^{-8}$ s. **b)** Recombinação integralmente radiativa. $\tau = 10^{-6}$ s. *Linha sólida vermelha:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 2 \mu\text{m}$ e $z = 2 \mu\text{m}$. *Linha sólida azul:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 4 \mu\text{m}$ e $z = 7 \mu\text{m}$. *Parâmetros:* os mesmos utilizados na Figura 16. **Fonte:** criação do autor. 70
- Figura 18 – Microscopia eletrônica de varredura (MEV) de microesferas de silício obtidas pela técnica de ablação a laser em meio líquido (detalhes ver Apêndice A). As partículas apresentam uma forma esférica bem definida com superfície lisa e homogênea. **Fonte:** criação do autor. 72
- Figura 19 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos. L1, lente biconvexa de distância focal $f = 24,4 \text{ mm}$. L2, lente biconvexa de distância focal $L2 f = 100 \text{ mm}$. E1, E2 espelhos planos. E3 espelho dicróico (reflete a luz em 1064 nm). Transparência da objetiva; 0,33. Cintura do feixe gaussiano na entrada da objetiva: $\sigma = (3,3 \pm 0,1) \text{ mm}$. Objetiva 100x, $N.A = 1,3$ e imersão a óleo. **Fonte:** criação do autor. 72
- Figura 20 – **a)** Posição radial de uma partícula de silício de $2,5 \mu\text{m}$ de raio em função do tempo. Em *azul:* deslocamentos em $\varphi = \pi/2$, em *laranja:* deslocamento em $\varphi = 0$. **(b)** Esquema representando o sistema de coordenadas utilizado nesse trabalho. **c)** Força resultante sobre a partícula de silício para oscilações em $\varphi = \pi/2$. **d)** Força resultante sobre a partícula de silício para oscilações em $\varphi = 0$. **Fonte:** adaptado da referência (MOURA et al., 2020). 74

Figura 21 – (a) Sucessivos quadros de vídeo mostrando a oscilação da partícula de Si paralela a direção de polarização do laser ($\varphi = \pi/2$). Os quadros 1 e 5 mostram os padrões de difração para uma microesfera abaixo do plano focal. Os quadros 2 e 4 mostram o padrão de difração de uma partícula bem próxima ao plano focal. O quadro 3 mostra o padrão de difração para uma microesfera acima do plano focal. O Ponto amarelo está sobre o eixo óptico e a seta vermelha indica a direção de movimento da partícula. (b) Esquema representando a dinâmica de oscilação em relação ao eixo z . (c) quadros sucessivos do vídeo mostrando a oscilação da partícula de Si perpendicular a direção de polarização do laser ($\varphi = 0$). Os quadros 1 e 2 mostram o padrão de difração de uma partícula bem próxima ao plano focal. O Ponto amarelo está sobre o eixo óptico e a seta vermelha indica a direção de movimento da partícula. Fonte: criação do autor.	75
Figura 22 – Variação da força da força óptica resultante durante o tempo de uma oscilação. Gráfico inserido: Deslocamento radial em função do tempo da oscilação. Em azul o regime atrativo. Em vermelho: regime repulsivo, $t = 0$ s indica o início da oscilação. Fonte: criação do autor.	78
Figura 23 – a) <i>Esfera vermelha:</i> componente radial da força óptica sobre uma partícula de Si de $2,5 \mu\text{m}$ de raio em função da distância radial para o regime repulsivo. b) <i>Esfera azul:</i> componente radial da força óptica sobre uma partícula de Si de $2,5 \mu\text{m}$ de raio em função da distância radial para o regime atrativo. <i>Linha sólida preta:</i> ajuste feito pela Equação 5.8. Parâmetros obtidos: Regime repulsivo: $w_0 = (0,60 \pm 0,52) \mu\text{m}$; $f_{g\rho} = (30,7 \pm 3,0) \text{ pN}$; $f_{r\rho} = (9,9 \pm 1,8) \text{ pN}$; $\rho_c = (3,6 \pm 0,3) \mu\text{m}$. Regime atrativo: $w_0 = (2,1 \pm 0,1) \mu\text{m}$, $f_{g\rho} = (46,9 \pm 1,2) \text{ pN}$ e $f_{r\rho} = (11,6 \pm 0,9) \text{ pN}$; $\rho_c \simeq 0$. Fonte: extraído da referência (MOURA et al., 2020)	81
Figura 24 – Caracterização dos parâmetros da dinâmica das partículas de silício em pinças ópticas: a) amplitude e período médio como função da altura do foco, b) potência do laser. c) Aproximação máxima das partículas ao foco como função dos mesmos parâmetros. Fonte: extraído da referência (MOURA et al., 2020).	82
Figura 25 – Esquema ilustrando o duplo papel desempenhado pelo laser: construção da armadilha óptica que conduz as partículas semicondutoras para a região focal e agente excitador do material induzindo a geração dos portadores de carga. Fonte: criação do autor.	86
Figura 26 – Esquema ilustrando o sistema de coordenadas utilizado nesse capítulo. Fonte: criação do autor.	88

- Figura 27 – Perfil de intensidade do campo gaussiano de ordem zero focalizado pela objetiva. **a)** Variação da intensidade em função de ρ e z . **b)** Variação da intensidade em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. *Parâmetros:* $w_0 = 1,5 \mu\text{m}$; $P = 20 \text{ mW}$; $n_m = 1,33$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$. **Fonte:** criação do autor. 89
- Figura 28 – Taxa da geração de portadores na superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica. **a)** Taxa de geração em função de ρ e z . **b)** Taxa de geração em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. *Gráfico inserido:* Variação do $\log G$ em função de ρ . *Parâmetros:* $\hbar\omega = 1,15 \text{ eV}$; $\alpha = 1,7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$; $R = 0,39$; demais parâmetros ver Figura 27. **Fonte:** criação do autor. 90
- Figura 29 – Densidade de portadores resultante na superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica. **a)** Densidade de portadores em função de ρ e z . **b)** Densidade de portadores em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. *Gráfico inserido:* Variação do $\log N$ em função de ρ . *Parâmetros:* $\tau = 80 \text{ ns}$; demais parâmetros ver Figura 28. **Fonte:** criação do autor. 91
- Figura 30 – Quadrado da frequência de plasma induzida sobre a superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica normalizada pelo quadrado da frequência de excitação do laser. **a)** Variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função de ρ e z . Linha tracejada preta: pontos onde $\omega_p = \omega_{1064}$. **b)** Variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função do deslocamento radial com $z = 5 \mu\text{m}$. *Parâmetros:* $e = 1,602 \times 10^{-19} \text{ C}$; $\varepsilon_{opt} = 19,2$; $\varepsilon_0 = 8,854 \times 10^{-12} \text{ C}^2 \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$; $m_{eff}^* = \left(\frac{1}{0,12 \cdot m_e} + \frac{1}{0,21 \cdot m_e}\right)^{-1} = 0,076 \cdot m_e$; $m_e = 9,109 \times 10^{-31} \text{ Kg}$; $\omega_{1064} = 1,75 \times 10^{15} \text{ rad/s}$; $\tau = 80 \text{ ns}$; demais parâmetros ver Figura 29. **Fonte:** criação do autor. 92
- Figura 31 – Parte real do índice de refração induzido sobre a superfície da partícula iluminada pela pinça óptica. **a)** Variação da parte real do índice de refração induzido na superfície do Ge em função de ρ e z . *Linha tracejada:* pontos onde $n_{Ge} = n_m = 1,33$. **b)** Variação da parte real do índice de refração induzido na superfície do Ge em função do deslocamento radial. *Parâmetros:* $\tau_a = 10^{-13} \text{ s}$; $\tau = 80 \text{ ns}$; demais parâmetros ver Figura 30. **Fonte:** criação do autor. 93
- Figura 32 – **a)** Variação da reflectância induzida sobre a superfície da partícula de Ge em função de ω_p/ω_{1064} . **b)** Variação do termo do coeficiente de absorção devido a absorção dos portadores livres em função de ω_p/ω_{1064} . *Gráfico inserido:* a mesma coisa do item b) mas para $\omega_p/\omega_{1064} < 1$. *Parâmetros:* $\tau = 80 \text{ ns}$; demais parâmetros ver Figura 32. **Fonte:** criação do autor. 95

- Figura 33 – Polarizabilidade induzida sobre a superfície da partícula iluminada pela pinça óptica. **a)** Variação da parte real da polarizabilidade induzida sobre a superfície em função de ρ e z . *Linha tracejada preta:* pontos onde $Re(\Gamma) = 0$. **b)** Variação da parte real da polarizabilidade em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu m$. **c)** Variação da parte real da polarizabilidade em função de ω_p/ω_{1064} . **d)** Variação da parte imaginária da polarizabilidade em função de ω_p/ω_{1064} . *Parâmetros:* $\tau=80$ ns; $n_m = 1,33$; demais parâmetros ver Figura 32. **Fonte:** criação do autor. 97
- Figura 34 – Componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente ($F_{G\rho}$). **a)** Variação de $F_{G\rho}$ em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu m$. *Gráfico inserido:* variação total de $F_{G\rho}$, a linha roxa tracejada indica a curva matemática obtida da Equação 6.13 que complementa a solução física mostrada no item a). **b)** Variação de $F_{G\rho}$ em função de ω_p/ω_{1064} para uma partícula colocada na posição $(\rho, z)=(0.5,5)$. **Parâmetros:** $\tau = 80$ ns; $a = 100$ nm; $n_m = 1,33$; demais parâmetros ver Figura 33. **Fonte:** criação do autor. 98
- Figura 35 – Variação da força de gradiente em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$) para vários tempos de recombinação dos portadores. **a)** Componente $\hat{\rho}$. **b)** Componente \hat{z} . *Linha sólida azul:* $\tau = 10$ ns. *Linha sólida vermelha:* $\tau = 80$ ns. *Linha sólida verde:* $\tau = 300$ ns. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor. 99
- Figura 36 – Variação da força de espalhamento em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$) para vários tempos de recombinação dos portadores. **a)** Componente $\hat{\rho}$. **b)** Componente \hat{z} . *Linha sólida azul:* $\tau = 10$ ns. *Linha sólida vermelha:* $\tau = 80$ ns. *Linha sólida verde:* $\tau = 300$ ns. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor. 100
- Figura 37 – Variação da componente $\hat{\rho}$ das forças ópticas envolvidas no sistema em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$). **a)** Tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. **b)** Tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida preta:* força de espalhamento. *Linha tracejada azul;* Força óptica resultante. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor. 101

- Figura 38 – Variação da componente \hat{z} das forças ópticas envolvidas no sistema em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$). **a)** Tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. **b)** Tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida preta:* força de espalhamento. *Linha pontilhada azul;* Força óptica resultante. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor. 102
- Figura 39 – Variação das componentes da força óptica resultante em função de ρ e z . **a)** Componente $\hat{\rho}$ e $\tau = 10$ ns. **b)** Componente \hat{z} e $\tau = 10$ ns. **c)** Componente $\hat{\rho}$ e $\tau = 80$ ns. **d)** Componente \hat{z} e $\tau = 80$ ns. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor. 103
- Figura 40 – Esquema ilustrando a dinâmica oscilatória das partículas de Ge. **Fonte:** criação do autor. 104
- Figura 41 – Diferença entre a temperatura na superfície do semiconductor na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função do tempo de interação entre o semiconductor e a radiação considerando a recombinação como não radiativa. *Linha sólida vermelha:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 1 \mu m$ e $z = 1 \mu m$ e tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Linha sólida azul:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 0,15 \mu m$ e $z = 4 \mu m$ e tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Parâmetros:* $a = 100$ nm; parâmetros do feixe ver Figura 27; parâmetros para o cálculo da temperatura ver Figura 20. **Fonte:** criação do autor. 105
- Figura 42 – **a)** Microscopia eletrônica de varredura (MEV) de microesferas de Ge obtidas pela técnica de ablação a laser em solução líquida. As partículas apresentam uma forma esférica bem definida com contornos lisos e superfície homogênea. **b)** Espectros Raman adquiridos a partir do bulk de germânio (*linha sólida vermelha*, dimensão de milímetros) e micropartículas de germânio (*linha sólida azul*), destacando a linha Raman em 300 cm^{-1} comum em ambos os espectros. Os espectros Raman indicam que a eles não experimentaram mudanças químicas durante o processo de síntese. **Fonte:** extraído da referência (CAMPOS et al., 2019). 108

- Figura 43 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos da Figura 44 e da Figura 45. A saída do laser é conectada a uma fibra óptica que contém um telescópio acoplado que transmite o laser com 1 cm de diâmetro. Transparência da objetiva; 0,31. Cintura do feixe gaussiano na entrada da objetiva: $\sigma = (1,36 \pm 0,05)$ mm. Objetiva 100x N.A. 1,4 imersão a óleo. E1 e E2 espelhos planos. E3 espelho dicróico (reflete 1064 nm). **Fonte:** criação do autor. 108
- Figura 44 – Partículas de germânio de $1,6 \mu m$ de raio sobre o feixe gaussiano linearmente polarizado de uma pinça óptica. Potência na entrada da objetiva 37mW. **a)** Sucessivos frames de vídeo mostrando a partícula de Ge oscilando em direção ao eixo óptico. **b)** Sistema de coordenadas mostrando a direção de polarização, juntamente com a definição do ângulo azimutal θ . **c)** Deslocamento radial da partícula (ρ) em função do tempo. O fundo azul (vermelho) indica que as oscilações estão ocorrendo ao longo da direção perpendicular (paralela) à direção de polarização da luz, o fundo verde indica o período transiente onde a partícula deixa de oscilar na direção perpendicular e começa a oscilar na direção paralela a direção de polarização da luz. Os ciclos de oscilação numerados indicam os frames mostrados no item a). **d)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. Gráfico inserido: mostra a variação da amplitude das oscilações com θ . **Fonte:** extraído da referência (CAMPOS et al., 2019). 110
- Figura 45 – Partícula de germânio, $1,6 \mu m$ de raio, oscilações na direção perpendicular a direção de polarização da luz. **a)** Variação da amplitude das oscilações em função da potência do laser medida na entrada da objetiva. **b)** Variação do período das oscilações em função da potência do laser medido na entrada da objetiva. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor. 111
- Figura 46 – Partícula de germânio com $2,5 \mu m$ de raio, montagem experimental fornecida pela Figura 19, potência na entrada da objetiva $P = 37$ mW. **a)** Deslocamento radial em função do tempo. **b)** Comparação entre a componente radial da força óptica resultante obtida experimentalmente (esferas pretas) e a componente radial das forças ópticas prevista pelo modelo efetivo descrito pela Equação 7.7 e Equação 7.6. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida azul:* força de espalhamento. *Linha tracejada verde:* força total (força de gradiente + força de espalhamento). *Parâmetros modelo:* $w_0 = 0,40 \mu m$; $P = 16$ mW; $z = 4 \mu m$; $f_{G\rho} = 18$ pN; $f_{R\rho} = 3$ pN; $\tau = 220$ ns; demais parâmetros ver Figura 30. **Fonte:** criação do autor. 113

- Figura 47 – **a)** Recombinação não radiativa. **b)** Recombinação radiativa. Diferença entre a temperatura na superfície do semiconductor na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função dos pontos (ρ, z) iluminados pela pinça óptica para um tempo de interação de $t = 10$ ms. *Parâmetros:* $w_0 = 0,40 \mu m$; $P = 16$ mW; $\tau = 220$ ns; $a = 2,15 \mu m$; demais parâmetros ver Figura 16. **Fonte:** criação do autor. 116
- Figura 48 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos com feixe de Bessel. L1 lente plano-convexa $f = 25,4$ mm, L2 lente plano convexa $f = 75,0$ mm, as lentes L1 e L2 atuam como um “beam expander” (expansor de feixe). PO placa de meia onda, para ajustar a polarização do feixe a polarização de trabalho do modulador espacial de luz (SLM). L3 lente plano convexa $f = 1000$ mm e L4 lente plano convexa $f = 200$ mm. E1 e E2 espelhos planos, E3 espelho dicróico (reflete 1064 nm). **Fonte:** criação do autor. 119
- Figura 49 – **a)** Esquema ilustrando a definição de raio de Bessel (seta vermelha). **b)** Variação do perfil transversal de intensidade do feixe de Bessel para diferentes raios de Bessel, o número no gráfico indica o raio (em pixels) do menor anel de Bessel selecionado no software do SLM para gerar o perfil de Bessel. Detalhes da conversão do valor do raio de Bessel de pixel para mm (na entrada da objetiva) ver Apêndice C. **c)** Fotografia mostrando os anéis do feixe de Bessel na entrada da objetiva. **Fonte:** criação do autor. 121
- Figura 50 – Pinçamento das partículas de germânio no feixe de Bessel focalizado. altura focal: $h = 10 \mu m$, potência na entrada da objetiva: 32 mW, raio da partícula $a = 2,4 \mu m$. **a)** Quadro do vídeo mostrando a posição de pinçamento, círculo amarelo posição do foco. **b)** Esquema ilustrando a configuração do pinçamento, a partícula se encontra fora do eixo óptico e abaixo do plano focal. **c)** Variação da constante de força da pinça (ou rigidez da armadilha) κ em função do raio de Bessel. *Esferas pretas:* κ_x . *Esferas azuis:* κ_y . **d)** Posição média do pinçamento (distância entre o centroide da partícula e o eixo-óptico) em função do raio de Bessel. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor. 123

- Figura 51 – Pinçamento das partículas de germânio no feixe de Bessel focalizado. raio de Bessel: $\rho_b = 0,49 \text{ mm}$, potência na entrada da objetiva: 32 mW, raio da partícula $a = 2,4 \text{ }\mu\text{m}$. **a)** Sucessivos frames de vídeo em diferentes alturas focais mostrando o padrão de difração da partícula. **b)** Variação da constante de força da pinça (ou rigidez da armadilha) κ em função da altura focal h . *Esferas pretas: κ_x . Esferas azuis: κ_y .* **c)** Posição média do pinçamento (distância entre o centroide da partícula e o eixo-óptico) em função da altura focal. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor. 125
- Figura 52 – Sucessivos frames de vídeo mostrando a partícula de Ge executando a dinâmica oscilatória 3D. Os quadros à direita ilustram a posição da partícula em relação ao plano- ρz , note que a partícula cruza o plano focal. Ponto amarelo indica a posição do eixo óptico no plano xy . *Parâmetros da oscilação: $a = 2,4 \text{ }\mu\text{m}$; $\rho_b = 0,64 \pm 0,02 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \text{ }\mu\text{m}$.* **Fonte:** criação do autor. 126
- Figura 53 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação: $a = 2,4 \text{ }\mu\text{m}$; $\rho_b = 0,64 \pm 0,02 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \text{ }\mu\text{m}$.* **Fonte:** criação do autor. 126
- Figura 54 – **a)** Amplitude média de oscilação em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). **b)** Período médio das oscilações em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). **c)** Deslocamento radial da partícula de germânio em função do tempo para $\rho_b = 0,61 \text{ mm}$. Os círculos vermelhos indicam o efeito de desaceleração (ou pequenas oscilações) causado pela interferência do campo elétrico do feixe de Bessel ao ser focalizado. **d)** Média da aproximação máxima ao eixo óptico (ρ_{min}) em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). As barras verticais representam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor. 128
- Figura 55 – Esquema ilustrando o processo de síntese de partículas através da técnica de ALSL em água deionizada. **Fonte:** adaptado da referência (AMENDOLA; MENEGHETTI, 2013). 139
- Figura 56 – Perfil de intensidade (normalizado) para o feixe gaussiano com $w(z) = 5 \text{ u.a.}$ **a)** Projeção transversal. **b)** Projeção ao longo do eixo- ρ . u.a.=unidades arbitrárias. **Fonte:** criação do autor. 145
- Figura 57 – Perfil de intensidade (normalizado) do modo fundamental de Bessel para $\rho_B = 1.5 \text{ u.a.}$ **a)** Projeção transversal. **b)** Projeção ao longo do eixo- ρ . u.a.=unidades arbitrárias. **Fonte:** criação do autor. 147

- Figura 58 – **a)** Determinação do raio de Bessel (ρ_B) a partir do ajuste da Equação B.30 no perfil de intensidade (normalizado) fotografado na entrada da objetiva. O perfil foi gerado pelo software da SLM escolhendo-se o raio do anel central do feixe de Bessel (em pixels). Para um raio do anel central de 34 pixels obtivemos $\rho_B = 0,499$ mm. **b)** Variação do ρ_B em função do raio do anel central (B) no SLM. As barras verticais representam o erro obtido do ajuste. **Fonte:** criação do autor. 148
- Figura 59 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,499$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 149
- Figura 60 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,529$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 149
- Figura 61 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,558$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 150
- Figura 62 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,587$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 150
- Figura 63 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,616$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 151
- Figura 64 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,645$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 151

- Figura 65 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,674 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 152
- Figura 66 – **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. Existe uma posição de equilíbrio, onde a partícula pode ser aprisionada, em $\rho = (4,45 \pm 0,40) \mu$. Quando a partícula é perturbada e se aproxima do eixo óptico ela pode executar a dinâmica oscilatória. Note que as forças ópticas sozinhas não conseguem manter a dinâmica oscilatória. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,703 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 152
- Figura 67 – Aprisionamento das partículas de germânio. **a)** Deslocamento radial em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. O aprisionamento ocorre em $\rho = (4,07 \pm 0,12) \mu$ com uma rigidez de $\kappa_x = (0,019 \pm 0,001) \text{ pN}/\mu\text{m}$ e $\kappa_y = (0,0086 \pm 0,0005) \text{ pN}/\mu\text{m}$. *Parâmetros do aprisionamento:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,732 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor. 153

Lista de tabelas

Tabela 1 – Tabela das principais propriedades do germânio e do silício utilizadas nesse trabalho. Todos os dados são referentes à $T = 300$ K. Abreviação: $m_e = 9 \times 10^{-31}$ Kg corresponde a massa fundamental do elétron. **Fontes:** [1]-(REZENDE, 2004a); [2]-(MEYER; KRUER; BARTOLI, 1980); [3]-(NUNLEY et al., 2016b); [4]-(SCHINKE et al., 2015); [5]-(FOX, 2002); [6]-(KITTEL; MCEUEN, 2018). 154

Sumário

1	INTRODUÇÃO	28
2	MANIPULAÇÃO ÓPTICA	32
2.1	Pinças Ópticas	32
2.2	Forças Ópticas	33
2.2.1	Força de Gradiente e Forças de Espalhamento	33
2.2.2	Força Fotoforética	40
3	SEMICONDUCTORES	43
3.1	Origem das Estruturas de Banda	43
3.2	Geração de portadores	44
3.2.1	Geração Extrínseca	45
3.2.2	Geração Intrínseca	46
3.2.2.1	Geração de Portadores via Absorção Óptica	48
4	ÓPTICA DOS SEMICONDUCTORES	52
4.1	Oscilações de plasma	52
4.2	Modelo de Drude	54
4.3	Óptica dos semicondutores	55
4.4	Aquecimento da rede cristalina devido à absorção óptica	59
5	MICROPARTÍCULAS DE SÍLCIO COMO FERRAMENTA PARA EXPERIMENTOS DE PINÇAS ÓPTICAS.	71
5.1	Materiais e Métodos	71
5.2	Resultados e Discussão	73
5.3	Conclusão	84
6	GENERALIZAÇÃO DO MODELO DE ASHKIN DAS FORÇAS ÓPTICAS PARA INCLUIR O EFEITO DA GERAÇÃO DOS PORTADORES DE CARGA NAS PARTÍCULAS SEMICONDUCTORAS NO REGIME DE RAYLEIGH	85
6.1	Introdução	85
6.2	O Modelo	87
6.3	Conclusão	106
7	COMPORTAMENTO OSCILATÓRIO DAS MICROPARTÍCULAS DE GERMÂNIO NO FEIXE DE BESSEL E NO FEIXE DE GAUSS.	107

7.1	Feixe Gaussiano	107
7.1.1	Materiais e Métodos	107
7.1.2	Resultados e Discussão	109
7.2	Feixe de Bessel	117
7.2.1	Função de Bessel	118
7.2.2	Materiais e Métodos	118
7.2.3	Caracterização do Feixe de Bessel	119
7.2.4	Resultados e Discussão	120
7.2.4.1	Pinçamento no feixe de Bessel	120
7.2.5	Oscilações no feixe de Bessel	124
7.3	Conclusão	130
	REFERÊNCIAS	132
	APÊNDICE A – PROCESSO DE SÍNTESE DAS PARTÍCULAS ATRAVÉS DA TÉCNICA DE ABLAÇÃO A LASER EM SOLUÇÃO LÍQUIDA	138
	APÊNDICE B – FEIXES ÓPTICOS	141
B.1	Equação de Helmholtz	141
B.2	Aproximação Paraxial	142
B.2.1	Feixe Gaussiano	143
B.3	Solução Exata da Equação de Helmholtz	144
	APÊNDICE C – DINÂMICA OSCILATÓRIA DA PARTÍCULA DE GERMÂNIO VARIANDO O RAIOS DE BESSEL	148
	APÊNDICE D – PRINCIPAIS PROPRIEDADES DOS SEMICON- DUTORES GERMÂNIO E SILÍCIO	154
	ANEXO A – TRABALHOS PUBLICADOS CORRELACIONADOS COM O TEMA DA TESE	155
	ANEXO B – TRABALHOS PUBLICADOS DURANTE O DOU- TORADO	158

1 INTRODUÇÃO

Desde os trabalhos iniciais de Arthur Ashkin (ASHKIN, 1970a; ASHKIN; DZIEDZIC, 1977; ASHKIN, 2006) na década de 1970, as pesquisas de manipulação de partículas com pinças ópticas vêm crescendo fortemente. A manipulação de partículas dielétricas (ROCHA, 2009) e metálicas (SATO; HARADA; WASEDA, 1994) tem encontrado uma grande aplicação no estudo de processos bioquímicos e biofísicos indo desde a investigação de parâmetros mecânicos de polímeros orgânicos à complexidade de motores celulares. Com o surgimento e desenvolvimento de novos materiais tornou-se necessário conhecer o comportamento desses materiais quando manipulados com o uso de pinças ópticas.

Neste trabalho nós apresentamos os resultados de nossas investigações teóricas e experimentais sobre as oscilações de partículas semicondutoras na interação com pinças ópticas. Nosso grupo vem estudando o comportamento oscilatório das partículas semitransparentes desde o trabalho pioneiro com os isolantes topológicos Bi_2Te_3 e Bi_2Se_3 (CAMPOS et al., 2018a). Como Bi_2Te_3 e Bi_2Se_3 são semicondutores que exibem comportamento (ou fase) de isolante topológico, alguns questionamentos surgiram: seriam as oscilações resultado das propriedades exclusivas da fase de isolantes topológicos ou da natureza semicondutora das partículas? O mesmo comportamento seria observado para outras partículas de semicondutores? Que propriedades os semicondutores precisam possuir para que as oscilações ocorram? Para responder esses questionamentos nós conduzimos um estudo experimental sobre a interação das microesferas de germânio (Ge) com a técnica da pinça óptica. A escolha do Ge se deve pelo fato de possuir propriedades ópticas próximas as do Bi_2Te_3 , como: alto índice de refração, alto coeficiente de absorção e possuir gap direto no comprimento de onda do laser utilizado para montar a pinça óptica (1064 nm). Nós observamos que as partículas de Ge também possuíam dinâmica oscilatória (CAMPOS et al., 2019), como as observadas para as partículas de isolante topológico (IT). Entretanto, o comportamento das partículas de Ge apresentava um atributo adicional; a direção de oscilação depende fortemente da direção de polarização do laser, ou seja, as partículas apresentam uma direção preferencial de oscilação. Como as partículas de IT e de Ge possuem um alto coeficiente de absorção no comprimento de onda de 1064 nm, nosso grupo propôs um modelo efetivo (CAMPOS et al., 2018a; CAMPOS et al., 2019) que consiste na competição entre as forças ópticas usuais e a força fotoforética. Além disso, a dependência da direção de polarização do laser foi incluída no modelo efetivo para as oscilações das partículas de Ge através da componente azimutal da força de gradiente¹ predita pela teoria de espalhamento Mie (DUTRA et al., 2007).

¹ A componente azimutal da força de gradiente surge devido à focalização do feixe não paraxial que perde a simetria esférica, alongando-se na direção de polarização do feixe (RICHARDS; WOLF, 1959).

Nós esperamos que a componente fotoforética domine a força repulsiva quando as partículas absorvem consideravelmente a luz no comprimento de onda utilizado em pinças ópticas (1064 nm), como é o caso para as partículas de Bi_2Se_3 ($\alpha_{BiSe} = 6,68 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$) (FANG et al., 2020a), germânio ($\alpha_{Ge} = 1,4 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$) (MEYER; KRUER; BARTOLI, 1980) e em partículas metálicas como prata ($\alpha_{Ag} = 8,5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$) (JIANG; PILLAI; GREEN, 2016) e ouro ($\alpha_{Au} = 8,78 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$) (MCPEAK et al., 2015). Por isso, ao observar que as partículas de semicondutores com um coeficiente de absorção menor, como é o caso do Silício ($\alpha_{Si} = 9,78 \text{ cm}^{-1}$) (SCHINKE et al., 2015) também apresentam dinâmica oscilatória nos fez repensar o papel da força fotoforética.

Da física do estado solido sabemos que na região do infravermelho, o aquecimento de materiais semicondutores, via absorção óptica, ocorre a partir da recombinação (e em menor parte da termalização) não radiativa dos portadores de carga gerados, ou seja, o aquecimento da rede cristalina é uma consequência da geração de portadores de carga no semicondutor (MEYER; BARTOLI; KRUER, 1980). Entretanto, a geração de portadores de carga modifica as propriedades ópticas dos semicondutores (BOYD, 2020; FOX, 2002), principalmente o índice de refração que é um elemento chave na criação de armadilhas ópticas (ASHKIN, 2006). Quando essas modificações são incluídas no cálculo das forças ópticas, considerando valores de parâmetros típicos de semicondutores de gap direto, o resultado é que a força de gradiente pode exibir um comportamento repulsivo, o que poderia atuar em conjunto com as forças térmicas para produzir as oscilações, ou como discutiremos no capítulo 7, descrever as oscilações somente em função dessa inversão da força de gradiente.

Em resumo, no [Capítulo 2](#) nós abordaremos e discutiremos a origem física das forças ópticas que surgem devido à interação da pinça óptica com as partículas dielétricas. A abordagem será feita no chamado regime de Rayleigh, que basicamente é o regime óptico utilizado quando a variação de fase da onda EM pode ser considerada desprezível ao se propagar pelo material, o que geralmente implica dizer que as dimensões da partícula são muito menores que o comprimento de onda da radiação.

No [Capítulo 3](#) faremos um breve resumo sobre a física dos semicondutores, dando ênfase às propriedades de interesse nesse trabalho tais como: a origem das estruturas de bandas, a geração de portadores extrínsecos e intrínsecos com destaque para geração via absorção óptica.

No [Capítulo 4](#) mostramos como a variação da densidade de portadores em um semicondutor modifica as suas propriedades ópticas. Além disso, mostraremos como o aquecimento da rede cristalina do semicondutor está intimamente associada à geração de portadores de carga e estimaremos a variação de temperatura na superfície do semicondutor devido a absorção óptica.

No [Capítulo 5](#) apresentaremos os resultados experimentais e o modelo desenvolvido

pelo nosso grupo para a interação das micropartículas esféricas de silício (Si) com o feixe gaussiano de uma pinça óptica linearmente polarizada. As partículas de Si apresentaram dinâmica oscilatória cuja direção de oscilação depende da direção de polarização do feixe do laser. Além disso, podemos observar que, dependendo da altura focal, as partículas podem ser aprisionadas em armadilhas 3D com uma rigidez que permite obter forças na escala de femto-Newtons. Os resultados apresentados nesse capítulo foram publicados no periódico “Optics Letters” em março de 2020 com o título: “Silicon microparticles as handles for optical tweezers experiments” (<https://doi.org/10.1364/OL.383139>) referência (MOURA et al., 2020).

No **Capítulo 6** apresentaremos o modelo teórico que nos permite compreender como a geração de portadores de carga modifica as forças ópticas em uma partícula semicondutora no regime de Rayleigh. O modelo pode ser visto como uma generalização do modelo de Ashkin (ASHKIN et al., 1986) e sugere que, dentro do regime de Rayleigh, o efeito da geração de portadores sobre as forças ópticas são suficientes para induzirem uma dinâmica oscilatória sobre as partículas semicondutoras, análogas às que observamos experimentalmente para as micropartículas de silício e germânio, sem a necessidade de incluir nenhum efeito térmico.

Finalmente no **Capítulo 7** nós apresentaremos os resultados experimentais para a interação das micropartículas de germânio com duas configurações ópticas diferentes: 1) uma pinça óptica construída com a focalização de um laser gaussiano e 2) uma pinça óptica construída com a focalização de um feixe de Bessel. Para o feixe gaussiano, as partículas de germânio apresentaram dinâmica oscilatória cuja direção de oscilação depende da direção da polarização do feixe. Para o feixe de Bessel obtivemos dois resultados distintos, para baixas potências (até 50 mW) as partículas de germânio são aprisionadas fora do eixo-óptico e abaixo do plano focal, para potências maiores que 50 mW observamos a dinâmica oscilatória que em alguns aspectos se assemelham às oscilações observadas no feixe gaussiano, porém sem a dependência da direção de polarização do feixe. Os resultados obtidos para o feixe de Bessel indicam a possibilidade da construção de uma armadilha híbrida, onde é possível manipular as partículas e induzir a dinâmica oscilatória, o que amplia o uso das partículas semicondutoras em pinça óptica. Os resultados obtidos para o feixe de Gauss foram publicados no periódico “Physical Review Research” em novembro de 2019 com o título “Germanium microparticles as optically induced oscillators in optical tweezers” (<https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.1.033119>) referência (CAMPOS et al., 2019).

Nós incluímos no final do texto uma série de apêndices que permite uma melhor compreensão do trabalho apresentado junto com uma coletânea de artigos que foram publicados durante o doutorado. O processo de síntese das partículas utilizadas nesse trabalho é apresentado no **Apêndice A** enquanto que no **Apêndice B** apresentamos uma

dedução dos feixes ópticos a partir da equação de Helmholtz.

2 Manipulação Óptica

2.1 Pinças Ópticas

Johannes Kepler (1571-1630) foi um dos primeiros cientistas a intuir que a luz seria capaz de empurrar alguns objetos. Ele acreditava que os raios solares atuando na cauda dos cometas as varreria para longe, em uma direção sempre oposta ao Sol.

Alguns séculos mais tarde, o físico e matemático escocês James Clerk Maxwell (1831-1879), através de seu brilhante trabalho em eletrodinâmica, demonstrou que Kepler estava certo; entretanto, as forças exercidas pelos feixes de luz são insignificantes frente a objetos macroscópicos. Além disso, são extremamente rarefeitos, o que leva na prática, a serem fracos até para objetos microscópicos.

Com o surgimento do raio laser em 1960, que é capaz de concentrar uma grande quantidade de luz em um único feixe, passa a surgir a possibilidade de utilizar a luz como uma ferramenta para manipulação de objetos na escala microscópica. Foi Arthur Ashkin (1922-2020) em 1969, trabalhando nos laboratórios Bell, nos Estados Unidos, quem primeiro utilizou os lasers para manipulação e aprisionamento de pequenas partículas dielétricas; dando início a uma revolução tanto na física como na biologia (ASHKIN, 1970b). Em particular, chamou a atenção a grande aceleração que as partículas adquiriam ao serem colididas com o feixe de um laser, mesmo por um laser de baixa potência (a concentração dos raios garante a eficácia).

No começo, a técnica foi desenvolvida para a manipulação e aprisionamento de pequenos átomos, o que lhe rendeu o nome de pinça óptica, mas foi a partir de 1987, que as pinças ópticas encontraram sua maior utilidade, dentro da Biologia (ASHKIN; DZIEDZIC, 1987; MAZOLLI; NETO; NUSSENZVEIG, 2003). A grosso modo, as pinças ópticas podem ser entendidas como feixes de lasers altamente focalizados (usualmente através da objetiva de um microscópio). Próximo à região focal da objetiva é possível aprisionar partículas (geralmente dielétricas) e manipulá-las, utilizando-as como ferramentas em várias aplicações. Dentre as várias aplicações da técnica de pinça óptica dentro da biologia, podemos destacar o aprisionamento de vírus e bactérias (ASHKIN; DZIEDZIC, 1987), manipulação de células individuais (ZHANG; LIU, 2008), estudo de propriedades mecânicas de membranas celulares (FAZAL; BLOCK, 2011), estudo de proteínas (BUSTAMANTE et al., 2020), interação DNA-compostos (BAZONI; MOURA; ROCHA, 2020), entre outras (POLIMENO et al., 2018). As próximas seções detalham como as forças ópticas surgem e permitem o aprisionamento das partículas dielétricas no chamado regime de Rayleigh.

2.2 Forças Ópticas

A luz pode transferir momento e energia ao interagir com a matéria. De uma maneira geral, podemos dividir as forças ópticas entre aquelas que são oriundas da transferência de momento e aquelas que são oriundas da transferência de energia (geralmente ocorrendo de forma indireta, como veremos). As chamadas pinças ópticas (ROCHA, 2009) são armadilhas produzidas com feixe único de lasers altamente focalizados que utilizam a transferência de momento entre o laser e partículas semitransparentes (geralmente dielétricos) para aprisioná-las próximo à região focal. Feixes que diminuem os efeitos de espalhamento, como os que possuem polarização radial (NIEMINEN; HECKENBERG; RUBINSZTEIN-DUNLOP, 2008) ou os de centro escuros ¹ (SAKAI; NODA, 2007), podem ser utilizados para aprisionarem partículas metálicas tanto no regime de Rayleigh (SATO; HARADA; WASEDA, 1994) quanto no regime da óptica geométrica (SATO; HARADA; WASEDA, 1994).

Para partículas que tem a capacidade de absorver luz quando imersas em um fluido (líquido ou gás), a possibilidade de usar a transferência de momento para aprisioná-las é drasticamente reduzida, pois a absorção leva ao surgimento de uma força da dinâmica do fluido agindo sobre as partículas. Essa força, que tem origem na transferência de energia da luz para a partícula é conhecida como força fotoforética (SHVEDOV et al., 2014). A seguir, detalharemos o mecanismo de como essas forças surgem e atuam no cenário da técnica da pinça óptica.

2.2.1 Força de Gradiente e Forças de Espalhamento

Até o final da década de 1970 as armadilhas ópticas eram construídas basicamente utilizando uma geometria com dois ou mais feixes (colocados de forma oposta) de modo que o aprisionamento ocorria exclusivamente em razão da pressão de radiação exercida pelos dois feixes (ASHKIN, 1970a). Em 1978 (ASHKIN, 1978), quando tentava aprisionar e resfriar átomos, Ashkin descobriu a existência de uma força líquida de pressão de radiação reversa ² em feixes fortemente focalizados, o que permitia a construção de armadilhas com feixe único. No trabalho de 1986 (ASHKIN et al., 1986), Ashkin demonstrou a validade das armadilhas de feixe único para partículas cujas dimensões eram muito menores que o comprimento de onda do laser. Finalmente em 1992 (ASHKIN, 1992) Ashkin demonstrou, e explicou através de um modelo simples de raios ópticos, o aprisionamento de partículas cujas dimensões eram muito maiores que o comprimento de onda do laser.

A partir de 1990, com o sucesso da utilização das pinças ópticas na biologia,

¹ Feixes de centro escuros são feixes cuja intensidade ao longo do eixo óptico é nula, como por exemplo, os feixes de Bessel de primeiro tipo de ordem 1 ou maior.

² Hoje em dia é conhecida como força de gradiente, uma vez que decorre do gradiente da intensidade do campo elétrico.

vários pesquisadores revisitaram os trabalhos iniciais de Ashkin e propuseram correções e melhorias para adequar a teoria às condições experimentais. Os trabalhos feitos por Barton *et al.* em 1988 (BARTON; ALEXANDER; SCHAUB, 1988) e em 1989 (BARTON; ALEXANDER, 1989) propunham correções à aproximação paraxial³ para feixes gaussianos fortemente focalizados que possibilitaram a descrição mais completa do campo de luz incidente (e os campos espalhados) com base na equação de onda vetorial e no trabalho previamente publicado em 1979 por Davis (DAVIS, 1979). Nos trabalhos de Gouesbet *et al.* publicados em 1988 (GOUESBET; MAHEU; GRÉHAN, 1988), 1994 (REN; GREHA; GOUESBET, 1994) e em 1996 (REN; GRÉHAN; GOUESBET, 1996), os pesquisadores generalizaram a teoria de espalhamento de Lorenz-Mie para descrever a interação de partículas de tamanhos arbitrários com feixes de formas arbitrárias, tais como feixes gaussianos altamente convergentes comumente usados em pinças ópticas. Outra teoria de pinças ópticas que consegue descrever de forma bastante eficaz os resultados experimentais foi desenvolvida pelos pesquisadores brasileiros Maia Neto e Nussenzweig em 2000 (NETO; NUSSENZWEIG, 2000), partindo de uma expansão em ondas parciais (Mie) da força axial exercida em uma esfera transparente por um feixe de laser gaussiano focalizado através de uma objetiva de abertura numérica grande. O modelo foi capaz de cobrir toda a faixa de interesse de aplicação das pinças ópticas (isto é, para qualquer relação entre o comprimento de onda do laser e o raio da partícula), prevendo os comportamentos tanto no limite de Rayleigh como no limite da óptica geométrica; permitindo, em princípio, uma calibração absoluta de pinças ópticas.

Nesse trabalho vamos utilizar uma aproximação dipolar para descrever como as forças ópticas surgem em uma partícula dielétrica, cujo raio é muito menor que o comprimento de onda da radiação incidente. A ideia para calcular a força dentro dessa aproximação é considerar a partícula como sendo uma distribuição volumétrica de dipolos interagindo com os campos elétrico \vec{E} e magnético \vec{B} do feixe de laser através da força de Lorentz. Então temos:

$$\vec{F}_d = (\vec{p} \cdot \nabla) \vec{E} + \frac{\partial \vec{p}}{\partial t} \times \vec{B} \quad (2.1)$$

onde \vec{p} é o momento de dipolo de um pequeno volume V dado por:

$$\vec{p} = \varepsilon_0 n_m^2 V \Gamma \vec{E} \quad (2.2)$$

com Γ sendo a polarizabilidade do material, n_m é o índice de refração do meio onde a partícula está imersa e ε_0 é a permissividade elétrica do vácuo. A polarizabilidade⁴ de

³ A aproximação paraxial consiste em considerar que ao se propagar por uma distância igual ao comprimento de onda a variação da intensidade é desprezível se comparada a intensidade do campo em si. Detalhes no [Apêndice B](#).

⁴ Para uma partícula dielétrica, cujo índice de refração seja um número real puro, uma correção à [Equação 2.3](#) pode ser aplicada, como pode ser encontrada na seção 3.4 da referência (JONES; MARAGÒ;

uma partícula esférica, dentro da aproximação dipolar, pode ser escrita em termos dos índices de refração (complexo) da partícula (n_p) e do meio (n_m) como (JONES; MARAGÒ; VOLPE, 2015):

$$\Gamma = \frac{3(m^2 - 1)}{(m^2 + 2)} \text{ com } m = \frac{n_p}{n_m} \quad (2.3)$$

Usando a [Equação 2.1](#), com a identidade vetorial: $(\vec{E} \cdot \nabla) \vec{E} = \frac{1}{2} \nabla E^2 - \vec{E} \times (\nabla \times \vec{E})$ e a lei de Faraday, podemos escrever a força sobre o dipolo como:

$$\vec{F}_d = \varepsilon_0 n_m^2 V \text{Re} \left(\Gamma \frac{1}{2} \nabla E^2 + \frac{\partial}{\partial t} (\vec{E} \times \vec{B}) \right) \quad (2.4)$$

em termos de uma amplitude complexa, o vetor campo elétrico é dada por:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}) e^{-i\omega t} \quad (2.5)$$

Para comprimentos de onda típicos de pinças ópticas, temos que a frequência da radiação é da ordem de THz, de modo que só a média temporal é significativa. Assim podemos descartar o termo de derivada temporal e rescrever a [Equação 2.4](#) como:

$$\vec{F}_d = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 V \text{Re} [\Gamma \nabla E^2] \quad (2.6)$$

É mais conveniente trabalhar em termos de uma densidade de força $\vec{f} = \frac{\vec{F}_d}{V}$, onde a força óptica (\vec{F}_{op}) pode ser obtida integrando \vec{f} sobre todo o volume da partícula. Logo:

$$\vec{F}_{op} = \int \vec{f} dv = \int \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 \text{Re} [\Gamma \nabla E^2] dv \quad (2.7)$$

O campo elétrico \vec{E} é na verdade a sobreposição de dois campos, o campo incidente \vec{E}_i (que vem do laser) e o campo espalhado \vec{E}_r (que é o resultado da interação do campo incidente com a partícula), ou seja, $\vec{E} = \vec{E}_i + \vec{E}_r$. Substituindo \vec{E} por $\vec{E}_i + \vec{E}_r$ na [Equação 2.6](#) temos:

$$\vec{F}_{op} = \int \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 \text{Re} \left[\Gamma \nabla |\vec{E}_i + \vec{E}_r|^2 \right] dv$$

VOLPE, 2015). A correção é empregada para contabilizar o efeito sobre a polarização da partícula causado pelo campo gerado pelo dipolo oscilante (auto campo). Contudo, se a partícula é muito menor que o comprimento de onda, o campo elétrico instantâneo que ela experimenta devido ao feixe eletromagnético é uniforme em sua extensão, e as fórmulas eletrostáticas podem ser aplicadas, de modo que a [Equação 2.3](#), nesse contexto, é conhecida como relação de Clausius-Mossoti. O erro obtido no cálculo de $\text{Re}(\Gamma)$ e no cálculo de $|\Gamma|^2$ utilizando a relação de Clausius-Mossoti em comparação a correção proposta por (JONES; MARAGÒ; VOLPE, 2015) é respectivamente de: 0,72% e 1,44% para uma partícula dielétrica com $n_p = 1,5$.

$$\vec{F}_{op} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 \int \text{Re} \left[\Gamma \vec{\nabla} |\vec{E}_i|^2 \right] dv + \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 \int \text{Re} \left[\Gamma \vec{\nabla} \left(|\vec{E}_r|^2 + \vec{E}_i \cdot \vec{E}_r^* + \vec{E}_r \cdot \vec{E}_i^* \right) \right] dv \quad (2.8)$$

O primeiro termo da [Equação 2.8](#) é identificado como a força de gradiente \vec{F}_{grad} (que depende do gradiente da intensidade do campo elétrico incidente) e o segundo termo é identificado como a força de espalhamento \vec{F}_{scat} (que inclui além da pressão de radiação outras forças oriundas do espalhamento do campo incidente sobre a partícula), de modo que podemos escrever:

$$\vec{F}_{op} = \vec{F}_{grad} + \vec{F}_{scat} \quad (2.9)$$

Para que possamos trabalhar com a [Equação 2.8](#) precisamos descrever os campos \vec{E}_i e \vec{E}_r . A maioria das pinças ópticas operam no modo TEM_{00} , ou seja, o envelope da amplitude no plano transversal do campo elétrico é dado por uma função gaussiana, o que implica também em um perfil de intensidade gaussiana. Dentro da aproximação paraxial, os campos elétricos e magnéticos são descritos por um único parâmetro (para um dado comprimento de onda λ), que é a chamada cintura do feixe w_0 ⁵. Considerando que a onda se propague na direção z e que seja linearmente polarizada na direção \hat{e}_x (dentro de um sistema de coordenadas cilíndricas), o campo elétrico incidente é descrito por:

$$\vec{E}_i(\rho, z, t) = \hat{e}_x E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{\rho^2}{w(z)^2} \right] \exp \left[i \left(-k \frac{\rho^2}{2R(z)} + \xi(z) + kz - \omega t \right) \right] \quad (2.10)$$

o campo definido por [Equação 2.10](#) também é conhecido por campo gaussiano de ordem zero, no [Apêndice B](#) se encontra uma derivação formal para o campo gaussiano a partir da resolução da equação de Helmholtz na aproximação paraxial. Aqui, E_0 é a amplitude do campo (fase em $t = 0$), $w(z)$ é a raio da cintura do feixe onde as amplitudes decaem a $1/e$ de seu valor axial, z_R é o comprimento de Rayleigh, $R(z)$ é o raio de curvatura da frente de onda, $\xi(z)$ é a fase de Gouy e $\theta(z)$ é a divergência do feixe definidos por:

$$z_R = \frac{\pi w_0^2 n_m}{\lambda} \quad (2.11)$$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (2.12)$$

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z} \right)^2 \right] \quad (2.13)$$

⁵ w_0 é um parâmetro que, para uma objetiva normalmente usada na criação de pinças ópticas, é definido por: $w_0 = \frac{2\lambda}{\pi n_m NA}$, onde λ é o comprimento de onda do laser, NA é a abertura numérica da objetiva e n_m é a parte real do índice de refração do meio.

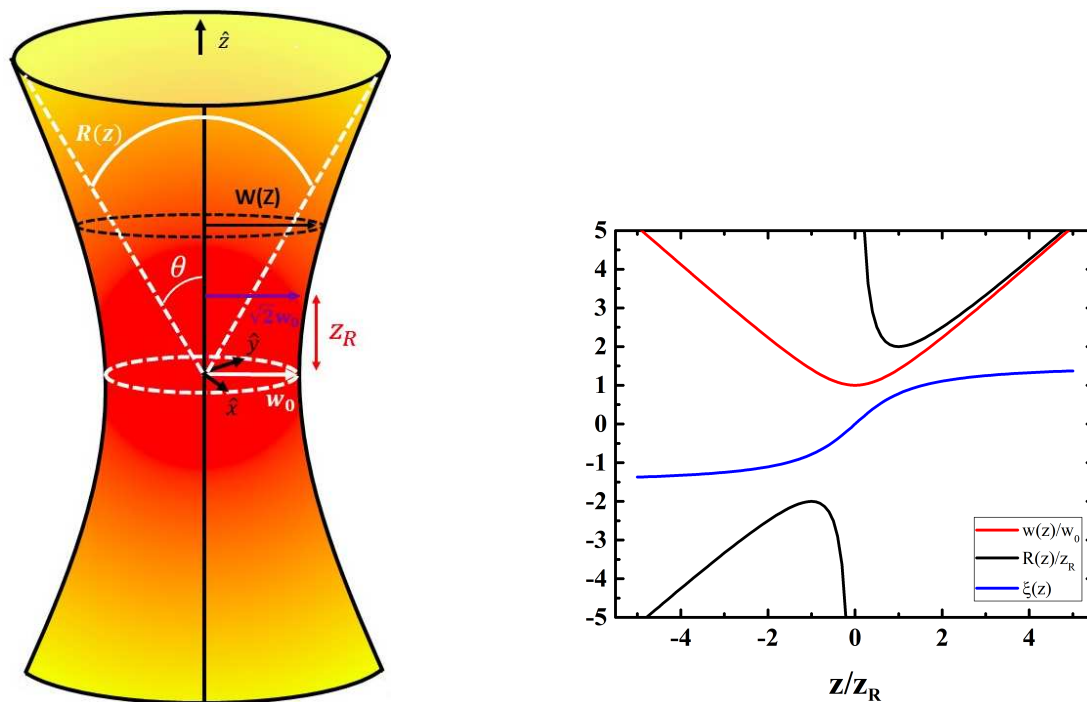
$$\xi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad (2.14)$$

$$\theta(z) = \lim_{z \rightarrow \infty} \arctan\left(\frac{w(z)}{z}\right) \quad (2.15)$$

ou na aproximação paraxial:

$$\theta(z) = \frac{\lambda}{\pi n_m w_0} \quad (2.16)$$

A [Figura 1](#) descreve o comportamento de propagação de um feixe gaussiano e as grandezas associadas a ele considerando a aproximação paraxial.



(a) Parâmetros do feixe gaussiano

(b) Variação dos parâmetros do feixe gaussiano em função da distância longitudinal.

Figura 1 – Parâmetros do feixe gaussiano. **a)** Esquema ilustrando os parâmetros do feixe gaussiano dentro do cone de luz. **b)** Variação dos parâmetros do feixe gaussiano em função do deslocamento longitudinal normalizado pelo comprimento de Rayleigh. *Linha sólida vermelha:* variação da cintura do feixe normalizada por w_0 . *Linha sólida azul:* variação da fase de Gouy. *Linha sólida preta:* variação do raio de curvatura normalizado pelo comprimento de Rayleigh. *Parâmetros usados:* $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $n_m = 1,33$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$. **Fonte:** criação do autor.

Note que, caso o gradiente do campo seja constante no interior da partícula, o termo da força de gradiente na [Equação 2.8](#) pode ser simplificado e escrita como:

$$\vec{F}_{grad} = \frac{1}{2} V \epsilon_0 n_m^2 \text{Re}(\Gamma) \vec{\nabla} |\vec{E}_i|^2 \quad (2.17)$$

A aproximação usada em [Equação 2.17](#) é válida sempre que a variação da fase ($\Delta\phi$) de \vec{E}_i ao propagar pela partícula poder ser desprezada (HULST; HULST, 1981). Uma vez que $\Delta\phi = \frac{4\pi a}{\lambda} |m - 1|$, onde a é o raio da partícula, para satisfazer a condição $\Delta\phi \ll 1$ é necessário que $a \ll \lambda$ ou que $m \approx 1$. No primeiro caso estamos no chamado limite de Rayleigh e o segundo caso implica que os índices de refração da partícula e do meio são muito próximos. Como no geral os índices de refração são distintos (por exemplo, geralmente o meio é a água $n_m = 1,33$ e $n_p \approx 1,5$ para dielétricos) o tamanho da partícula é o critério que define a validade da aproximação. Contudo, Harada (HARADA; ASAKURA, 1996) mostrou que a aproximação usada em [Equação 2.17](#) permanece fornecendo resultados satisfatórios mesmo quando $a \approx \lambda$. Rubnov *et al.* (RUBINOV *et al.*, 2003) mostrou, para um feixe de Bessel, que se a variação de fase no interior da partícula for contabilizada a aproximação dipolar usada em [Equação 2.1](#) permanece válida para calcular a força de gradiente para qualquer relação entre a e λ .

A partir de [Equação 2.10](#) podemos escrever a intensidade do campo em coordenadas cilíndricas, onde a origem do sistema de coordenadas coincide com o foco e a direção de propagação do campo é a direção- z , então:

$$|\vec{E}_i(\rho, z)|^2 = I(\rho, z) = \left(\frac{2P_T}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \quad (2.18)$$

onde P_T é a potência incidente na partícula. Usando [Equação 2.18](#) em [Equação 2.17](#) obtemos as componentes da força de gradiente na direção z e ρ :

$$\vec{F}_{grad,\rho}(\rho, z) = \frac{-2\pi n_m^2 a^3}{3c} Re(\Gamma) \frac{4\rho}{w(z)^2} \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \hat{e}_\rho \quad (2.19)$$

$$\vec{F}_{grad,z}(\rho, z) = \frac{-2\pi n_m^2 a^3}{3c} Re(\Gamma) \frac{2z\omega_0^2}{z_R^2 \omega(z)^2} \left[1 - \frac{4\rho^2}{w(z)^2} \right] \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \hat{e}_z \quad (2.20)$$

A [Figura 2](#) mostra a variação das componentes $\hat{\rho}$ e \hat{z} da força de gradiente em função do deslocamento radial para z fixo em duas situações: $Re(\Gamma) > 0$ e $Re(\Gamma) < 0$. Note que a força de gradiente só é uma força atrativa quando $Re(\Gamma) > 0$, o que implica, para uma partícula dielétrica, em $Re(n_p) > n_m$. De fato, é um resultado bem estabelecido na literatura que para armadilhas com feixes gaussianos, no regime de Rayleigh, que uma condição necessária para que o aprisionamento ocorra seja $Re(\Gamma) > 0$ independente da natureza da partícula (JONES; MARAGÒ; VOLPE, 2015).

Para pequenos deslocamentos, próxima a região focal, a força de gradiente varia linearmente com o deslocamento, a constante de proporcionalidade (κ) é chamada de “rigidez da armadilha”. Expandindo [Equação 2.17](#) em série de Taylor em torno da posição de equilíbrio ($\vec{r} = 0$), desprezando os termos de ordem superior temos:

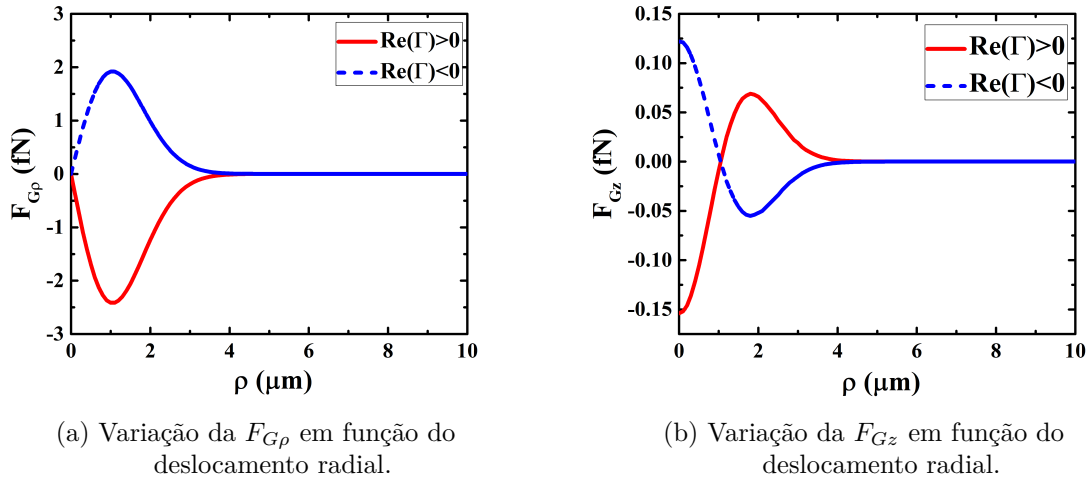


Figura 2 – Comportamento teórico das forças de gradiente em função do deslocamento radial no regime de Rayleigh, para z fixo ($z = 5 \mu\text{m}$). **a)** Componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente. **b)** Componente \hat{z} da força de gradiente. *Linha sólida vermelha:* $Re(\Gamma) > 0$. *Linha pontilhada azul:* $Re(\Gamma) < 0$. Demais parâmetros: $a = 50 \text{ nm}$; $n_m = 1,33$; $n_p = 1,5$ (linha vermelha), $n_p = 1,2$ (linha azul), $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$; $P_t = 200 \text{ mW}$. **Fonte:** criação do autor.

$$\vec{F}_{grad}(\vec{r}) = \vec{F}_{grad}|_{\vec{r}=0} + \nabla \vec{F}_{grad}|_{\vec{r}=0} \cdot \vec{r} + O(\vec{r}^2) = -\vec{\kappa} \cdot \vec{r} \quad (2.21)$$

A aproximação [Equação 2.21](#) é amplamente usada, principalmente em experimentos de estiramento de moléculas de DNA (ROHRBACH, 2005), uma vez que a obtenção da rigidez da armadilha é simples através de métodos de calibração (ALVES; ROCHA, 2012).

Uma vez que \vec{E}_i varia harmonicamente no tempo como mostrado em [Equação 2.5](#), os dipolos (no interior da partícula) irão variar com a mesma frequência fazendo com que a partícula atue como um dipolo elétrico oscilante que irradia ondas secundárias (\vec{E}_r) em todas as direções. Esses eventos de espalhamento modificam o vetor de Poynting do campo eletromagnético ocasionando uma transferência de momento e as forças de espalhamento associadas com essas transferências são exercidas sobre a partícula, originando o segundo termo em [Equação 2.8](#), incluindo o efeito de pressão de radiação.

$$\vec{F}_{scat} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n_m^2 \int Re \left[\Gamma \vec{\nabla} \left(|\vec{E}_r|^2 + \vec{E}_i \cdot \vec{E}_r^* + \vec{E}_r \cdot \vec{E}_i^* \right) \right] dv \quad (2.22)$$

No geral, a resolução de [Equação 2.22](#) é extremamente complicada, requer uma análise cuidadosa dos campos envolvidos e da interação desses campos entre si e com a partícula. Uma aproximação muito usada é escrever \vec{F}_{scat} em termos da seção de choque do espalhamento (C_{scat}) que é modelado de acordo com as características do feixe (comprimento de onda, perfil de intensidade, etc.) e pelas características da partícula

(tamanho, material, índice de refração, etc.). De forma geral, [Equação 2.22](#) pode ser reescrita como:

$$\vec{F}_{scat} = \frac{n_m}{c} C_{scat} I(\rho, z) \hat{e}_{scat} \quad (2.23)$$

onde \hat{e}_{scat} é o vetor unitário na direção de espalhamento.

Dentro do regime de Rayleigh e da aproximação paraxial, C_{scat} foi estimada por Harada (HARADA; ASAKURA, 1996):

$$C_{scat} = \frac{8a^6\pi}{9} \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^4 |\Gamma|^2 \quad (2.24)$$

onde $|\Gamma|^2 = Re(\Gamma)^2 + Im(\Gamma)^2$ é o módulo quadrado da polarizabilidade da partícula. Usando [Equação 2.24](#) em [Equação 2.23](#) obtemos a componente longitudinal da força de espalhamento como sendo:

$$\vec{F}_{scat,z}(\rho, z) = \frac{n_m 8\pi a^6}{9c} \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^4 |\Gamma|^2 \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2}\right) \exp\left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right] \hat{e}_z \quad (2.25)$$

A [Figura 3](#) mostra a variação da componente \hat{z} da força de espalhamento em função de ρ . Note que a força de espalhamento, devido a sua dependência quadrática de $Re(\Gamma)$, é sempre repulsiva.

Dentro da aproximação de Rayleigh para dielétricos a componente transversal da força óptica é amplamente dominada pela força de gradiente, por isso apresentamos apenas a componente longitudinal para força de espalhamento. Além disso, [Equação 2.25](#) só é válida no limite $a \ll \lambda$. Para soluções fora desse limite é necessário utilizar uma teoria de espalhamento mais rigorosa, como por exemplo, a teoria generalizada de Lorenz-Mie (GLMT) desenvolvida por Gouesbet et al. (GOUESBET; MAHEU; GRÉHAN, 1988). Na GLMT, a seção de choque do espalhamento é função da intensidade da radiação (e, portanto, da posição da partícula) e descrito tanto em termos da componente longitudinal como das componentes transversais. Dentro da GLMT a [Equação 2.23](#) pode ser reescrita como:

$$\vec{F}_{scat}(x, y, z) = \left(\frac{2n_m}{\pi c}\right) [C_{scat,\rho}(x, y, z)\hat{e}_x + C_{scat,y}(x, y, z)\hat{e}_y + C_{scat,z}(x, y, z)\hat{e}_z] \quad (2.26)$$

aqui escrevemos a força de espalhamento em coordenadas cartesianas.

2.2.2 Força Fotoforética

Quando um fóton é absorvido por uma partícula seu momento contribui para as forças de espalhamento (principalmente para a pressão de radiação), enquanto sua energia

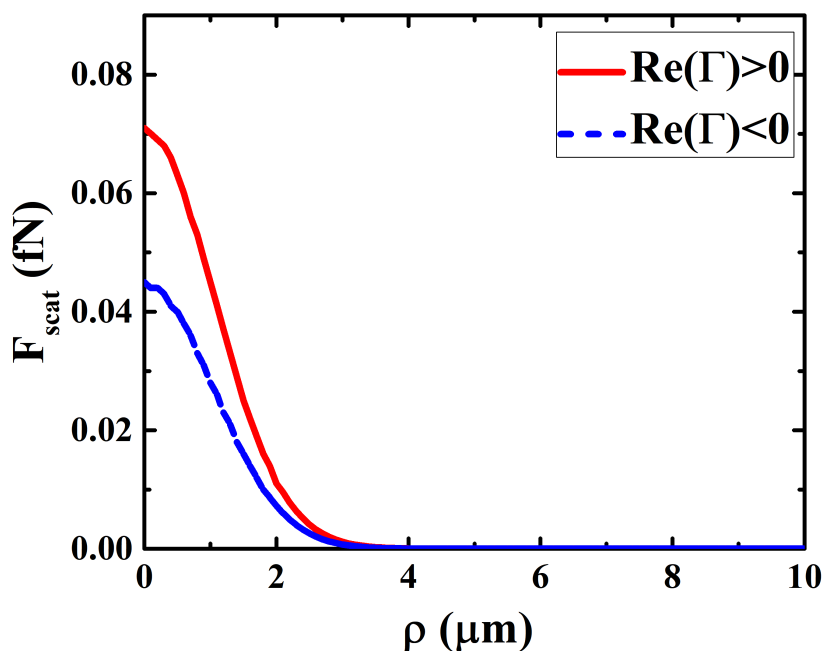


Figura 3 – Comportamento teórico da componente \hat{z} da força de espalhamento em função do deslocamento radial no regime de Rayleigh, para z fixo ($z = 5 \mu\text{m}$). *Linha sólida vermelha:* $\text{Re}(\Gamma) > 0$. *Linha pontilhada azul:* $\text{Re}(\Gamma) < 0$. Demais parâmetros: $a = 50 \text{ nm}$; $n_m = 1,33$; $n_p = 1,5$ (linha vermelha), $n_p = 1,2$ (linha azul), $w_0 = 2 \mu\text{m}$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$; $P_t = 200 \text{ mW}$. **Fonte:** criação do autor.

pode ser convertida em energia térmica na partícula. A superfície aquecida da partícula, na sequência, transfere essa energia para o “meio” onde a partícula está imersa, isto é, para o fluido. Como a iluminação sobre a partícula geralmente não é uniforme (como por exemplo para um feixe gaussiano), uma parte da partícula irá absorver mais fótons e por consequência a energia térmica da partícula nessa parte será maior do que na parte menos iluminada (SHVEDOV et al., 2014). Logo, um gradiente de temperatura se forma na superfície da partícula, de modo que a energia transferida para o fluido será maior na parte mais iluminada do que na outra parte. Como consequência, a energia cinética do fluido será maior na parte mais iluminada, o que gera uma força líquida que tende a ejetar as partículas das regiões de maior intensidade de luz. A Figura 4 ilustra a geração da força fotoforética como sendo a força líquida sobre a partícula gerada pelo aquecimento não uniforme.

Como a força de gradiente também existe nesse sistema, existe uma força que tende a atrair a partícula para o foco (região de máxima iluminação), como consequência, existe uma competição entre a força fotoforética e a força de gradiente que dependendo das características da partícula e do meio que pode permitir (ou não) o aprisionamento da partícula próximo ao eixo óptico. Para partículas com baixa capacidade de absorção (geralmente dielétricos) o efeito da força fotoforética é o de enfraquecer a rigidez da

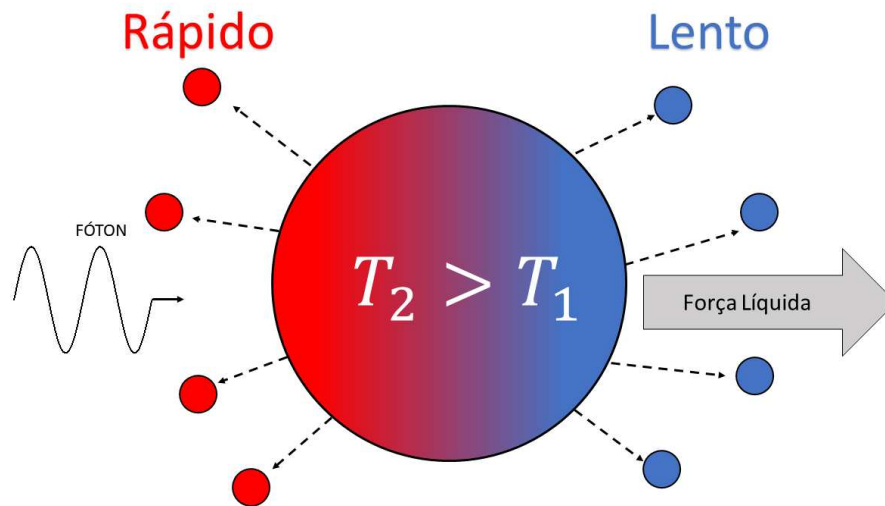


Figura 4 – Geração da força radiométrica pelo aquecimento não homogêneo da partícula e do meio ao seu redor. *Esferas vermelhas pequenas*: moléculas do meio com temperatura T_2 . *Esferas azuis pequenas*: moléculas do meio com temperatura T_1 . *Esfera grande em cor gradiente*: partícula absorvente, o lado vermelho corresponde ao lado de incidência dos fótons do laser e o lado de maior aquecimento e conseqüentemente de maior temperatura. **Fonte**: criação do autor.

armadilha (CAMPOS et al., 2018b).

3 Semicondutores

3.1 Origem das Estruturas de Banda

Em um átomo isolado os estados quânticos estacionários são caracterizados por níveis de energia discretos e quantizados, correspondendo aos orbitais atômicos. Se o átomo possuir vários elétrons, eles são organizados nos níveis eletrônicos (orbitais atômicos) obedecendo ao princípio de exclusão de Pauli. Se colocarmos dois átomos próximos, os níveis de energia de cada átomo são levemente perturbados, mas, em um sólido cristalino, cuja densidade atômica é da ordem de 10^{22}cm^{-3} , as funções de onda dos átomos vizinhos começam a se sobrepor gerando bandas de energia contínua intercaladas por valores de energia que o elétron não pode assumir (gap). A Figura 5 ilustra as energias permitidas para um átomo e para um sólido cristalino. Outra maneira de verificar a existência de bandas de energia nos cristais é resolver a equação de Schroedinger para um elétron em um potencial periódico (que surge devido à periodicidade do arranjo atômico na rede cristalina) cujas soluções levam à existência de bandas permitidas e proibidas (KITTEL; MCEUEN, 2018).

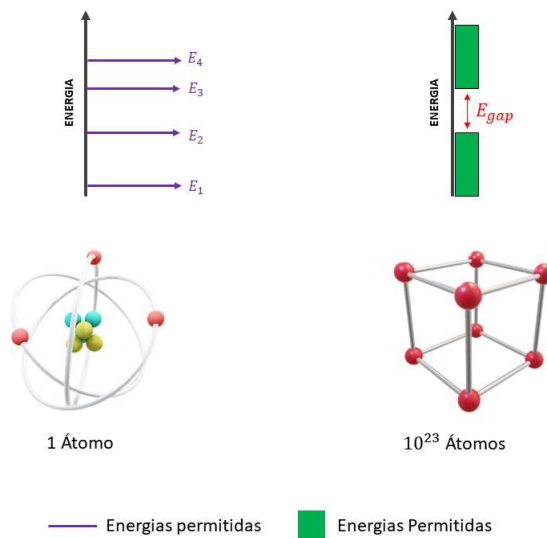


Figura 5 – Esquema ilustrando o diagrama de energia para um átomo (nível discreto) e para 10^{23} átomos (bandas de energia). **Fonte:** criação do autor.

Cada banda possui um determinado número de estados eletrônicos. A quantidade de estados eletrônicos numa banda é determinada basicamente pelo princípio da exclusão de Pauli e pela geometria da rede. Deste modo, podemos ter bandas cheias, parcialmente cheias ou vazias, onde o número de elétrons alocados em cada banda está associado pela natureza do elemento que compõe o sólido e também pela geometria da rede. Uma banda

completamente preenchida é dita “congelada” porque, com ou sem a aplicação de um campo externo, os elétrons não contribuem para a corrente elétrica. Note que, para se moverem os elétrons precisam ganhar energia e, portanto, “saltar” para um nível mais energético. Uma vez que esse nível já está ocupado, as transições dentro da mesma banda são proibidas. Por outro lado, se a energia ganha for grande, da ordem (ou maior) de 1 eV, o elétron pode “saltar” da banda preenchida para a banda vazia e desse modo estar suscetível à aplicação de um campo elétrico. Os elétrons que estão em uma banda parcialmente preenchida respondem com facilidade à aplicação de um campo externo, pois há estados quânticos vazios para os quais podem sofrer transições com pouca energia e, portanto, conduzir a corrente elétrica. Do ponto de vista da teoria de bandas, os materiais cristalinos podem ser classificados em:

- Isolantes: possuem bandas totalmente preenchidas ou vazias. A última banda preenchida é conhecida como banda de valência e a primeira banda vazia é conhecida como banda de condução.
- Condutores: possuem a última banda (chamada de banda de condução) parcialmente preenchida.

Existe ainda uma classe intermediária que possui em $T = 0$ uma estrutura de bandas análogas à estrutura dos isolantes, porém, devido ao pequeno intervalo de energia proibida (energia de Gap), para $T \neq 0$, os elétrons podem “saltar” da banda de valência para a banda de condução e, portanto, preencher parcialmente a banda de condução. O estado quântico que ficou “vazio” na banda de valência, devido à excitação do elétron para a banda de condução, permite que os elétrons que estavam “congelados” na banda de valência respondam à aplicação de um campo elétrico, de modo que os estados vazios (que também são conhecidos como buracos) atuem como uma pseudopartícula e conduzam corrente elétrica. Materiais que apresentam essa propriedade são conhecidos como semicondutores. O gap de um material semicondutor geralmente é menor que 2 eV (REZENDE, 2004a), enquanto que para isolantes o gap é superior a 5 eV (REZENDE, 2004a). A [Figura 6](#) ilustra o diagrama de banda para isolantes, condutores e semicondutores. Note que para os metais a distinção entre banda de condução e banda de valência não tem mais sentido, uma vez que a condução ocorre em uma ou mais bandas que estão parcialmente cheias que assumem a posição de bandas de condução e de valência. Geralmente isso é ilustrado sobrepondo as bandas de condução e valência (KITTEL; MCEUEN, 2018).

3.2 Geração de portadores

Desde a invenção do transistor em 1940 por Schockley, Bardeen e Brattain (GARRETT, 1963), tanto a pesquisa como a utilização dos semicondutores cresceram em todo

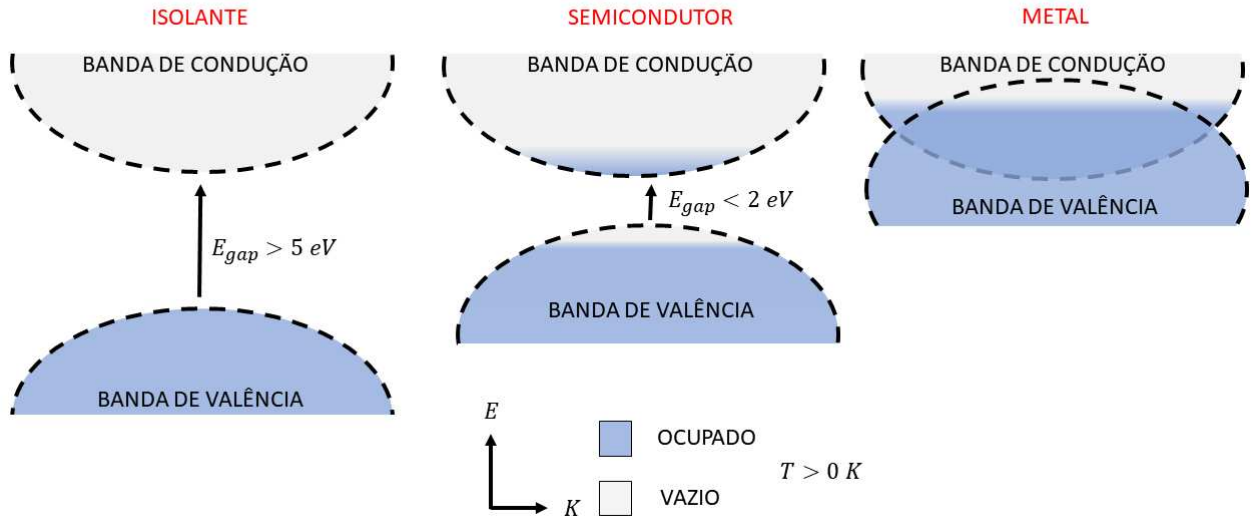


Figura 6 – Diagrama simplificado da estrutura de bandas eletrônica de isolantes, semicondutores e metais. Em *azul*: os estados eletrônicos ocupado pelos elétrons. Em *cinza claro*: estados eletrônicos vazios. A sobreposição das bandas de condução e de valência para os metais ilustra que para esses materiais as bandas são parcialmente cheias e assumem ambos os papéis. **Fonte:** criação do autor.

mundo. Nos bastidores da grande revolução promovida pelos semicondutores reside a sua capacidade de alterar a sua densidade de portadores de carga (elétrons e buracos) que altera consideravelmente a sua capacidade de conduzir corrente elétrica. Quando os portadores de carga são induzidos por meio de impurezas (átomos de espécie diferente dos átomos que compõem a rede cristalina) é dito estar na fase extrínseca, quando os portadores de carga são induzidos devido à absorção de energia é dito estar na fase intrínseca.

3.2.1 Geração Extrínseca

Suponha que possuímos um semicondutor cuja rede cristalina seja feita por átomos de valência 4 (por exemplo). Se substituirmos alguns desses átomos por outro de valência 5 (impureza), essa mudança produzirá uma sobra de um elétron que ficará fracamente ligado à impureza. Com a absorção de energia (geralmente térmica) esse elétron pode ser facilmente desligado e promovido para a banda de condução (sem criar um buraco na banda de valência). Um semicondutor com essa dopagem¹ é conhecido como tipo-n e a impureza é dita doadora. Se, por outro lado, substituirmos átomos da rede por impurezas de valência 3, sobrar um estado ligado vazio em torno dessa impureza. Elétrons das ligações vizinhas

¹ Dopagem é um jargão utilizado na área de física dos materiais que significa introduzir átomos de natureza diferente aos átomos que compõem a rede cristalina do semicondutor, geralmente empregada quando a porcentagem de átomos introduzidos é menor que 10% do total de átomos da rede cristalina.

poderão se deslocar para essa vacância, completando essa ligação covalente e deixando para trás uma ligação incompleta, ou seja, um buraco. Portanto, essa impureza cria um buraco na banda de valência (sem adicionar elétrons à banda de condução). Um semiconductor com essa dopagem é conhecido como do tipo-p e a impureza é dita receptora. A concentração final de portadores depende da concentração de impurezas adicionadas na rede.

3.2.2 Geração Intrínseca

A geração de portadores de carga via absorção de energia consiste basicamente no elétron (na banda de valência) absorver energia suficiente para que ele “salte” de um estado na banda de valência para um estado na banda de condução gerando um par elétron-buraco. Diferentemente da fase extrínseca, na fase intrínseca é gerado o mesmo número de elétrons e buracos, de modo que se esse mecanismo for o mecanismo dominante de geração de portadores no semiconductor ele possuirá o mesmo número de elétrons e buracos.

A concentração de elétrons (n) e buracos (p) induzidos termicamente em um semiconductor a uma temperatura T é dada por:

$$n = \int_{E_c}^{\infty} D(E)f(E)dE \quad (3.1)$$

$$p = \int_{-\infty}^{E_v} [1 - f(E)] D(E)dE \quad (3.2)$$

onde $f(E)$ é a probabilidade de os elétrons ocuparem um estado com energia E que é dado pela distribuição de Fermi-Dirac e $D(E)$ é a densidade de estados dada por:

$$D(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_c^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} (E - E_c)^{1/2} \quad (3.3)$$

para a densidade de estados na banda de condução e:

$$D(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_v^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} (E_v - E)^{1/2} \quad (3.4)$$

para a densidade de estados de buracos na banda de valência, onde m_i^* é a massa efetiva dos elétrons ($i=c$) e dos buracos ($i=v$). Assim, usando [Equação 3.3](#) em [Equação 3.1](#) e [Equação 3.4](#) em [Equação 3.2](#) obtemos:

$$n = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_c^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \int_{E_c}^{\infty} (E - E_c)^{1/2} e^{-(E-E_f)/K_B T} dE \quad (3.5)$$

e

$$p = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_v^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \int_{-\infty}^{E_v} (E_v - E)^{1/2} \left[1 - e^{-(E-E_f)/K_B T} \right] dE \quad (3.6)$$

Resolvendo a [Equação 3.5](#) e [Equação 3.6](#) obtemos:

$$n = N_c e^{-(E_c - E_f)/K_B T} \quad (3.7)$$

e

$$p = N_v e^{-(E_f - E_v)/K_B T} \quad (3.8)$$

onde: K_B é a constante de Boltzmann, E_c é a energia mínima da banda de condução, E_v é a energia máxima da banda de valência, E_f é a energia do nível de Fermi, T é a temperatura do semiconductor (em Kelvin) e N_i é a densidade efetiva de estados dada por:

$$N_i = 2 \left(\frac{m_i^* K_B T}{2\pi\hbar^2} \right)^{3/2} \quad (3.9)$$

novamente, $i = c$ fornece a densidade efetiva de estados para elétrons e $i = v$ fornece a densidade efetiva de estados para os buracos. N_i pode ser interpretada como sendo uma concentração de estados totalmente localizados na energia $E = E_i$. Isso permite interpretar n (p), a concentração de elétrons (buracos), como sendo dada, aproximadamente, por uma concentração efetiva de estados com valor constante N_c (N_v) entre E_c e $E_c + K_B T$ (E_v e $E_v - K_B T$) e nula fora dele².

Diferente de um metal, para um semiconductor, o nível de Fermi não é conhecido a priori, a posição do nível de Fermi depende da forma das bandas do semiconductor. Para $T = 0$, a banda de valência está cheia e a banda de condução vazia, então o nível de Fermi está localizado em algum lugar entre as duas bandas ($E_v < E_f < E_c$), se as bandas forem simétricas E_f estará exatamente no meio das duas bandas, de modo que $E_f = E_g/2$. Para $T \neq 0$ nós podemos obter o nível de Fermi para um semiconductor intrínseco usando o fato que, para um semiconductor intrínseco, $n = p = n_i$. Igualando a [Equação 3.7](#) e a [Equação 3.8](#), obtemos:

$$E_f = \frac{1}{2}(E_c + E_v) + \frac{3}{4}K_B T \ln \left(\frac{m_v^*}{m_c^*} \right) \quad (3.10)$$

Note que se $T = 0$ ou $m_v^* = m_c^*$ a posição de E_f será exatamente no meio do gap.

Uma vez conhecido o nível de Fermi, podemos obter a densidade de portadores (elétrons e buracos) para um semiconductor intrínseco tomando a media geométrica de p e n , ou seja:

$$n_i = \sqrt{n \cdot p} = (N_c N_v)^{1/2} e^{-E_g/2K_B T} \quad (3.11)$$

note que n_i varia exponencialmente com $E_g/2K_B T$. Usando a [Equação 3.11](#) podemos obter a densidade de portadores intrínseco ($T = 300$ K) para o germânio e para o silício como sendo respectivamente 10^{13} cm^{-3} e 10^{10} cm^{-3} .

² Para detalhes sobre o cálculo da densidade de portadores ver a referência (REZENDE, 2004a)

3.2.2.1 Geração de Portadores via Absorção Óptica

Além da excitação térmica, semicondutores podem ser excitados a partir da absorção óptica. A excitação do elétron ocorre quando a energia do fóton ($\hbar\omega$) é suficiente para fazer com que o elétron “salte” de um estado na banda de valência para um estado na banda de condução ($\hbar\omega > E_{gap}$). Essa transição pode ocorrer de forma direta, na qual o elétron não muda seu vetor de onda (também chamadas de transições verticais) ou podem ocorrer de forma indireta, onde o elétron muda seu vetor de onda, o que pela conservação de momento linear requer a absorção (ou emissão) de um fônon, além da absorção de um fóton. Em outras palavras, se o mínimo da banda de condução e o máximo da banda de valência ocorrem sobre mesmo “momentum do cristal”³, o semiconductor é dito ser de gap direto e as transições que ocorrem são transições diretas, porém, se o mínimo da banda de condução e o máximo da banda de valência ocorrem sobre momentum do cristal distintos, então o semiconductor é dito ser de gap indireto e as transições que ocorrem são transições indiretas.

As transições indiretas ocorrem porque os fótons possuem energia comparável à distância entre as bandas, mas momento desprezível em relação a zona de Brillouin, enquanto que os fônons possuem um momento compatível com a zona de Brillouin, mas possuem energia desprezível se comparado à distância entre as bandas. Assim, as transições indiretas têm uma probabilidade muito menor de ocorrer se comparadas com as transições diretas que não necessitam da assistência de fônons.

Em muitas situações de interesse o fóton possui energia ($E_{fóton}$) suficiente para realizar uma transição direta, mesmo que o semiconductor seja um semiconductor de gap indireto, por isso, muitos autores utilizam a nomenclatura “gap direto” (E_{gap}^D) para se referir à energia mínima necessária para ocorrer uma transição vertical entre as bandas do semiconductor. Um bom exemplo é o germânio que a 300K possui um gap indireto de $E_{gap}^I = 0,68eV$ (REZENDE, 2004b) (o que corresponde a $\lambda = 1,82 \mu m$) mas, para energias maiores que 0,80 eV (MEYER; KRUEER; BARTOLI, 1980), as transições diretas começam a ocorrer. Como consequência da mudança de transição, o coeficiente de absorção (α) do germânio apresenta um aumento significativo, refletindo a maior probabilidade de o fóton ser absorvido. A Figura 7 foi construída baseado nos dados experimentais obtidos por Nunley *et al.* (NUNLEY et al., 2016a) e apresenta a variação do coeficiente de absorção do germânio em função da energia de excitação. Note que, que α apresenta uma descontinuidade para $E_{fóton} \simeq E_{gap}^D$ e que é nula para $E_{fóton} < E_{gap}^I$.

O coeficiente de absorção nos fornece uma medida do comprimento que a radiação precisa penetrar no material para que sua intensidade decaia a $1/e$ do seu valor de incidência. Nos semicondutores esse mecanismo de decaimento de absorção pode ocorrer

³ Momentum do cristal é o quasemomentum (ou vetor tipo momento) que está associado com os elétrons e buracos na rede cristalina.

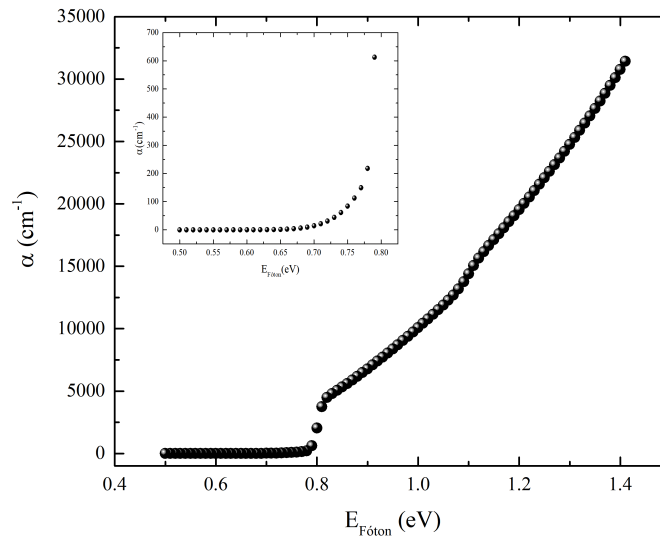


Figura 7 – Gráfico principal: Variação do coeficiente de absorção do Germânio em função da energia de excitação. **Gráfico inserido:** resalta a variação do coeficiente de absorção do germânio para valores de $E_{Fóton} < E_{gap}^D$. **Fonte:** os gráficos foram construídos pelo autor a partir dos dados experimentais obtidos por Nunley *et al.* (NUNLEY *et al.*, 2016a)

por três principais mecanismos (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980):

- **α_{PL} através dos portadores livres:** ou seja, os elétrons livres na banda de condução e/ou os buracos livres na banda de valência absorvem a radiação indo para estados mais energéticos (processo intrabanda). Domina os processos de absorção quando a densidade de portadores é comparável à densidade de elétrons nos metais.
- **α_2 através de processos virtuais com a absorção de dois ou mais fótons:** a grosso modo seria como se o elétron na banda de valência absorvesse dois (ou mais) fótons e "saltasse" para a banda de condução gerando um par elétron buraco (processo interbandas). Domina os processos de absorção quando a intensidade da radiação é alta (uma vez que se trata de um processo não linear) e quando a energia do fóton não é suficiente para produzir uma transição vertical ou quando a energia do fóton é menor que a energia do gap do material.
- **α_1 através da geração de portadores de carga pela absorção de 1 fóton banda a banda:** ou seja, um elétron na banda de valência absorve um fóton e "salta" para a banda de condução gerando um par elétron buraco (processo interbandas). Domina os processos de absorção fora dos dois casos anteriores.

Podemos escrever α em termos de suas componentes como:

$$\alpha = \alpha_{PL} + \alpha_1 + \alpha_2 \quad (3.12)$$

note que apenas α_1 e α_2 contribuem para a geração de portadores de carga.

Podemos estimar a densidade de portadores fotoinduzidos utilizando a lei de Beer. Para isso, vamos considerar que cada fóton absorvido (aniquilado) gera um par elétron-buraco. A densidade de portadores induzida decresce exponencialmente com a distância a partir da superfície do material. Os resultados estimados a partir da lei de Beer estão de acordo com os obtidos por Meyer *et al* (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980) através de uma análise mais rigorosa envolvendo a difusão dos portadores e o aquecimento da rede cristalina.

A lei de Beer é expressa da seguinte forma:

$$I(x) = I_0 e^{-\alpha x} \quad (3.13)$$

onde $I(x)$ é a intensidade da radiação na profundidade x (medido a partir da superfície), I_0 é a intensidade do feixe incidente e α é o coeficiente de absorção do material dado por [Equação 3.12](#). Como queremos estimar a densidade de portadores de carga induzido, podemos descartar os mecanismos de absorção que não geram portadores, ou seja, α_{PL} . Além disso, considerando que $E_{Fóton} \geq E_{gap}^D$, vamos supor, por simplicidade, que o mecanismo de geração dominante seja α_1 . Assim podemos aproximar a [Equação 3.12](#) como sendo $\alpha = \alpha_1$.

Dividindo os dois lados da [Equação 3.13](#) por $E_{Fóton} = \hbar\omega$ temos:

$$\phi(x) = \phi_0 e^{-\alpha x} \quad (3.14)$$

aqui ϕ é o número de fótons por unidade de área por unidade de tempo.

A taxa de geração da densidade de portadores $G(x)$ é dada, portanto, pela variação de $\phi(x)$ ao penetrar ao material:

$$G(x) = -\frac{d\phi(x)}{dx} = \phi_0 \alpha e^{-\alpha(\lambda)x} \quad (3.15)$$

O fluxo de fótons incidente sobre a superfície do material para um feixe gaussiano como o descrito pela [Equação 2.18](#) é dada por:

$$\phi(0) = \phi_0 = \frac{I(\rho, z)}{\hbar\omega} = (1 - R) \frac{P_T}{w(z)^2 \hbar\omega} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (3.16)$$

onde R é a refletividade do material. Substituindo a [Equação 3.16](#) em [Equação 3.15](#) temos a taxa de geração da densidade de portadores para um feixe gaussiano:

$$G(x, \rho, z) = (1 - R) \frac{\alpha P_T}{w(z)^2 \hbar \omega} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) e^{-\alpha x} \quad (3.17)$$

A densidade de elétrons gerados (δn) e a densidade de buracos gerados (δp) geradas é dada por:

$$\delta n = \delta p = G(x, \rho, z) \tau \quad (3.18)$$

onde τ é o tempo de vida (ou de recombinação) dos portadores. Usando [Equação 3.17](#) em [Equação 3.18](#) temos:

$$\delta n = \delta p = (1 - R) \frac{\alpha P_T \tau}{w(z)^2 \hbar \omega} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) e^{-\alpha x} \quad (3.19)$$

Assim, a densidade de portadores no material é dada por:

$$N = N_i + 2\delta n \quad (3.20)$$

onde N_i é densidade de portadores intrínseca.

A variação da densidade de portadores de um semiconductor influencia na sua resposta óptica conforme veremos no próximo capítulo.

4 Óptica dos Semicondutores

4.1 Oscilações de plasma

Vamos considerar um condutor como sendo constituído por um gás de elétrons livres sobre um “background” de íons positivos. Em equilíbrio, os elétrons livres e os íons positivos ocupam uniformemente todo o espaço como mostra a [Figura 8a](#).

Seja N a densidade de elétrons no estado de equilíbrio, essa também deve ser a densidade de íons positivos, uma vez que o plasma é eletricamente neutro. Suponha que em um tempo t' , excitamos o plasma de modo que os elétrons se movem da sua posição de equilíbrio (como a massa do íon é muito maior que a massa do elétron, podemos considerar então, que são os elétrons que se deslocam e os íons permanecem fixos). Então, ocorre um aumento na densidade de elétrons (carga negativa) na região para onde eles migraram e um aumento na densidade de íons (cargas positivas) na região de onde os elétrons migraram. Nessas condições, surge um campo elétrico restaurador (na região entre as densidades de cargas) que tende a trazer o sistema novamente ao equilíbrio, como pode ser visto na [Figura 8b](#). Desconsiderando as dissipações, que em sistemas reais sempre ocorrem, esse sistema vai sustentar oscilações das cargas dos elétrons em movimento harmônico simples. Se incluirmos as dissipações, a densidade de carga dos elétrons retorna ao valor de equilíbrio executando um movimento harmônico amortecido. Se o sistema for subcrítico, então a densidade de carga irá oscilar algumas vezes antes de retornar para o seu valor de equilíbrio. Um problema interessante é o de calcular como a densidade de carga dentro de um condutor vai a zero quando o condutor tende ao equilíbrio eletrostático como pode ser visto no trabalho de Bochove et al (BOCHOVE; WALKUP, 1990).

Seja x o deslocamento líquido dos elétrons livres. Note que, fisicamente, nosso problema é equivalente ao problema de um capacitor de placas paralelas. Aproximando o campo elétrico restaurador (\vec{E}_{res}) ao de um campo elétrico de um capacitor de placas paralelas temos:

$$E_{res} = \frac{\sigma}{\epsilon_0} = \frac{Nex}{\epsilon_0} \quad (4.1)$$

onde $\sigma = Nex$ é a densidade superficial de carga, N é a densidade de elétrons e e a carga do elétron.

Então, a força restauradora que atua sobre os elétrons é (desprezando o amortecimento):

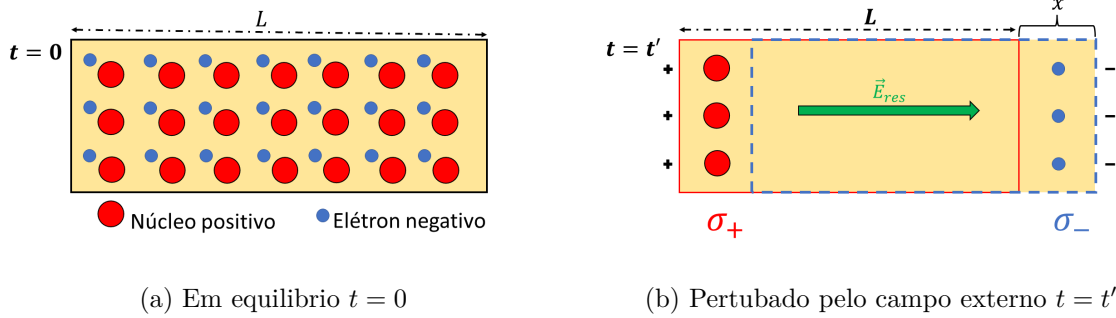


Figura 8 – Esquema ilustrando a origem das oscilações de plasma. **a)** Gás de elétrons livres em equilíbrio em $t=0$. **b)** Separação das cargas positivas e negativas devido a perturbação de um campo elétrico externo e o surgimento do campo elétrico restaurador (\vec{E}_{res}) após a perturbação em $t = t'$. **Fonte:** criação do autor.

$$F_{res} = -eE_{res} = -\frac{Ne^2x}{\varepsilon_0} \quad (4.2)$$

A equação do movimento para os elétrons (desprezando o amortecimento) é:

$$m_e \partial_t^2 x(t) = -\frac{Ne^2x(t)}{\varepsilon_0} \rightarrow \partial_t^2 x(t) + \omega_p^2 x(t) = 0 \quad (4.3)$$

Cuja solução geral é:

$$x(t) = A \cos(\omega_p t + \delta) \quad (4.4)$$

onde ω_p é a frequência das oscilações, também chamada de frequência de plasma dada por:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m_e \varepsilon_0}} \quad (4.5)$$

Note então que a perturbação no plasma provocará oscilações livres dos elétrons sobre suas posições de equilíbrio com uma frequência natural ω_p , que é proporcional a raiz quadrada da densidade de elétrons. Em outras palavras, ω_p fornece o tempo de resposta dos elétrons dentro do plasma quando o plasma é perturbado. Um caso interessante é quando o plasma é perturbado por uma onda eletromagnética (EM) com frequência ω . Se $\omega \gg \omega_p$, então o tempo de resposta dos elétrons é muito maior que o tempo de variação do campo elétrico, de modo que para a onda EM, o plasma é transparente. A frequência de plasma tem muitos efeitos interessantes. Por exemplo, para enviar ondas de rádio através da ionosfera é necessário que a frequência da onda seja superior a ω_p . Caso contrário, o sinal será refletido de volta. Por outro lado, para nos comunicarmos com uma estação de rádio além do horizonte, basta utilizar frequências abaixo de ω_p , pois assim o sinal será refletido na ionosfera e desviado para o receptor localizado além do horizonte.

4.2 Modelo de Drude

No início do sec. XX, Paul Drude considerou que nos metais os elétrons na última camada dos átomos, que compunha o metal, se desprendiam e se tornavam livres, enquanto que os íons permaneciam fixos. O modelo de Drude consiste em supor um gás de elétrons e fazer uso da teoria cinética dos gases para simplificar o modelo. Dentro do modelo de Drude, o transporte é feito pelos elétrons livres. Ao aplicar um campo elétrico, gera-se uma corrente elétrica e, devido à colisão dos elétrons livres com os íons fixos da rede cristalina, os elétrons cedem momento aos íons da rede. Podemos resumir as ideias do Modelo de Drude em três hipóteses:

1. Aproximação de elétrons independentes (desprezando a interação elétron-elétron) e a aproximação de elétrons livres, desprezando a interação elétron-rede, exceto nos instantes em que os elétrons colidem com os íons da rede.
2. Modelando as colisões dos elétrons com os íons como eventos instantâneos que ocorrem com a probabilidade por unidade de tempo dada por $\frac{1}{\tau_c}$.
3. Elétrons termalizam com a vizinhança apenas através das colisões. Assumimos que as colisões são isotrópicas, de modo que após uma colisão teremos $\langle \vec{v} \rangle = 0$ e $\frac{m}{2} \langle v^2 \rangle = \frac{3K_b T}{2}$.

Com base nas hipóteses do modelo de Drude, podemos dizer que o momento do elétron após um instante de tempo dt será:

$$\vec{p}(t) = \begin{cases} \vec{p}_{col}, & \text{se houver colisão} \\ \vec{p}(t) + \vec{F}dt, & \text{se não houver colisão} \end{cases} \quad (4.6)$$

onde \vec{p}_{col} é o momento devido à colisão, $\vec{p}(t)$ é o momento inicial e $\vec{F}dt$ é o impulso da força externa. Com base na 2ª hipótese, podemos assumir que:

- A probabilidade de o elétron colidir entre o intervalo t e $t + dt$ é: $\frac{dt}{\tau_c}$.
- Logo, a probabilidade de o elétron não colidir entre o intervalo t e $t + dt$ é: $\left(1 - \frac{dt}{\tau_c}\right)$.

Assim, rescrevemos a [Equação 4.6](#) como:

$$\vec{p}(t + dt) = \frac{dt}{\tau_c} \vec{p}_{col} + \left(1 - \frac{dt}{\tau_c}\right) (\vec{p}(t) + \vec{F}dt) \quad (4.7)$$

Tomando a média sobre os n elétrons, temos:

$$\langle \vec{p}(t + dt) \rangle = \frac{dt}{\tau_c} \langle \vec{p}_{col} \rangle + \left(1 - \frac{dt}{\tau_c}\right) (\langle \vec{p}(t) \rangle + \vec{F}dt) \quad (4.8)$$

de acordo com a 3ª hipótese, as colisões são isotrópicas, logo, $\langle \vec{p}_{col} \rangle = 0$, de modo que:

$$\langle \vec{p}(t + dt) \rangle = \left(1 - \frac{dt}{\tau_c} \right) (\langle \vec{p}(t) \rangle + \vec{F} dt) \quad (4.9)$$

o que implica que:

$$\partial_t \langle \vec{p}(t) \rangle = -\frac{\langle \vec{p}(t) \rangle}{\tau_c} + \vec{F} \quad (4.10)$$

O termo do lado esquerdo é o termo de dinâmica, o primeiro termo do lado direito é o termo de dissipação e o segundo termo do lado direito é a força externa aplicada sobre os elétrons do metal.

4.3 Óptica dos semicondutores

Metais e semicondutores (com excesso de portadores livres) podem ser tratados como plasma, uma vez que eles contêm igual número de íons fixos positivos e elétrons livres. Os elétrons livres experimentam forças restauradoras quando interagem com ondas eletromagnéticas. No caso dos semicondutores, os elétrons ligados também possuem um papel relevante e sua contribuição pode ser calculada a partir do modelo de Lorentz (FOX, 2002).

Vamos começar considerando as oscilações dos elétrons livres em metais, induzidos por um campo elétrico AC de uma onda eletromagnética, de frequência angular ω e amplitude E_0 polarizado ao longo da direção do eixo-x. A equação do deslocamento x do elétron pode ser obtida do modelo de Drude. Usando a [Equação 4.10](#) temos:

$$\partial_t^2 x(t) + \gamma \partial_t x(t) = -\frac{-e}{m_e} E(t) = \frac{-e}{m_e} E_0 e^{-i\omega t} \quad (4.11)$$

onde $\gamma = \frac{1}{\tau_a}$ é taxa de amortecimento dos elétrons livres. O primeiro termo representa a aceleração do elétron, enquanto que o segundo representa a força de amortecimento friccional com o meio. O termo do lado direito é a força motriz exercida pela luz.

A solução particular (estacionária) para a [Equação 4.11](#) é:

$$x(t) = X_0 e^{-i\omega t} \quad (4.12)$$

substituindo a [Equação 4.12](#) na [Equação 4.11](#), temos:

$$x(t) = \frac{eE}{m_e(\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (4.13)$$

A polarizabilidade P de um gás é: $P = -Nex$, onde N é o número de elétrons por unidade de volume. Podemos determinar a constante dielétrica, ε_r , do gás de elétrons através das definições do deslocamento elétrico (D):

$$\begin{aligned} D &= \varepsilon_r \varepsilon_0 E \\ &= \varepsilon_0 E + P \\ &= \varepsilon_0 E - \frac{Ne^2 E}{m_e (\omega^2 + i\gamma\omega)} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Note que podemos escrever ε_r como:

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 - \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_e} \frac{1}{(\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (4.15)$$

Usando a [Equação 4.5](#), podemos reescrever [Equação 4.15](#) como:

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (4.16)$$

Podemos aplicar o modelo de elétrons livres aos semicondutores fazendo duas modificações apropriadas:

1. Precisamos contabilizar que, para os semicondutores, elétrons e buracos estão movendo na banda de condução e valência respectivamente. Isso pode ser facilmente contornado assumindo que os portadores de carga se comportam como partículas com uma massa efetiva m^* .
2. Os semicondutores possuem elétrons ligados que contribuem para a permissividade do material. Uma maneira inteligente de contabilizar os elétrons ligados consiste em dividir a polarizabilidade \vec{P} do material em duas partes, uma decorrente dos portadores de cargas livres (\vec{P}_{livres}) e outra decorrente dos elétrons ligados ($\vec{P}_{ligados}$).

Assim:

$$D = \varepsilon_r \varepsilon_0 E \quad (4.17)$$

$$D = \varepsilon_0 E + P_{ligado} + P_{livre} \quad (4.18)$$

$$D = \varepsilon_0 \varepsilon_{opt} E - \frac{Ne^2 E}{m^* (\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (4.19)$$

O primeiro termo na [Equação 4.19](#), representa a contribuição dos elétrons ligados ao deslocamento elétrico, portanto, ε_{opt} é a constante dielétrica intrínseca do semiconductor.

O segundo termo representa a contribuição dos portadores de carga livres e, portanto, N é a densidade de portadores livres (elétrons e buracos).

Podemos escrever a constante dielétrica em função da frequência como:

$$\begin{aligned}\varepsilon_r(\omega) &= \varepsilon_{opt} - \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m^*} \frac{1}{(\omega^2 + i\gamma\omega)} \\ \varepsilon_r(\omega) &= \varepsilon_{opt} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + i\gamma\omega)} \right)\end{aligned}\quad (4.20)$$

Note que agora a frequência de plasma ω_p é dada por:

$$\omega_p^2 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_{opt}\varepsilon_0 m^*} \quad (4.21)$$

A interpretação física da frequência de plasma para um semiconductor é levemente diferente daquela que fizemos para um gás de elétrons livres. Agora ω_p fornece o tempo de resposta tanto dos elétrons (livres) quanto dos buracos quando são perturbados por um campo externo. Como temos dois tipos de portadores, devemos trabalhar com $m^* = \left(\frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_b^*} \right)^{-1}$ que é a massa efetiva reduzida, onde m_e^* é a massa efetiva do elétron e m_b^* é a massa efetiva do buraco. Além disso, incluímos o termo ε_{opt} para contabilizar a polarizabilidade devido aos elétrons ligados. Rescrevendo $\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$, temos:

$$\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon_{opt} \left(1 - \frac{\omega_p^2 \tau_a^2}{\omega^2 \tau_a^2 + 1} \right) \quad (4.22)$$

$$\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_{opt} \left(\frac{\omega_p^2 \tau_a}{\omega(1 + \tau_a^2 \omega^2)} \right) \quad (4.23)$$

O índice de refração complexo do semiconductor $\tilde{n} = n + i\kappa$ pode ser calculado usando as componentes da constante dielétrica através das relações:

$$n = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{\frac{1}{2}} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.24)$$

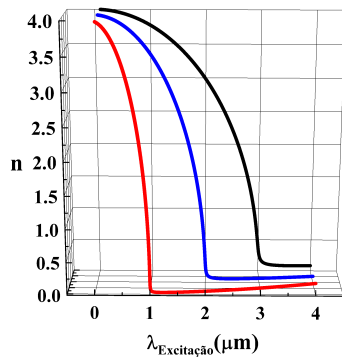
$$\kappa = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[-\varepsilon_1 + (\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)^{\frac{1}{2}} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.25)$$

a refletividade R , pode ser escrita em função do índice de refração através da equação de Fresnel:

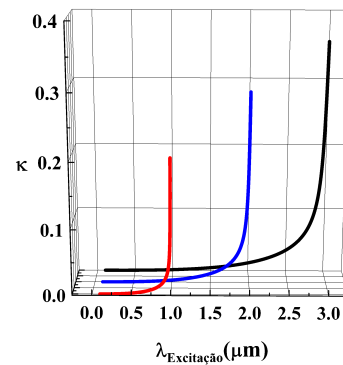
$$R(\tilde{n}) = \left| \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right|^2 \quad (4.26)$$

Diferentemente de um metal, a densidade de portadores de carga de um semiconductor pode ser facilmente modificada e como a frequência de plasma varia com a

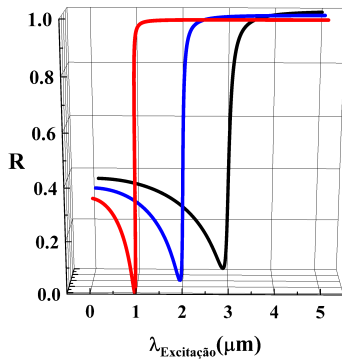
raiz quadrada da densidade de portadores, podemos modificar facilmente a frequência de plasma dos semicondutores o que implica modificar toda a sua resposta óptica. A [Figura 9](#) ilustra essa situação onde mostramos a variação de n , κ e R para um semiconductor com 3 densidades de portadores distintas, representadas aqui pelo comprimento de onda de plasma λ_p , em função do comprimento de onda de excitação $\lambda_{Excitação}$. O comprimento de onda de plasma é o comprimento associado à frequência de plasma calculado pela relação usual $\omega_p = \frac{2\pi c}{\lambda_p}$.



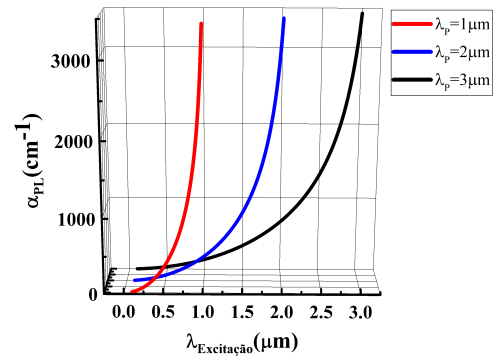
(a) Variação da parte real do índice de refração



(b) Variação do coeficiente de extinção



(c) Variação da reflectância



(d) Variação do coeficiente de absorção devido aos portadores livres

Figura 9 – Variação das propriedades ópticas dos semicondutores em função do comprimento de onda de excitação. *Linha sólida vermelha:* $\lambda_p = 1 \mu\text{m}$. *Linha sólida azul:* $\lambda_p = 2 \mu\text{m}$. *Linha sólida preta:* $\lambda_p = 3 \mu\text{m}$. **a)** variação da parte real do índice de refração. **b)** Variação do coeficiente de extinção. **c)** variação da reflectância **d)** Variação do coeficiente de absorção devido aos portadores livres. *Demais parâmetros:* $\varepsilon_{opt} = 16$; $\tau_a = 10^{-13}$ s. **Fonte:** criação do autor.

Note que a variação da densidade de portadores modifica toda a resposta óptica do material. Para um comprimento de onda específico (menor que λ_p), ao aumentar a densidade de portadores (o que implica diminuir λ_p) tanto n como R diminuem enquanto que κ aumenta. Quando $\lambda = \lambda_p$, ocorre a ressonância entre a frequência da radiação e a

frequência de plasma aumentando significativamente o valor de κ , enquanto que $n \cong 0$ e $R \cong 0$. Para valores de $\lambda > \lambda_p$ a radiação é fortemente absorvida pelos portadores livres caracterizados pelo fato que $\kappa \gg n$ o que implica que $R \cong 1$.

A parte imaginária do índice de refração está associada com a absorção das ondas eletromagnéticas. A relação entre α e κ pode ser derivada considerando a propagação de uma onda eletromagnética em um meio com índice de refração complexo \tilde{n} . Ao penetrar no material, a intensidade da onda eletromagnética irá decair exponencialmente devido a κ . Comparando o decaimento da intensidade da onda eletromagnética (escrita em termos do índice de refração complexo) com a lei de Beer obtemos a seguinte relação:

$$\alpha = \frac{4\pi}{\lambda} \kappa \quad (4.27)$$

A [Equação 4.27](#) é válida para todos os mecanismos de absorção discutidos na [subseção 3.2.2.1](#). Uma grande vantagem de discriminarmos α é podermos compreender como cada mecanismo funciona e impacta na óptica do semiconductor. Na [Figura 9d](#) ilustramos a variação de α_{PL} descrita pela [Equação 4.27](#) para um semiconductor com 3 densidades de portadores distintas representada por λ_p . A variação de κ é dada pela [Equação 4.25](#).

Como esperado, aumentando a densidade de portadores o valor de α_{PL} aumenta. Além disso, para $\lambda \geq \lambda_p$ o valor de α_{PL} aumenta significativamente devido à ressonância de plasma, fazendo com que o semiconductor se torne altamente refletivo à radiação de comprimento λ conforme discutimos no final da [seção 4.1](#).

Uma maneira de incluir a absorção interbandas é através da óptica não linear, conforme pode ser visto na [seção 4.6](#) do livro do Boyd (BOYD, 2020). Uma outra abordagem, que leva ao mesmo resultado, é incluir o efeito da absorção interbandas através da geração de portadores de carga (conforme fizemos na [subseção 3.2.2.1](#)) fazendo com que ω_p na [Equação 4.20](#) seja função da intensidade da radiação, causando a não linearidade de \tilde{n} . Essa última abordagem tem a vantagem de permitir uma melhor compreensão de como a energia absorvida é convertida pela rede cristalina do semiconductor.

4.4 Aquecimento da rede cristalina devido à absorção óptica

Os fótons incidentes em um semiconductor podem ser absorvidos pelos elétrons na banda de valência ocasionando a geração dos pares elétrons-buracos (e-b). Quando a energia do fóton é maior que a energia de gap do semiconductor, os pares e-b são gerados em um estado de energia superior ao estado de equilíbrio térmico de sua respectiva banda (E_{He} para elétrons e E_{Hb} para buracos), transcorrido um certo tempo t (geralmente da ordem de $10^{-12}s$) os portadores termalizam para o estado de equilíbrio térmico (E_{tc} para

os elétrons e E_{tv} para os buracos) e a energia liberada pela termalização é absorvida na forma de calor pela rede cristalina do semiconductor. Um segundo mecanismo de absorção nos semicondutores é através dos portadores livres (elétrons na banda de condução e buracos na banda de valência) que ao absorver um fóton, o portador livre é excitado para estados de maior energia e após um tempo t (novamente da ordem de $10^{-12}s$) os portadores termalizam para a sua respectiva posição de equilíbrio térmico e a energia de termalização é absorvida na forma de calor pela rede cristalina. Em ambos os casos o portador excitado é denominado de portador quente (hot carrier). O processo de criação e termalização dos portadores quentes estão ilustrados na Figura 10.

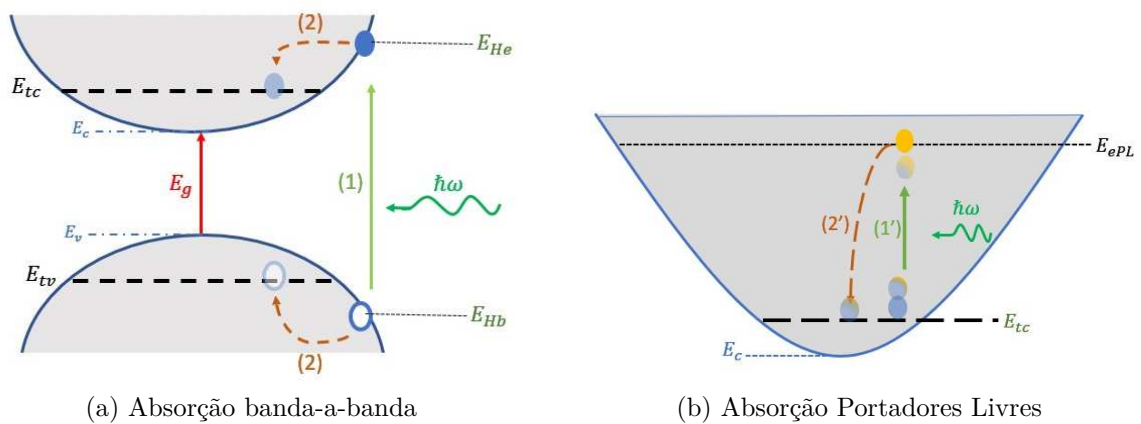


Figura 10 – Esquema ilustrando a absorção de fótons. **a)** Absorção banda-a-banda: 1) um fóton com energia $\hbar\omega$ é absorvido gerando um buraco na banda de valência com energia E_{Hb} e um elétron na banda de condução com energia E_{He} . 2) Como a energia do par e-b é maior que a energia de equilíbrio térmico nas suas respectivas bandas ($E_{tv} = E_v - K_bT$ banda de valência e $E_{tc} = E_c + K_bT$ banda de condução), o portador (e-b) termaliza para a sua respectiva energia de equilíbrio liberando a energia $(E_{He} - E_{tc}) + (|E_{Hb} - E_{tv}|)$ na forma de calor na rede cristalina. **b)** Absorção dos portadores livres: 1') um elétron (buraco) livre na banda de condução (valência) absorve um fóton com energia $\hbar\omega$ sendo excitado para um estado com energia maior E_{ePL} (E_{bPL}). 2') o elétron (buraco) quente decai para a energia de equilíbrio térmico da sua respectiva banda (E_{tv} para a banda de valência e E_{tc} para a banda de condução) liberando a energia $E_{ePL} - E_c$ ($E_v - E_{bPL}$, para banda de valência) na forma de calor para a rede cristalina. **Fonte:** adaptado da referência (MEYER; BARTOLI; KRUER, 1980).

Depois de entrar em equilíbrio térmico com sua respectiva banda, os portadores se difundem pelo cristal durante um certo tempo $t = \tau$ que é definido como tempo de recombinação ou tempo de vida do portador. A distância que o portador percorre durante seu tempo de vida é definida como o comprimento de difusão do portador L_D e pode ser escrita como $L_D = \sqrt{D\tau}$, onde D é o coeficiente de difusão do semiconductor. Após o tempo τ o par e-b se recombina, o processo pelo qual a recombinação ocorre irá determinar de que maneira a energia da recombinação será convertida, de maneira geral existem

duas grandes classes de recombinação, as radiativas e as não radiativas. Os processos de recombinação radiativos são aqueles em que a energia da recombinação é convertida em luz, ocorrendo a emissão de um fóton para cada par e-b que se recombina, o fóton emitido não contribui para o aquecimento da rede cristalina do semiconductor uma vez que ele é reabsorvido eletronicamente pelo sistema (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980). Os processos não radiativos são aqueles onde não ocorrem a emissão de fótons, no geral a energia da recombinação é convertida em calor e absorvida pela rede cristalina do semiconductor. Entre os processos não radiativos, o que ocorre com maior frequência na recombinação dos semicondutores é o processo Auger ilustrado na Figura 11, onde a energia da recombinação é absorvida por um terceiro portador (ilustrado como elétron 2) que é excitado para um estado de maior energia, a energia da termalização do 3º portador é convertida em calor na rede do semiconductor.

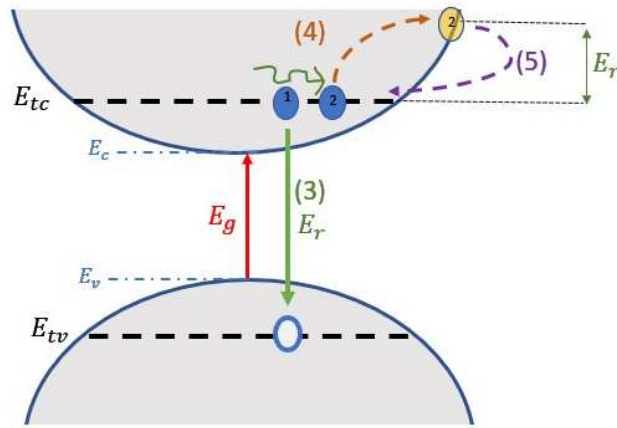


Figura 11 – Esquema ilustrando a recombinação Auger. O processo de recombinação ocorre depois da criação do par e-b ilustrado por 1) e 2) da Figura 10a. 3) O elétron 1 na banda de condução se recombina com o buraco na banda de valência liberando uma energia E_r que é absorvida por outro elétron livre na banda de condução (elétron 2). 4) O elétron 2 absorve E_r sendo excitado para um estado de de energia $E_{tc} + E_r$. 5) O elétron 2 decai para a energia de equilíbrio térmico na banda de condução liberando a energia E_r na forma de calor na rede cristalina do semiconductor. **Fonte:** adaptado da referência (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980).

Seja E_{op} a energia óptica absorvida pelo semiconductor, através dos mecanismos de termalização dos portadores quentes, recombinação radiativa e recombinação não radiativa, podemos decompor E_{op} em:

$$E_{op} = E_T + E_B^{NR} + E_B^R + E_S^{NR} + E_S^R \quad (4.28)$$

onde E_T é a energia de termalização dos portadores quentes, E_B^{NR} e E_S^{NR} são respectivamente, a energia resultante da recombinação não radiativa dos portadores no bulk e na

superfície, E_B^R e E_S^R são respectivamente, a energia resultante da recombinação radiativa dos portadores no bulk e na superfície.

Note que apenas três dos cinco termos da Equação 4.28 são capazes de causar um aquecimento no semiconductor: E_T , E_B^{NR} e E_S^{NR} . Cada um desses termos pode ser pensado como uma fonte de aquecimento independente que se distribui por uma profundidade d_i do semiconductor e é ativada após um tempo t_i de interação do semiconductor com a radiação. Por uma questão didática vamos dividir nossa análise em dois casos: a recombinação dos portadores sendo integralmente não radiativa e a recombinação dos portadores sendo integralmente radiativa.

Na recombinação não radiativa temos que as três fontes E_T , E_B^{NR} e E_S^{NR} atuam no processo de aquecimento do semiconductor. Por uma questão de simplicidade vamos considerar que a absorção dos portadores livres seja nula, de modo que toda a energia de termalização seja decorrente da termalização dos portadores quentes gerados. Como veremos na análise do semiconductor com recombinação radiativa, essa aproximação é válida em muitas situações de interesse. Considere um semiconductor homogêneo de espessura x sendo iluminado em uma de suas superfícies por uma radiação cujos fótons possuem energia $\hbar\omega$. Seja χ_i a fração da energia absorvida transformada no calor emitido pela i -ésima fonte, t_i o tempo de delay entre o semiconductor absorver o fóton e a i -ésima fonte começar a operar, geralmente é o tempo de relaxação relacionado ao mecanismo, e d_i a profundidade da camada que atua a i -ésima fonte.

Os portadores quentes são gerados por toda a camada de absorção, que é dado pelo inverso do coeficiente de absorção (também conhecido como comprimento de penetração), o tempo de relaxação dos portadores quentes é muito menor que os outros tempos envolvidos na interação da radiação com o semiconductor ($t_T \cong 10^{-12}s$) de maneira que podemos tomar o tempo de relaxação dos portadores quentes como sendo instantâneo ($t_T = 0$) e fazendo com que o comprimento de difusão dos portadores quentes seja nula. Isso implica que a fonte de aquecimento relacionada à termalização dos portadores quentes se estende por uma profundidade $d_T = \alpha^{-1}$. Após atingirem o equilíbrio térmico com sua respectiva banda os portadores gerados estão livres para se difundirem pela rede cristalina do semiconductor durante seu tempo de vida até se recombinarem. Como estamos considerando que a recombinação seja integralmente não radiativa, toda a energia resultante da recombinação será convertida em calor e emitida pelas duas fontes relacionadas com a recombinação não radiativa: recombinação não radiativa no bulk e a recombinação não radiativa na superfície. Cada uma dessas duas fontes opera em um tempo específico que é o tempo de recombinação dos portadores no bulk ($t_B^{NR} = \tau_S$) e na superfície ($t_S^{NR} = \tau_B$). A recombinação superficial ocorre apenas na superfície do semiconductor e portanto podemos tomar $d_S^{NR} = 0$, por outro lado a recombinação do bulk se estende para além da camada de absorção incluindo à distância que os portadores livres podem difundir até se recombinarem ($L_D = \sqrt{D\tau_B}$)

onde D é o coeficiente de difusão dos portadores), o que implica que a fonte relacionada a recombinação não radiativa do bulk se estende por $d_B^{NR} = \alpha^{-1} + L_D$. A Figura 12 ilustra a distribuição das fontes de aquecimento sobre um semiconductor de espessura x com destaque para a distribuição das fontes de aquecimento sobre duas partículas (germânio e silício) ambas com raio de $2,5\mu\text{m}$ e tempo de recombinação $\tau_B = \tau_S = \tau = 10^{-8}\text{s}$.

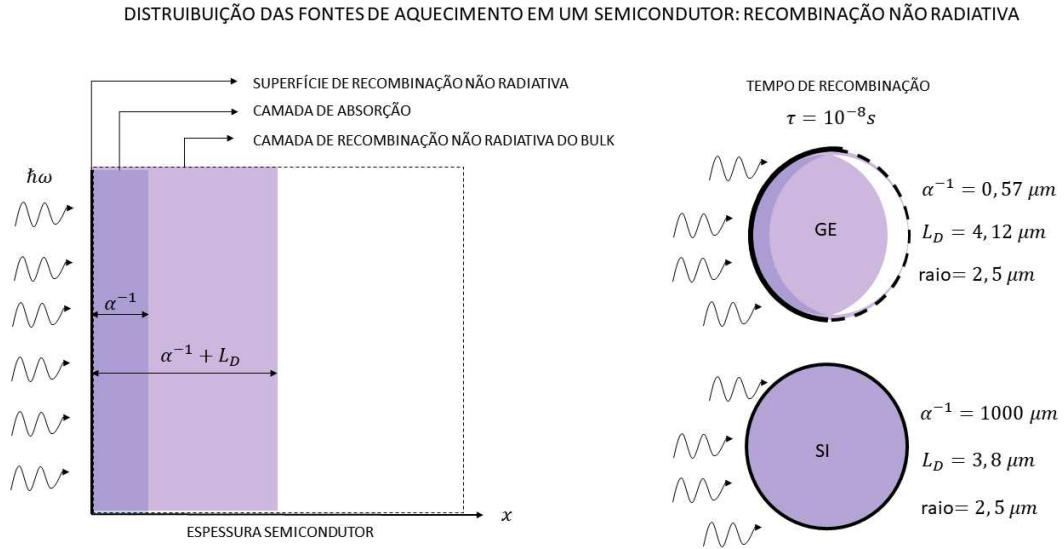


Figura 12 – Esquema ilustrando a distribuição das fontes de aquecimento em um semiconductor para uma recombinação puramente não radiativa. *Linha sólida preta:* superfície de recombinação não radiativa. *Linha tracejada preta:* limite do semiconductor. *Roxo escuro:* delimita a camada de absorção α^{-1} . *Roxo claro:* delimita a camada de recombinação não radiativa que inclui a camada de absorção e a camada de difusão dos portadores $\alpha^{-1} + L_D$. **Lado esquerdo:** ilustração da distribuição das fontes em um semiconductor de espessura x . **Lado direito:** ilustração da distribuição das fontes de aquecimento sobre uma partícula de germânio e Silício com $2,5\mu\text{m}$ de raio. *Parâmetros:* $\alpha_{Ge}^{-1} = 0,57\mu\text{m}$ (NUNLEY et al., 2016a); $\alpha_{Si}^{-1} = 1000\mu\text{m}$ (SCHINKE et al., 2015); $D_{Ge} = 17\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $D_{Si} = 15\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-8}\text{s}$; $a = 2,5\mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor.

Uma vez conhecida a extensão de cada fonte e o tempo necessário para a sua ativação, podemos calcular a fração da energia absorvida que é transformada em calor por cada fonte, assim como a profundidade pela qual a energia emitida por cada fonte se difunde sobre o semiconductor. Vamos considerar como a energia absorvida de 1 fóton se distribui entre as fontes de aquecimento usando a Equação 4.28 e tomando $E_{op} = \hbar\omega$. A partir da Figura 10a temos que $E_T = (E_{He} - E_{tc}) + (|E_{Hb} - E_{tv}|) = \hbar\omega - E_g$, assim a fração da energia absorvida emitida pela termalização dos portadores quentes é dada por:

$$\chi_T = \frac{E_T}{E_{op}} = \frac{\hbar\omega - E_g}{\hbar\omega} \quad (4.29)$$

Para calcular a fração da energia absorvida que é transformada em calor pela recombinação não radiativa no bulk e na superfície vamos utilizar a abordagem desenvolvida por Stagni (STAGNI, 1977). A fração da energia absorvida pela recombinação não radiativa pela superfície (χ_S^{NR}) e pelo bulk (χ_B^{NR}) é dada por:

$$\chi_S^{NR} = \frac{E_S^{NR}}{\hbar\omega} = \varsigma_S \frac{E_g}{\hbar\omega} \quad (4.30)$$

$$\chi_B^{NR} = \frac{E_B^{NR}}{\hbar\omega} = (1 - \varsigma_S) \frac{E_g}{\hbar\omega} \quad (4.31)$$

com

$$\varsigma_S = \frac{pr}{(1 - e^{-r})(q^2 - r^2)} \left\{ 1 + e^{-r} - \frac{[p(1 + e^{-r}) + r(1 + e^{-r})](q + q \cosh q + p \sinh q)}{(p^2 + q^2) \sinh q + 2pq \cosh q} \right\} \quad (4.32)$$

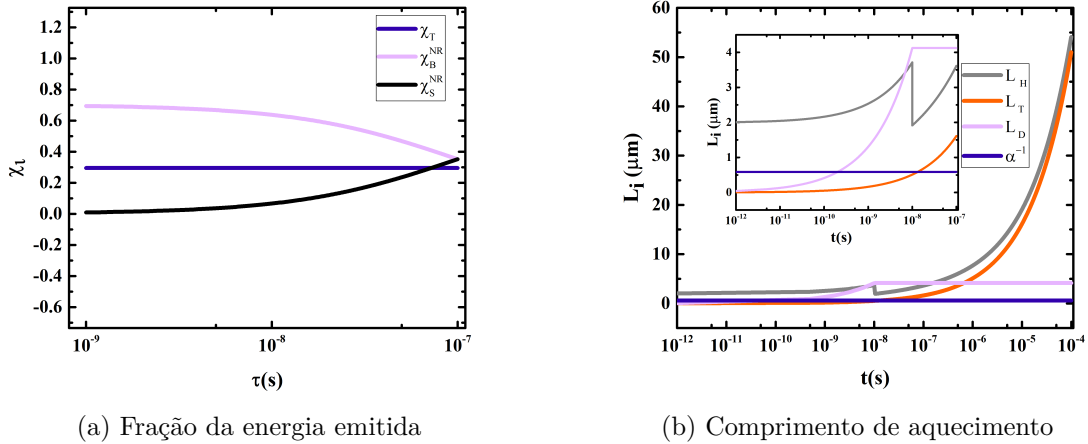
onde $p = \frac{sx}{D}$, $q = \frac{x}{L_D}$ e $r = \alpha x$, sendo s a velocidade de recombinação superficial e D o coeficiente de difusão dos portadores. Note que a fração da energia emitida pela recombinação não radiativa pelo bulk e pela superfície dependem do tempo de recombinação dos portadores, devido à dependência de ς_S , L_D e s , enquanto que a fração da energia emitida pela termalização dos portadores quentes depende apenas da diferença entre $\hbar\omega$ e E_g . A [Figura 13a](#) ilustra a variação de χ_i com relação ao tempo de recombinação dos portadores para o germânio ($E_g^{dir} = 0,80$ eV, $s = 2500$ cm s⁻¹, $D = 15$ cm² s⁻¹) iluminado por fótons com $\hbar\omega = 1,15$ eV e com tempo de recombinação de $\tau = 10^{-8}$ s.

O calor gerado em cada uma das fontes da [Figura 13a](#) se difunde pelo semiconductor devido à difusão térmica por uma profundidade L_T que é o comprimento de difusão térmica dado por $L_T(t) = \sqrt{D_T t}$, onde t é o tempo de duração do pulso (ou da interação entre a radiação e o semiconductor). Assim, o calor emitido por cada fonte se propaga por uma profundidade efetiva de $d_i + L_T$.

Note que cada uma das fontes emite uma fração diferente da energia absorvida (a soma das três é igual a 1). Em profundidades diferentes do semiconductor, podemos definir um comprimento de aquecimento generalizado (L_H) que leva em consideração a fração da energia emitida e profundidade que essa energia é distribuída como sendo:

$$L_H(t, \tau) = \left[\frac{\chi_{TT}}{\alpha^{-1} + L_T(t)} + \frac{\chi_B^{NR}(\tau)}{\alpha^{-1} + L_D(\tau) + L_T(t)} + \frac{\chi_s^{NR}(\tau)}{L_T(t)} \right]^{-1} \quad (4.33)$$

O comprimento de aquecimento nos fornece uma medida da profundidade em que a energia absorvida é redistribuída na forma de calor devido à difusão dos portadores e da difusão térmica a partir do ponto de incidência do feixe sobre o semiconductor (superfície). A [Figura 13b](#) ilustra a variação de L_H para o germânio em função do tempo de duração do pulso do laser (ou tempo da interação entre a radiação e o semiconductor) para um tempo



(a) Fração da energia emitida

(b) Comprimento de aquecimento

Figura 13 – **a)** Fração da energia absorvida emitida como calor pela i -ésima fonte para a recombinação integralmente não radiativa em função do tempo de recombinação dos portadores (τ). *Linha sólida azul:* fração da energia absorvida emitida pela termalização dos portadores quentes (χ_T). *Linha sólida roxo claro:* fração da energia absorvida emitida pela recombinação não radiativa no bulk (χ_B^{NR}). *Linha sólida preta:* fração da energia absorvida emitida pela recombinação não radiativa na superfície (χ_S^{NR}). **b)** Comparação entre o comprimento de aquecimento generalizado (L_H , linha sólida cinza), os comprimentos de difusão térmico (L_T , linha sólida laranja) e de portadores (L_D , linha sólida roxo claro) e o comprimento de penetração (α^{-1} , linha sólida azul) em função do tempo de interação t da radiação com o semiconductor. **Gráfico inserido:** a mesma coisa, porém para $t \leq \tau$. *Parâmetros:* $E_{gap} = 0,80$ eV (MEYER; KRUEER; BARTOLI, 1980); $s = 2500$ cm^2s^{-1} (STAGNI, 1977); $D = 15$ cm^2s^{-1} (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-8}$ s; $D_t = 0,26$ cm^2s^{-1} (STAGNI, 1977); $\hbar\omega = 1,15$ eV. **Fonte:** criação do autor.

de recombinação de $\tau_S = \tau_B = \tau = 10^{-8}$ s e compara a variação de L_H com a variação dos comprimentos de difusão envolvidos $L_T(t)$, $L_D(\tau)$ e com α^{-1} , os demais parâmetros são similares ao usado na Figura 13a. Note que L_H apresenta uma descontinuidade em $t = \tau$, isso ocorre porque em $t = \tau$ as fontes de recombinação não radiativa são ativadas aumentando a fração da energia absorvida que é emitida na forma de calor, de acordo com a Equação 4.33 quanto maior forem a fração de energia absorvida (χ_i) ou o coeficiente de absorção do material (independente do mecanismo dominante) menor será o valor de L_H , ou seja mais próxima ao ponto de incidência estará a energia absorvida, por outro lado, quanto maior forem os comprimentos de difusão L_T ou L_D maior será o valor de L_H e mais diluída estará a energia absorvida, para valores de $t \gg \tau$ a difusão térmica se torna o mecanismo dominante e $L_H \cong L_T$.

Na recombinação integralmente radiativa temos apenas uma fonte atuando no aquecimento da rede do semiconductor, a termalização dos portadores quentes, que é originada tanto na criação dos pares e-b quando pela absorção dos portadores livres. O problema é tratado de forma mais simples se consideramos que a termalização dos

portadores gerados (PG) e da absorção dos portadores livres (APL) sejam independentes com cada uma tendo sua camada de geração (d_i), tempo de ativação (t_i) e fração de energia absorvida e emitida na forma de calor (χ_i), ou seja, constituindo uma fonte de aquecimento independente.

Os portadores de carga são criados na camada de absorção que é dada por α_1^{-1} , como o tempo de relaxação continua sendo muito curto (da ordem de 10^{-12} s) a fonte de aquecimento relacionada a esse mecanismo se estende somente por α_1^{-1} , assim temos: $t_T^{PG} = 0$ e $d_T^{PG} = \alpha_1^{-1}$. Os portadores livres por sua vez podem absorver os fótons em qualquer profundidade que possua portadores livres, uma vez que os portadores são gerados em α_1^{-1} e podem se difundir por L_D antes de se recombinar, a fonte de aquecimento relacionada a APL se estende por $d_T^{APL} = \alpha_1^{-1} + L_D$ e podemos tomar $t_T^{APL} = 0$ s, a [Figura 14](#) ilustra a distribuição das fontes de aquecimento sobre um semiconductor de espessura x com destaque para a distribuição das fontes de aquecimento sobre duas partículas (germânio e silício) ambas com raio de $2,5\mu m$ e tempo de recombinação dos portadores (superficial e bulk) de $\tau = 10^{-6}$ s. Note que usamos α_1 em vez de α como fizemos no caso anterior, isso ocorre porque uma vez que estamos considerando a absorção dos portadores livres possuímos dois mecanismos de absorção: α_1 e α_{PL} (continuamos mantendo $\alpha_2 = 0$), com $\alpha = \alpha_1 + \alpha_{PL}$. Como discutimos na [seção 4.3](#) e ilustrado na [Figura 9d](#), para a maioria dos semicondutores de gap direto $\alpha_{PL} \ll \alpha_1$ para todas as frequências de radiação maiores que a frequência de plasma.

As frações da energia emitidas na forma de calor pela termalização dos portadores gerados (χ_T^{PG}) e pela termalização dos portadores livres (χ_T^{APL}) são:

$$\chi_T^{PG} = \frac{\alpha_1 (\hbar\omega - E_g)}{\alpha \hbar\omega} \quad (4.34)$$

$$\chi_T^{APL} = \frac{\alpha_{PL}}{\alpha} \quad (4.35)$$

lembrando que uma fração da energia é emitida na forma de luz χ_{rad} e não contribui para o aquecimento do semiconductor.

$$\chi_{rad} = \frac{\alpha_1 E_g}{\alpha \hbar\omega} \quad (4.36)$$

A [Figura 15a](#) ilustra a variação de χ_i com relação ao tempo de recombinação dos portadores para o germânio com os parâmetros idênticos ao da [Figura 13a](#) e $\alpha_{PL} = 300 \text{ cm}^{-1}$. Note que a fração que é emitida pela absorção dos portadores livres é extremamente pequena $\chi_T^{APL} = 0,017$, de fato somente quando estamos muito próximo da ressonância de plasma, onde $\alpha_{PL} = 3000 \text{ cm}^{-1}$, temos $\chi_T^{APL} = 0,15$ e $\chi_T^{PG} = 0,27$. Uma recombinação não radiativa diminui a densidade de portadores que é opto-gerada pois o tempo de vida é significativamente menor do que na recombinação radiativa e segundo a [Equação 3.18](#) a densidade de portadores é proporcional a τ , por isso ignoramos χ_T^{APL} quando analisamos as fontes de calor no caso não radiativo pois sua contribuição é desprezível para a maioria

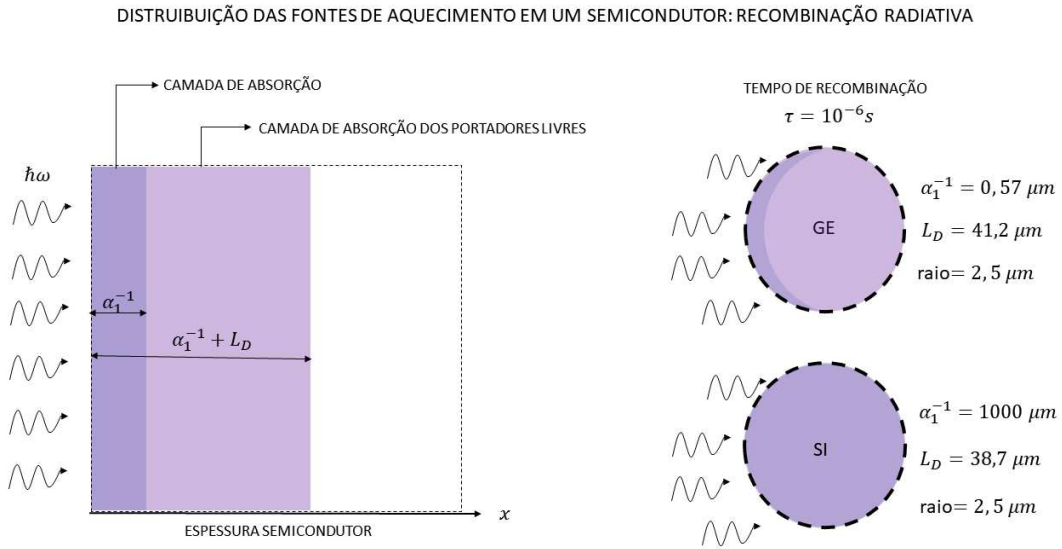


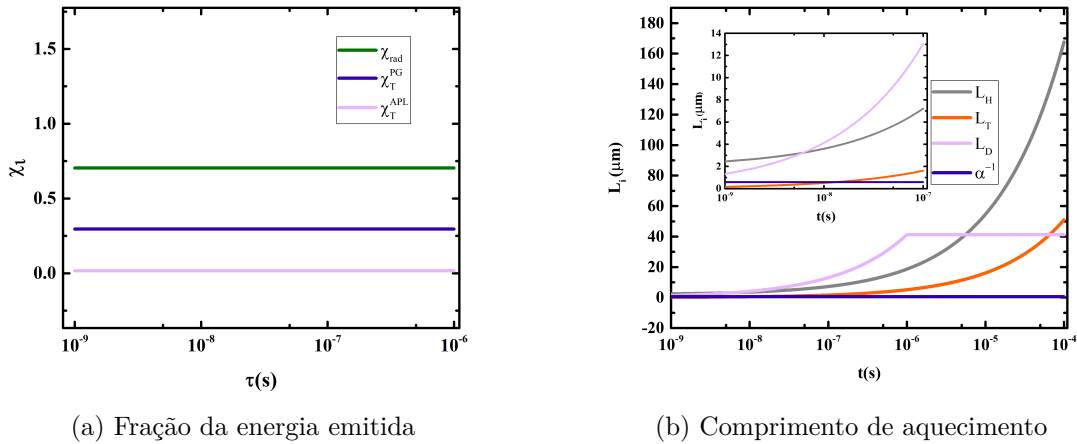
Figura 14 – Esquema ilustrando a distribuição das fontes de aquecimento em um semicondutor para uma recombinação puramente radiativa. *Linha tracejada preta*: limite do semicondutor. *Roxo escuro*: delimita a camada de absorção α^{-1} . *Roxo claro*: delimita a camada de recombinação radiativa, que inclui a camada de absorção e a camada de difusão dos portadores $\alpha^{-1} + L_D$, uma vez que em toda essa distribuição existe uma probabilidade não nula de ocorrer a absorção por um portador livre. **Lado esquerdo**: ilustração da distribuição das fontes em um semicondutor de espessura x . **Lado direito**: ilustração da distribuição das fontes de aquecimento sobre uma partícula de germânio e silício de $2,5 \mu\text{m}$. *Parâmetros*: $\alpha_{Ge}^{-1} = 0,57 \mu\text{m}$ (NUNLEY et al., 2016a); $\alpha_{Si}^{-1} = 1000 \mu\text{m}$ (SCHINKE et al., 2015); $D_{Ge} = 17 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $D_{Si} = 15 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ (STAGNI, 1977); $\tau = 10^{-6} \text{ s}$; $a = 2,5 \mu\text{m}$. **Fonte**: criação do autor.

dos casos de interesse (a exceção poderia ser um semicondutor dopado e uma radiação cujo comprimento de plasma fosse grande). Nos metais, devido a sua grande densidade de portadores livres, χ_T^{APL} é o único mecanismo de conversão de energia óptica em energia térmica (STAGNI, 1977), onde toda energia absorvida é convertida em calor, por exemplo para a prata (JOHNSON; CHRISTY, 1972) $\alpha_{PL} = 8,5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ em $\lambda = 1064 \text{ nm}$.

O comprimento de aquecimento generalizado para a recombinação radiativa é dado por:

$$L_H(t, \tau) = \left[\frac{\chi_T^{PG}}{\alpha^{-1} + L_T(t)} + \frac{\chi_T^{APL}}{\alpha^{-1} + L_D(\tau) + L_T(t)} \right]^{-1} \quad (4.37)$$

novamente o calor gerado por cada fonte se propaga por uma distância L_T devido a difusão térmica, a Figura 15b ilustra a variação de L_H para o germânio com o tempo de recombinação de 10^{-6} s e demais parâmetros idênticos ao da Figura 13b. Note que L_H é significativamente maior para a recombinação radiativa, como já mencionamos, quanto maior for a fração de energia absorvida mais concentrada ela será emitida resultando em



(a) Fração da energia emitida

(b) Comprimento de aquecimento

Figura 15 – **a)** Fração da energia absorvida emitida como calor pela i -ésima fonte para a recombinação integralmente radiativa em função do tempo de recombinação dos portadores (τ). *Linha sólida verde:* fração da energia emitida na forma de fótons (χ_{rad}). *Linha sólida azul:* fração da energia absorvida convertida em calor pela termalização dos portadores quentes induzidos (χ_T^{PG}). *Linha sólida roxo claro:* fração da energia absorvida convertida em calor devido a absorção dos portadores livres (χ_T^{APL}). **b)** Comparação entre o comprimento de aquecimento generalizado (L_H , linha sólida cinza), os comprimentos de difusão térmico (L_T linha sólida laranja), comprimento de difusão dos portadores (L_D , linha sólida roxo clara), e o comprimento de penetração (α^{-1} , linha sólida azul) em função do tempo de interação t entre o semiconductor e a radiação. **Gráfico inserido:** a mesma coisa, porém para $t \leq \tau$. *Parâmetros:* $\alpha_1 = 1700 \text{ cm}^{-1}$; $\alpha_{PL} = 300 \text{ cm}^{-1}$; $E_g = 0,80 \text{ eV}$; $\hbar\omega = 1,15 \text{ eV}$; $D_t = 0,26 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$; $D = 15 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$. **Fonte:** criação do autor.

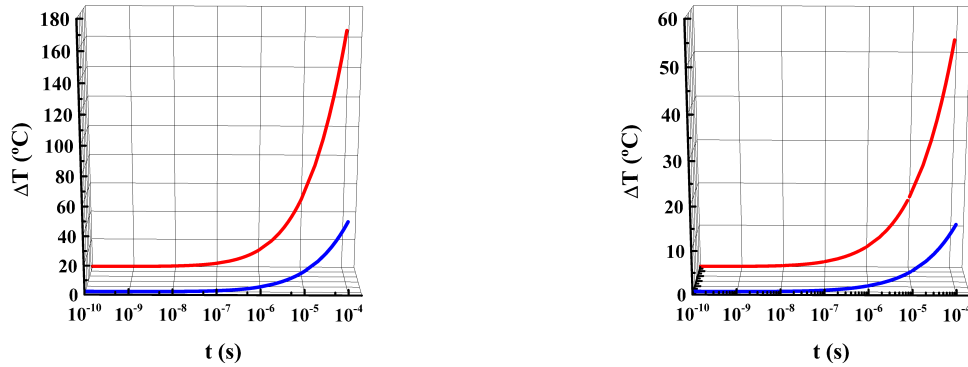
um L_H menor (lembre-se que quando as fontes de recombinação não radiativas foram ativadas L_H foi ligeiramente reduzido devido ao aumento da fração da energia emitida).

Como discutimos na [subseção 2.2.2](#), um aquecimento não homogêneo sobre a superfície da partícula semicondutora leva ao surgimento da força fotoforética. O calor emitido pelas fontes térmicas aumenta a temperatura do semiconductor. A variação da temperatura na superfície onde a radiação incide no semiconductor (ΔT) pode ser calculada de acordo com a teoria desenvolvida por Meyer (MEYER; BARTOLI; KRUEER, 1980):

$$\Delta T(t, \tau) = \frac{I(\rho, z)(1 - R)t}{\rho_s c L_H(t, \tau)} \quad (4.38)$$

onde $I(\rho, z)$ é a intensidade incidente sobre o semiconductor, R , ρ_s , e c são respectivamente a refletividade, a densidade e o calor específico do semiconductor, t é o tempo do pulso ou da interação do laser com o semiconductor e L_H é o comprimento de aquecimento que pode ser devido à recombinação radiativa ou devido à recombinação não radiativa. A [Figura 16](#) ilustra a variação da temperatura sobre a superfície de uma partícula de germânio de raio $2,5 \mu\text{m}$ onde incide um laser com perfil gaussiano ($\lambda = 1064 \text{ nm}$) dado

pela [Equação 2.18](#) para duas posições relativas da partícula ao foco (e, portanto, para dois valores distintos de intensidade). Na [Figura 16a](#) temos a variação de temperatura considerando que a recombinação seja integralmente não radiativa ($\tau = 10^{-8} s$), enquanto que na [Figura 16b](#) temos a variação da temperatura para uma recombinação integralmente radiativa ($\tau = 10^{-6} s$).



(a) Recombinação não radiativa

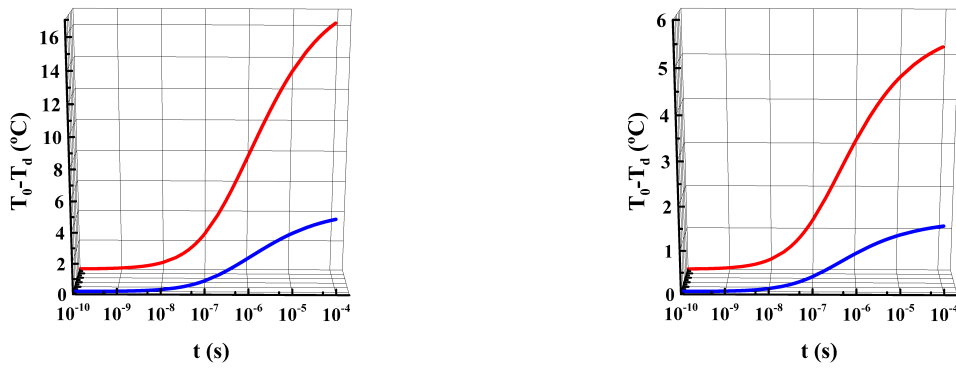
(b) Recombinação radiativa

Figura 16 – Variação da temperatura na superfície do semiconductor (germânio) na posição de incidência da radiação em função do tempo de interação entre o semiconductor e a radiação. **a)** Recombinação integralmente não radiativa, $\tau = 10^{-8} s$. **b)** Recombinação integralmente radiativa, $\tau = 10^{-6} s$. *Linha sólida vermelha:* calculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 2 \mu m$ e $z = 2 \mu m$. *Linha sólida azul:* calculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 4 \mu m$ e $z = 7 \mu m$. *Parâmetros:* $w_0 = 0,36 \mu m$; $P = 10 mW$; $a = 2,5 \mu m$; $R = 0,39$; $\rho_s = 5323 Kg.cm^{-3}$; $c = 320 j.(Kg.K)^{-1}$; parâmetros para o cálculo de L_H são os mesmos utilizados na [Figura 13b](#) (recombinação não radiativa) e na [Figura 15b](#) (recombinação radiativa). **Fonte:** criação do autor.

Para estimarmos a temperatura no lado não iluminado da partícula utilizaremos uma abordagem bastante simples. Vamos considerar que a variação da temperatura sobre toda a partícula semicondutora seja decorrente da difusão térmica, de modo que a temperatura a uma profundidade x do semiconductor ($T_x(t)$) seja dada por:

$$T_x(x, t, \tau) = \Delta T(t, \tau) e^{\frac{-x}{L_H(t)}} \quad (4.39)$$

em particular, podemos obter a temperatura no lado escuro fazendo $x = d = 2a$, onde a é o raio da partícula. A diferença entre a variação de temperatura do lado iluminado ($T_0 = \Delta T$) e da variação de temperatura do lado escuro ($T_d = T_x$) da partícula está ilustrado na [Figura 17a](#) para o caso onde a recombinação é integralmente não radiativa ($\tau = 10^{-8} s$) e na [Figura 17b](#) para o caso onde a recombinação é integralmente radiativa ($\tau = 10^{-6} s$).



(a) Recombinação não radiativa

(b) Recombinação radiativa

Figura 17 – Diferença entre a temperatura na superfície do semicondutor (germânio) na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função do tempo de interação entre o semicondutor e a radiação. **a)** Recombinação integralmente não radiativa, $\tau = 10^{-8}$ s. **b)** Recombinação integralmente radiativa, $\tau = 10^{-6}$ s. *Linha sólida vermelha:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 2 \mu\text{m}$ e $z = 2 \mu\text{m}$. *Linha sólida azul:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 4 \mu\text{m}$ e $z = 7 \mu\text{m}$. *Parâmetros:* os mesmos utilizados na Figura 16. **Fonte:** criação do autor.

Em ambos os casos a diferença de temperatura aumenta com o tempo até ela atingir um platô. Como esperado, a diferença da variação de temperatura é maior no caso onde a recombinação é não radiativa, o que implica que a força fotoforética será maior quando a recombinação é não radiativa.

Note que em ambos os casos ocorre um aumento na temperatura do semicondutor, esse aumento gera uma diferença de temperatura entre as superfícies da partícula (iluminada e a superfície oposta) o que pode provocar o surgimento de um gradiente de temperaturas sobre toda a superfície da partícula. Para uma recombinação integralmente radiativa cuja energia do fóton seja a mesma da energia de gap ($\hbar\omega = E_{gap}$) do semicondutor (de gap direto) o único mecanismo de conversão de energia óptica em energia térmica que existirá no sistema será o devido à absorção dos portadores livres, assim, grande parte da energia absorvida pelo semicondutor será convertida em luz e a variação de temperatura será praticamente desprezível para $\lambda < \lambda_p$.

5 Micropartículas de silício como ferramenta para experimentos de pinças ópticas.

Nesse capítulo apresentaremos os resultados obtidos para a interação das micropartículas esféricas de silício (Si) com o feixe gaussiano de uma pinça óptica linearmente polarizada. As partículas de Si apresentaram dinâmica oscilatória cuja direção de oscilação depende da direção de polarização do feixe do laser. Além disso, podemos observar que, dependendo da altura focal, as partículas podem ser aprisionadas em armadilhas 3D com uma rigidez que permite obter forças na escala de femto-Newton. Baseado na fotoexcitação dos elétrons na camada de valência e no modelo da competição de força desenvolvido previamente pelo nosso grupo (CAMPOS et al., 2018a), nós apresentamos uma nova interpretação para explicar a dinâmica oscilatória observada nas partículas de Si. Os resultados apresentados nesse capítulo foram publicados no periódico “Optics Letters” em março de 2020 com o título: “Silicon microparticles as handles for optical tweezers experiments” (<https://doi.org/10.1364/OL.383139>).

5.1 Materiais e Métodos

As partículas de silício foram obtidas a partir da técnica de ablação a laser em solução aquosa (Apêndice A). Todas as partículas analisadas apresentaram uma boa forma esférica e também possuíam aproximadamente o mesmo tamanho, cerca de $2,5 \mu m$ de raio. A qualidade das partículas fora confirmada com análises de microscopia eletrônica (Figura 18) e análises de energia dispersiva de raio-x (EDX).

As partículas foram suspensas em água deionizada e colocadas dentro do porta-amostras. O porta-amostras consiste em um o-ring de borracha colado sobre uma lamínula de microscópio com espessura de cerca de $150 \mu m$. A pinça óptica consiste de um laser (modelo MIL - III, CNI Lasers) de feixe gaussiano (TEM_{00}) com comprimento de onda de 1064 nm linearmente polarizado, com o feixe possuindo uma cintura de $(3,3 \pm 0,1) \text{ mm}$ na entrada da objetiva e uma cintura de $w_0 = 0,40 \mu m$ no foco (calculado teórico), montada sobre um microscópio invertido Nikon Ti-S com uma objetiva 100x e abertura numérica (N.A.) de 1,3 (imersão a óleo) e pupila de $6,0 \text{ mm}$ de diâmetro. A potência do laser usada foi de aproximadamente 31 mW , medido na entrada da objetiva. A Figura 19 ilustra a montagem óptica utilizada nos experimentos.

A análise dos dados foi realizada utilizando vídeo-microscopia. A vídeo-microscopia foi realizada utilizando uma câmera CMOS Basler (Basler acA1920-155uc) a 40 FPS através do software Stream Pix e analisado com a ajuda do software ImageJ. Adotamos um sistema

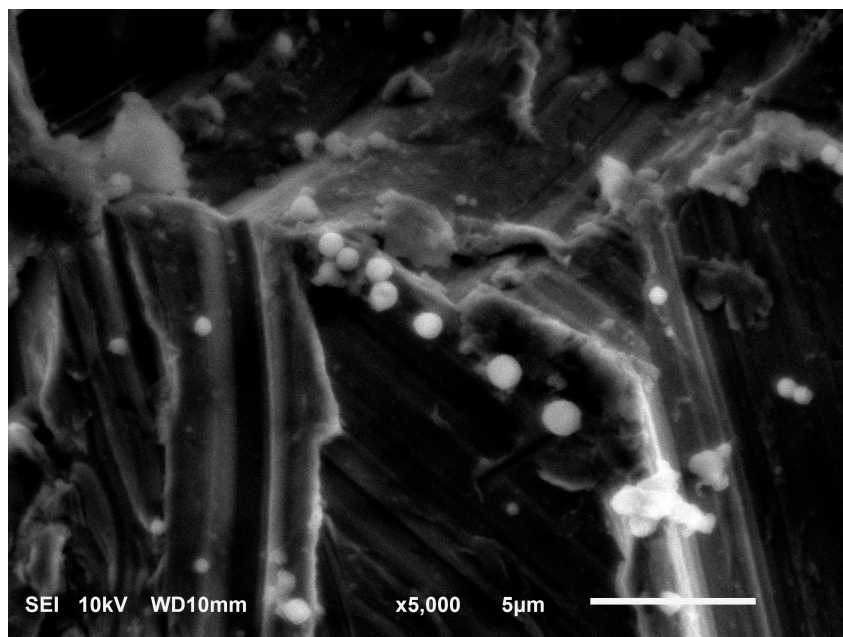


Figura 18 – Microscopia eletrônica de varredura (MEV) de microesferas de silício obtidas pela técnica de ablação a laser em meio líquido (detalhes ver [Apêndice A](#)). As partículas apresentam uma forma esférica bem definida com superfície lisa e homogênea. **Fonte:** criação do autor.

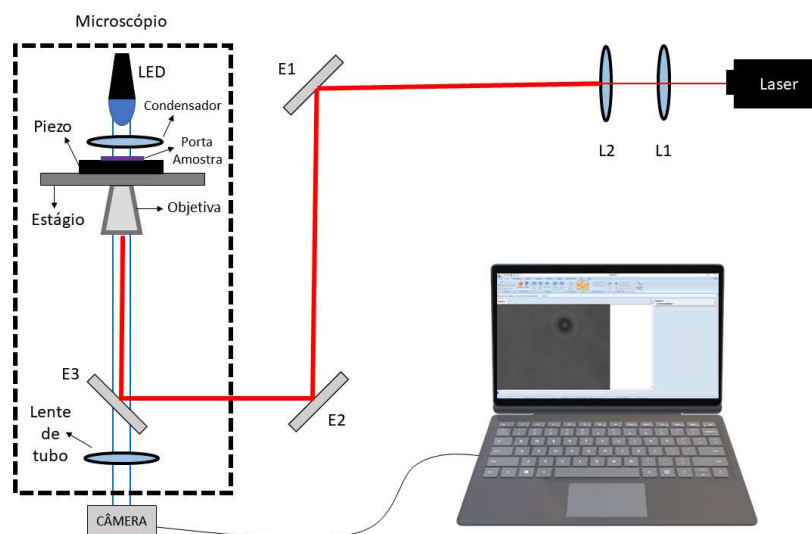


Figura 19 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos. L1, lente biconvexa de distância focal $f = 24,4$ mm. L2, lente biconvexa de distância focal $L2 f = 100$ mm. E1, E2 espelhos planos. E3 espelho dicróico (reflete a luz em 1064 nm). Transparência da objetiva; 0,33. Cintura do feixe gaussiano na entrada da objetiva: $\sigma = (3,3 \pm 0,1)$ mm. Objetiva 100x, $N.A = 1,3$ e imersão a óleo. **Fonte:** criação do autor.

de coordenadas cilíndricas na qual o eixo z está sobre o eixo óptico (portanto paralelo a direção de propagação do feixe de laser), a direção de polarização do feixe está sobre o eixo y e a origem do sistema está sobre o foco do feixe de laser. A posição do centroide da partícula em qualquer instante de tempo é representada por $\vec{r} = \vec{r}(\rho, \varphi, z)$, sendo

$\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ o deslocamento radial relativo ao eixo óptico, $\varphi = \tan^{-1}\left(\frac{y}{x}\right)$, é o ângulo azimutal (medido em relação ao eixo x). Aqui $x = x(t)$ e $y = y(t)$ são respectivamente as coordenadas do centroide da partícula no sistema cartesiano, a [Figura 20b](#) ilustra o sistema de coordenadas utilizado nesse capítulo.

5.2 Resultados e Discussão

Na [Figura 20a](#) mostramos a variação temporal de ρ . Note que podemos distinguir claramente dois regimes de oscilação, de $t = 0$ s à $t = 29,6$ s, a amplitude média das oscilações da partícula de Si é $(14,0 \pm 0,3) \mu m$, com um período médio de $(5,8 \pm 0,2)$ s, além disso, o Si tem uma aproximação máxima ao eixo óptico de $(2,1 \pm 0,2) \mu m$. Já para $t > 29,6$ s, a amplitude, o período e a aproximação máxima ao eixo óptico do Si muda respectivamente para: $(2,3 \pm 0,2) \mu m$, $(1,90 \pm 0,3)$ s, $(4,7 \pm 0,3) \mu m$, com a mudança ocorrendo de forma abrupta. Tal mudança nas propriedades de oscilação refletem a mudança na direção de oscilação das partículas de Si. Independentemente da posição inicial, as partículas sempre tendem a mudar sua direção de oscilação para a direção perpendicular à direção de polarização do feixe do laser. Em outras palavras, atua sobre as partículas de silício uma força com componente na direção do eixo- φ que “gira” a direção de oscilação para $\varphi = 0$.

Podemos obter a projeção radial da velocidade ($v_\rho(t)$) e da aceleração ($a_\rho(t)$) em função do tempo da dinâmica oscilatória da partícula realizando respectivamente derivadas numéricas de 1º e 2º ordem sobre $\rho(t)$. Conhecendo o raio da partícula ($2,5 \mu m$) e a densidade do Silício ($2,33 \text{ g/cm}^3$), podemos obter a componente radial da força resultante (F_{res}) que atua sobre a partícula durante a oscilação.

Como pode ser observado na [Figura 20c](#), a componente $\hat{\rho}$ da força resultante sobre o Si ($\varphi = \frac{\pi}{2}$), tende a zero para $\rho > 12 \mu m$, de $12 \mu m > \rho > \rho_c$ ela é essencialmente negativa, atuando como uma força atrativa que leva a partícula para a região focal do feixe do laser, para $\rho < \rho_c$ a força resultante muda abruptamente de sinal atuando como uma força repulsiva que expulsa a partícula da região focal. As perturbações sobre a força resultante podem ser vistas como a ação da força de viscosidade do meio e da força randômica que surge do movimento browniano da partícula. A [Figura 20d](#) mostra o comportamento da força resultante quando $\varphi = 0$.

Temos interpretado a mudança na amplitude da oscilação mostrada na [Figura 20a](#) como uma característica relacionada à assimetria imposta pela polarização linear do feixe da pinça óptica: as partículas oscilam com maior amplitude na direção paralela à polarização do laser. Além disso, existe uma componente azimutal da força de gradiente, predito pela teoria de espalhamento Mie (ondas planas) (DUTRA et al., 2007) que tende a alinhar a direção de oscilação da partícula à direção perpendicular da polarização do

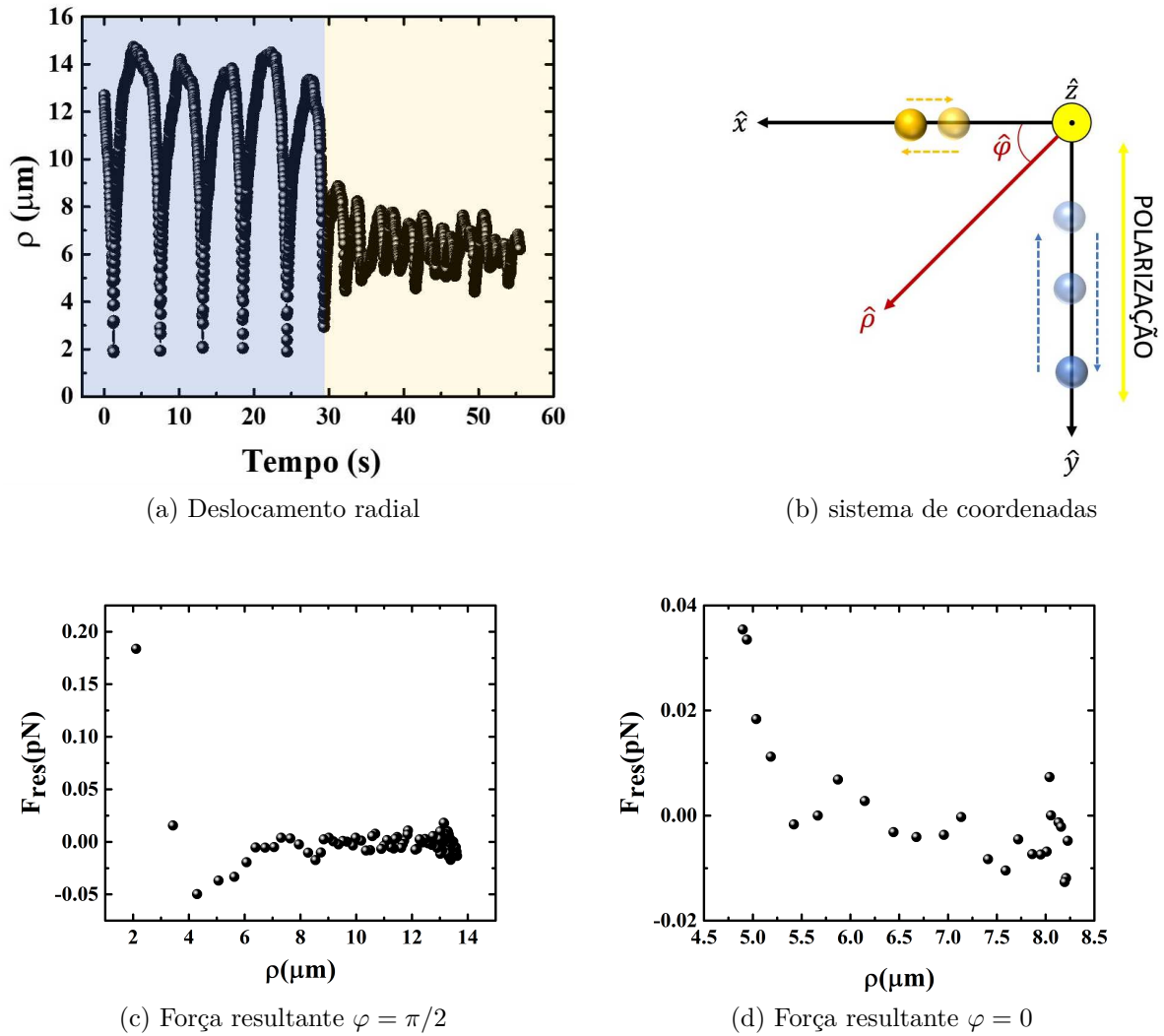
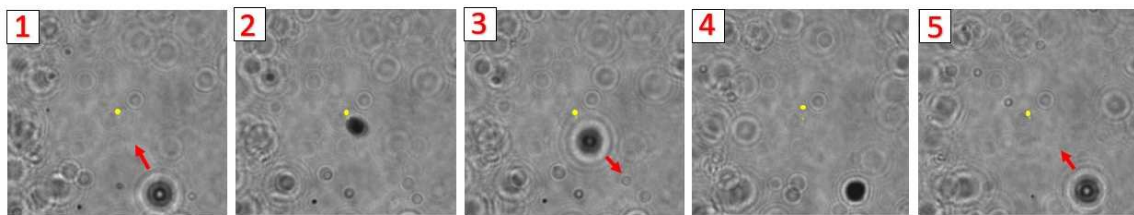


Figura 20 – **a)** Posição radial de uma partícula de silício de $2.5 \mu\text{m}$ de raio em função do tempo. Em *azul*: deslocamentos em $\varphi = \pi/2$, em *laranja*: deslocamento em $\varphi = 0$. **b)** Esquema representando o sistema de coordenadas utilizado nesse trabalho. **c)** Força resultante sobre a partícula de silício para oscilações em $\varphi = \pi/2$. **d)** Força resultante sobre a partícula de silício para oscilações em $\varphi = 0$. **Fonte:** adaptado da referência (MOURA et al., 2020).

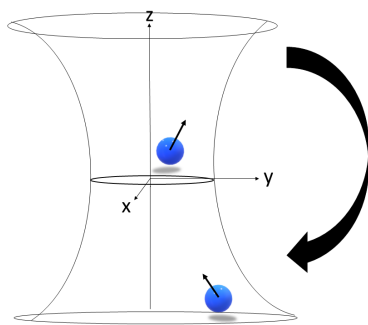
laser. A teoria também prediz que a componente radial da força de gradiente deva ser maior na direção de polarização do laser, o que pode explicar a diminuição da amplitude de oscilação e da força resultante quando a partícula oscila na direção perpendicular à direção de polarização do feixe como ilustrada na [Figura 20c](#) e na [Figura 20d](#).

A [Figura 21a](#) mostra os padrões de difração observados durante uma oscilação para $\varphi \cong \pi/2$. Note que também ocorre oscilações na direção de propagação do feixe, mais do que isso, a atração ocorre com a partícula abaixo do plano focal ($z \cong -17 \mu\text{m}$, posição inicial em que a partícula foi colocada para interagir com o feixe da pinça óptica) e a repulsão ocorre com a partícula acima do plano focal, conforme está ilustrado na [Figura 21b](#). Com outras palavras, deixe ρ_{min} e ρ_{max} designar respectivamente a aproximação máxima e o afastamento máximo da partícula ao eixo focal, durante a atração, a partícula sai de

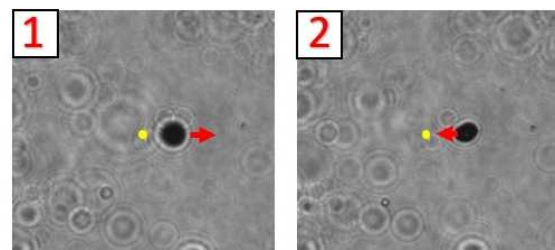
ρ_{max} até próximo de ρ_{min} abaixo do plano focal (Figura 21a-1), enquanto que em ρ_{min} ela é focalizada e “jogada” para cima do plano focal (Figura 21a-2). Todo o movimento de repulsão ocorre acima do plano focal (repare na mudança da difração no centro da partícula, ela mudou de clara para escura) onde a partícula vai de ρ_{min} até ρ_{max} (Figura 21a-3), em ρ_{max} a partícula volta para baixo do plano focal (Figura 21a-4) e o movimento de atração recomeça originando uma nova oscilação (Figura 21a-5). Na Figura 21c, temos o padrão de difração para uma oscilação em $\varphi \cong 0$. Note que as oscilações agora ocorrem próximas ao plano focal.



(a) Quadros oscilação $\varphi \cong \pi/2$



(b) Oscilações 3D



(c) Quadros oscilação $\varphi \cong 0$

Figura 21 – (a) Sucessivos quadros de vídeo mostrando a oscilação da partícula de Si paralela a direção de polarização do laser ($\varphi = \pi/2$). Os quadros 1 e 5 mostram os padrões de difração para uma microesfera abaixo do plano focal. Os quadros 2 e 4 mostram o padrão de difração de uma partícula bem próxima ao plano focal. O quadro 3 mostra o padrão de difração para uma microesfera acima do plano focal. O Ponto amarelo está sobre o eixo óptico e a seta vermelha indica a direção de movimento da partícula. (b) Esquema representando a dinâmica de oscilação em relação ao eixo z . (c) quadros sucessivos do vídeo mostrando a oscilação da partícula de Si perpendicular a direção de polarização do laser ($\varphi = 0$). Os quadros 1 e 2 mostram o padrão de difração de uma partícula bem próxima ao plano focal. O Ponto amarelo está sobre o eixo óptico e a seta vermelha indica a direção de movimento da partícula. **Fonte:** criação do autor.

O movimento de atração é fortemente dominado pela força de gradiente, que possui componentes transversa (plano xy) e axial (eixo z). Mesmo assim, quando as partículas se aproximam suficientemente do foco elas são repelidas, afastando-se do eixo óptico acima do plano focal ($z > 0$). Esse fenômeno ocorre porque uma força resultante repulsiva começa a dominar a dinâmica. Tal força repulsiva tem sido interpretada em trabalhos

anteriores (CAMPOS et al., 2018a; CAMPOS et al., 2019) como composta de pelo menos duas componentes:

1. Uma força radiométrica térmica, também conhecida como força fotoforética, que surge da assimetria da transferência do calor da partícula para o meio (água no nosso caso) conforme discutimos na [subseção 2.2.2](#).
2. Uma força de espalhamento, que surge da reflexão e absorção do laser na superfície da partícula, conforme discutimos na [subseção 2.2.1](#).

Como discutimos na [seção 4.4](#), o aquecimento dos semicondutores é consequência direta da geração de portadores de carga devido à absorção óptica. Dependendo da estrutura de bandas do semicondutor apenas uma fração da energia absorvida é convertida em calor, diferentemente dos metais onde toda a energia óptica absorvida é convertida em calor ¹. Além disso, o coeficiente de absorção (em 1064 nm) dos metais é cerca de uma (ou mais) ordens de grandeza maior que o coeficiente de absorção dos principais semicondutores como Germânio ($\alpha_{Ge} = 1,7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$) (NUNLEY et al., 2016b) e Silício ($\alpha_{Si} = 10,6 \text{ cm}^{-1}$) (SCHINKE et al., 2015) e da mesma ordem do Seleneto de Bismuto ($\alpha_{Bi_2Se_3} = 1,4 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$) (FANG et al., 2020b). Portanto, nós esperamos que a componente fotoforética domine a força repulsiva quando as partículas absorvem consideravelmente a luz como nos metais e nos semicondutores quando a recombinação é predominantemente não radiativa ou a energia de gap é muito menor que a energia do fóton do laser de modo a maximizar a conversão de energia óptica em energia térmica.

No primeiro trabalho desenvolvido pelo nosso grupo com as partículas de isolante topológico Bi_2Te_3 , que possui energia de gap à 300 K de 0,22 eV. (MARTINEZ et al., 2017), uma grande fração da energia óptica absorvida era diretamente convertida em calor na rede cristalina pela termalização dos portadores quentes gerados (cerca de 80 % como previsto pela [Equação 4.29](#)), isso junto com o fato de o coeficiente de absorção ser compatível com os dos metais, motivou-nos a formular um modelo efetivo que considerava que a força repulsiva pudesse ser dominada pela força fotoforética. No caso do germânio a fração da energia termalizada pelos portadores livres é cerca de 30 % ($E_{gap} = 0,80 \text{ eV}$) e no silício é cerca de 3 % ($E_{gap} = 1,11 \text{ eV}$). Somando a isso o fato que os coeficientes de absorção do germânio e principalmente do silício são menores que o do seleneto de bismuto, questiona-mo-nos se realmente a força fotoforética era a força dominante na resultante da força repulsiva.

¹ Nos metais o único mecanismo de absorção presente é a absorção pelos elétrons livres. Portanto, todo fóton absorvido excita o elétron livre para um estado de maior energia, esse elétron decai rapidamente ($\tau = 10^{-12} \text{ s}$) para a posição de equilíbrio térmico na banda de condução do metal e toda a energia de termalização é convertida em calor no metal.

Outro aspecto da geração de portadores é a modificação das propriedades ópticas dos semicondutores, conforme vimos na [seção 4.3](#). De fato, verificamos que em condições típicas às encontradas em pinças ópticas a geração de portadores pode mudar consideravelmente o índice de refração do semiconductor conforme ilustramos na [Figura 9](#). No caso de uma pinça óptica típica, a frequência da radiação é fixada ($\omega_{1064} \simeq 1,76 \times 10^{15} \text{ rad/s}$) enquanto que a frequência de plasma ω_p do semiconductor é proporcional à densidade de portadores ([Equação 4.21](#)), por sua vez, a densidade de portadores é proporcional à intensidade da radiação ([Equação 3.19](#)). Na periferia do feixe, longe do eixo óptico, o semiconductor se comporta como um dielétrico convencional, sendo atraído para a região de maior intensidade do laser, ou seja, a região focal, devido à força de gradiente. Dado o perfil gaussiano do feixe, à medida que a partícula se aproxima do eixo óptico o número de fótons por segundo atingindo-a aumenta fortemente, conseqüentemente a taxa de geração de portadores ([Equação 3.17](#)) aumenta proporcionalmente. Uma vez que a intensidade do feixe depende da distância relativa entre a partícula e o foco, o índice de refração também irá depender da posição relativa entre a partícula e o foco. Assumindo que a geração de portadores seja suficiente para que o índice de refração da partícula fique menor que o do meio a partir de uma determinada posição crítica ρ_c (veremos no [Capítulo 6](#) em detalhes como esse processo ocorre), a natureza da força de gradiente será função da posição relativa da partícula, uma vez que de acordo com as equações [Equação 2.17](#) e [Equação 2.3](#), a força de gradiente é negativa (atrativa) para $n_m < n_p$ e positiva (repulsiva) para $n_m > n_p$. Em outras palavras, a força de gradiente será atrativa para posições localizadas a uma distância maior que ρ_c e repulsiva para distâncias menores do que ρ_c . Deve ser enfatizado que, para que a ressonância ocorra em $\lambda = 1064 \text{ nm}$, é necessário ² que $N \sim 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, um valor compatível com os encontrados tipicamente em semicondutores fotoexcitados (GALLANT; DRIEL, 1982; GAMALY; RODE, 2014; SOKOLOWSKI-TINTEN; LINDE, 2000).

Esses três efeitos: força fotoforética, forças de espalhamento e inversão da força de gradiente, podem contribuir para a força repulsiva. É muito complicado comparar a magnitude dos três efeitos, uma vez que esse estudo envolveria uma medida precisa da dinâmica local do gradiente de temperatura ao redor da partícula além da medida da mudança da densidade de portadores de carga na partícula devido a interação com o laser durante a oscilação. Assim, vamos construir um modelo efetivo para justificar as oscilações baseado no modelo de competição de forças e incluindo o efeito da inversão da força de gradiente. No [Capítulo 6](#) apresentaremos uma análise mais robusta sobre o mecanismo de inversão da força de gradiente.

Seja \vec{F}_o a resultante de todas as forças que são geradas direta ou indiretamente

² O valor exato da densidade de portadores necessária para que ocorra a ressonância de plasma irá variar para cada semiconductor, uma vez que a frequência de plasma depende da massa efetiva dos portadores que é um parâmetro intrínseco de cada semiconductor.

pela interação da radiação com a partícula. Deixe \vec{F}_{st} ser a resultante da força de atrito viscoso do meio sobre a partícula (força de Stokes). Então, a força resultante (\vec{F}_{res}) sobre a partícula é:

$$\vec{F}_{res} = \vec{F}_o + \vec{F}_{st} \quad (5.1)$$

A componente $\hat{\rho}$ de \vec{F}_{res} ($F_{res\rho} = \frac{4}{3}\pi r^3 a_\rho$) e de \vec{F}_{st} ($F_{st\rho} = -6\pi r\eta v_\rho$), podem ser obtidas numericamente a partir das derivadas parciais de $\rho(t)$ conhecendo-se a densidade da partícula (d), o raio da partícula (r) e a viscosidade do fluido (η). Aqui v_ρ e a_ρ são a projeção na direção $\hat{\rho}$ da velocidade e da aceleração da partícula obtidas pela derivada numérica de 1º e 2º ordem de $\rho(t)$, respectivamente. Seja $F_{o\rho}$ a componente $\hat{\rho}$ de \vec{F}_o , assim podemos obter $F_{o\rho}$ diretamente da [Equação 5.1](#).

$$F_{o\rho} = F_{res\rho} - F_{st\rho} \quad (5.2)$$

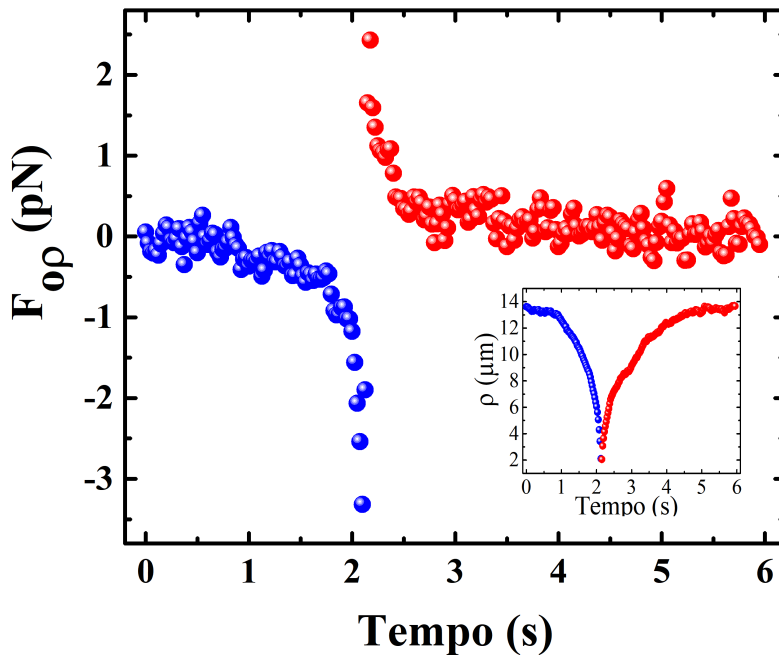


Figura 22 – Variação da força da força óptica resultante durante o tempo de uma oscilação. **Gráfico inserido:** Deslocamento radial em função do tempo da oscilação. Em *azul* o regime atrativo. Em *vermelho*: regime repulsivo, $t = 0$ s indica o início da oscilação. **Fonte:** criação do autor.

A [Figura 22](#) ilustra a variação temporal de $F_{o\rho}$ durante o tempo de uma oscilação. Note que inicialmente $F_{o\rho}$ atua como uma força atrativa levando a partícula para a região focal, próximo de ρ_c (veja o gráfico inserido da [Figura 22](#)), $F_{o\rho}$ muda abruptamente de sinal, repelindo a partícula para longe da região focal, onde $F_{o\rho}$ volta ser atrativa (não mostrado

na figura), repetindo o ciclo. Nosso grupo tem interpretado em outros trabalhos que \vec{F}_o é a resultante entre duas ou mais forças ópticas (força fotoforética e força de espalhamento como forças repulsivas e a força de gradiente como força atrativa), cuja força dominante depende da distância em relação ao eixo óptico. Para auxiliar na modelagem temos também dividido o movimento em dois regimes: regime atrativo (em azul na [Figura 22](#) dominado pela força atrativa) e o regime repulsivo (em vermelho na [Figura 22](#) dominado pelas forças repulsivas). Pela primeira vez, vamos incluir a possibilidade da força de gradiente atuar como uma força repulsiva através das mudanças das propriedades ópticas do semiconductor devido à geração de portadores de carga.

Deixe \vec{F}_r ser a somatória da força de espalhamento e da força fotoforética (que passaremos a chamar simplesmente de força radiométrica) e \vec{F}_g ser a força de gradiente, então:

$$\vec{F}_o = \vec{F}_r + \vec{F}_g \quad (5.3)$$

Estamos interessados em desenvolver um modelo efetivo que consiga descrever as oscilações de forma simples. Considerando um sistema de coordenadas cilíndricas ([Figura 20b](#)) com o foco em $(\rho, z) = (0, 0)$, o perfil do feixe gaussiano pode ser descrito como:

$$I(\rho, z) = I_0 \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (5.4)$$

onde I_0 é a intensidade máxima em $(\rho, z) = (0, 0)$, $w(z)$ é a cintura do feixe na altura z a partir do plano focal ($w(0) = w_0$) descrito por:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{\pi w_0^2 n_m}\right)^2} \quad (5.5)$$

Vamos considerar que a força radiométrica seja proporcional a intensidade do feixe e que apresente a simetria azimutal encontrada no perfil de intensidade, de modo que a força radiométrica dependa apenas da distância entre o centroide da partícula ao eixo óptico (ρ) e do centroide da partícula ao plano focal (z). A força radiométrica pode ser escrita como:

$$\vec{F}_r = (f_{r\rho}\hat{\rho} + f_{rz}\hat{z}) \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (5.6)$$

onde F_{ri} contabiliza a magnitude máxima da i -ésima componente da força radiométrica em $(\rho, z) = (0, 0)$.

A força de gradiente pode ser obtida através do gradiente da intensidade do feixe, assim:

$$\vec{F}_g = F_{g\rho}\hat{\rho} + F_{gz}\hat{z} + F_{g\varphi}\hat{\varphi} \quad (5.7)$$

com:

$$F_{g\rho} = \frac{-2f_{g\rho}(\rho - \rho_c) \exp 1/2}{w(z)(1 + \eta_\rho)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) (1 - \eta_\rho \cos 2\varphi) \quad (5.8)$$

$$F_{gz} = \frac{-2ef_{gz}(\rho - \rho_c)^3 z}{\|\rho - \rho_c\|w(z)^2(1 + \eta_z)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) (1 - \eta_z \cos 2\varphi) \quad (5.9)$$

$$F_{g\varphi} = \frac{-2f_{g\varphi}(\rho - \rho_c) \exp 1/2}{w(z)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \sin 2\varphi \quad (5.10)$$

onde f_{gi} , ($i = \rho, z, \varphi$) é magnitude máxima da i -ésima componente de \vec{F}_g , e é o número de Euler e η_i é um parâmetro que contabiliza o peso da assimetria imposta pela polarização linear do feixe, igualmente a dependência com o ângulo azimutal na força de gradiente decorre da assimetria conforme prevista por Neto (DUTRA et al., 2007). Nós também introduzimos o parâmetro ρ_c (posição crítica) para contabilizar a possível inversão da força de gradiente nessa posição conforme ilustrado no gráfico inserido da [Figura 22](#).

Na [Figura 23](#) mostramos os resultados típicos da componente radial da força óptica resultante como função do deslocamento radial para o regime atrativo (curva (b) esfera azul) e o regime repulsivo (curva (a) esfera vermelha). Nós mostramos aqui o resultado típico correspondente às maiores amplitudes de oscilação ($\varphi = \pi/2$). O resultado obtido para amplitudes menores ($\varphi = 0$) é qualitativamente semelhante, mas muito mais ruidoso. Nós também mostramos na [Figura 23](#) os ajustes realizados usando a [Equação 5.8](#). Observe que nosso modelo se adapta bem aos dados experimentais, retornando valores para as amplitudes de força (acopladas ao parâmetro de assimetria e a dependência do ângulo azimutal, que vamos denominar simplesmente de $f_{g\rho}$ e $f_{r\rho}$), que é bem reproduzível para diferentes ciclos de oscilação. Nossa configuração de pinça óptica não nos permite obter os valores da componente \hat{z} da dinâmica oscilatória da partícula. Entretanto, durante a oscilação a cintura da partícula varia consideravelmente, para corrigir isso vamos aproximar o deslocamento ao longo de z ao deslocamento radial através da relação $z = \rho - z_e$ (onde z_e é um parâmetro que informa a distância radial onde $z = 0$). Assim, podemos rescrever a cintura do feixe gaussiano como:

$$w(z) = w(\rho - z_e) = w_0 \sqrt{1 + \left[\frac{(\rho - z_e)\lambda}{\pi w_0^2 n_m}\right]^2} \quad (5.11)$$

Usando a [Equação 5.11](#) na [Equação 5.8](#) obtemos os seguintes parâmetros: $w_0 = (0,60 \pm 0,52) \mu m$ o valor teórico é de $w_{0teo} = 0,40 \mu m$, $f_{g\rho} = (30,7 \pm 3,0) \text{ pN}$ e $f_{r\rho} = (9,9 \pm 1,8) \text{ pN}$, para o regime repulsivo. $w_0 = (2,1 \pm 0,1) \mu m$, $f_{g\rho} = (46,9 \pm 1,2) \text{ pN}$ e $f_{r\rho} = (11,6 \pm 0,9) \text{ pN}$, para o regime atrativo.

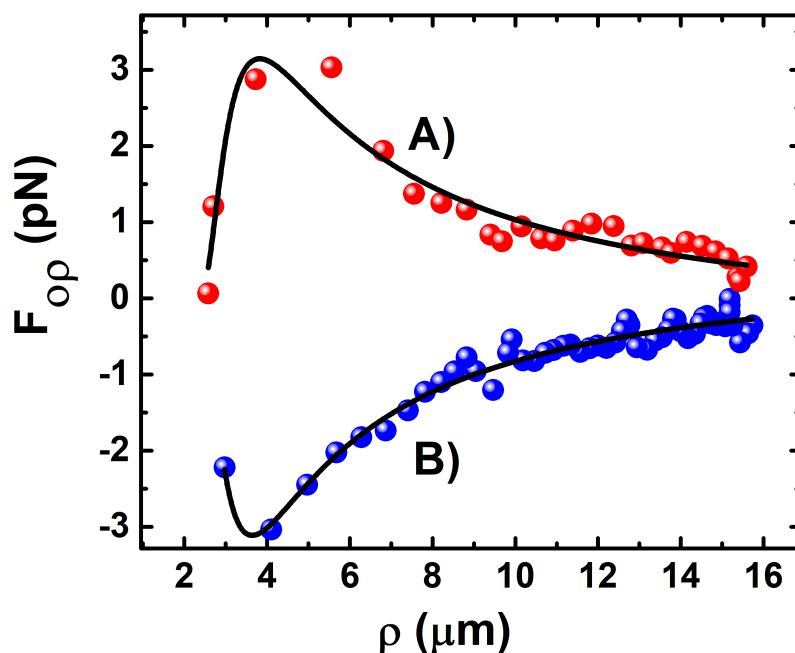


Figura 23 – **a)** *Esfera vermelha*: componente radial da força óptica sobre uma partícula de Si de $2,5 \mu\text{m}$ de raio em função da distância radial para o regime repulsivo. **b)** *Esfera azul*: componente radial da força óptica sobre uma partícula de Si de $2,5 \mu\text{m}$ de raio em função da distância radial para o regime atrativo. *Linha sólida preta*: ajuste feito pela [Equação 5.8](#). **Parâmetros obtidos**: *Regime repulsivo*: $w_0 = (0,60 \pm 0,52) \mu\text{m}$; $f_{g\rho} = (30,7 \pm 3,0) \text{ pN}$; $f_{r\rho} = (9,9 \pm 1,8) \text{ pN}$; $\rho_c = (3,6 \pm 0,3) \mu\text{m}$. *Regime atrativo*: $w_0 = (2,1 \pm 0,1) \mu\text{m}$, $f_{g\rho} = (46,9 \pm 1,2) \text{ pN}$ e $f_{r\rho} = (11,6 \pm 0,9) \text{ pN}$; $\rho_c \simeq 0$. **Fonte**: extraído da referência (MOURA et al., 2020)

Nosso ajuste também nos permite obter ρ_c , que é aproximadamente zero para o regime atrativo e $\rho_c = (3,6 \pm 0,3) \mu\text{m}$ para o regime repulsivo. Essa aparente incoerência é fácil de ser explicada e se origina do fato de estarmos dividindo o movimento em dois regimes e de estarmos aproximando todo o movimento ao longo do eixo z . Uma vez que a força radiométrica é sempre positiva (como esperado) durante todo o regime atrativo a força de gradiente precisa ser negativa, ou do contrário, teríamos uma força resultante positiva em um regime inteiramente atrativo. Com outras palavras, a inversão da força de gradiente marca a transição do regime atrativo para o regime repulsivo no qual ela pode, eventualmente, voltar a ser negativa sem que a força resultante seja, uma vez que a força radiométrica é sempre positiva.

Na [Figura 24](#), mostramos alguns resultados que caracterizam a dinâmica da oscilação das partículas de Si. Na [Figura 24a](#), mostramos como o período e a amplitude das oscilações variam em função da altura focal. A altura focal é medida em relação à lamínula e cada ponto representa a média sobre várias oscilações, com uma potência de 31 mW medida na entrada da objetiva. Aumentando a altura do foco do laser no microscópio observamos que

as partículas de Si permaneciam oscilando. Entretanto, a amplitude e o período dependem da altura focal, enquanto que a amplitude aumenta lentamente com a altura focal, o período aumenta rapidamente, ou seja, a dinâmica é muito mais lenta para grandes valores da altura focal. Esse resultado está intimamente associado à mudança da distribuição da intensidade da luz na posição da partícula, que além de possuir uma cintura maior os efeitos de aberração esférica se tornam mais relevantes.

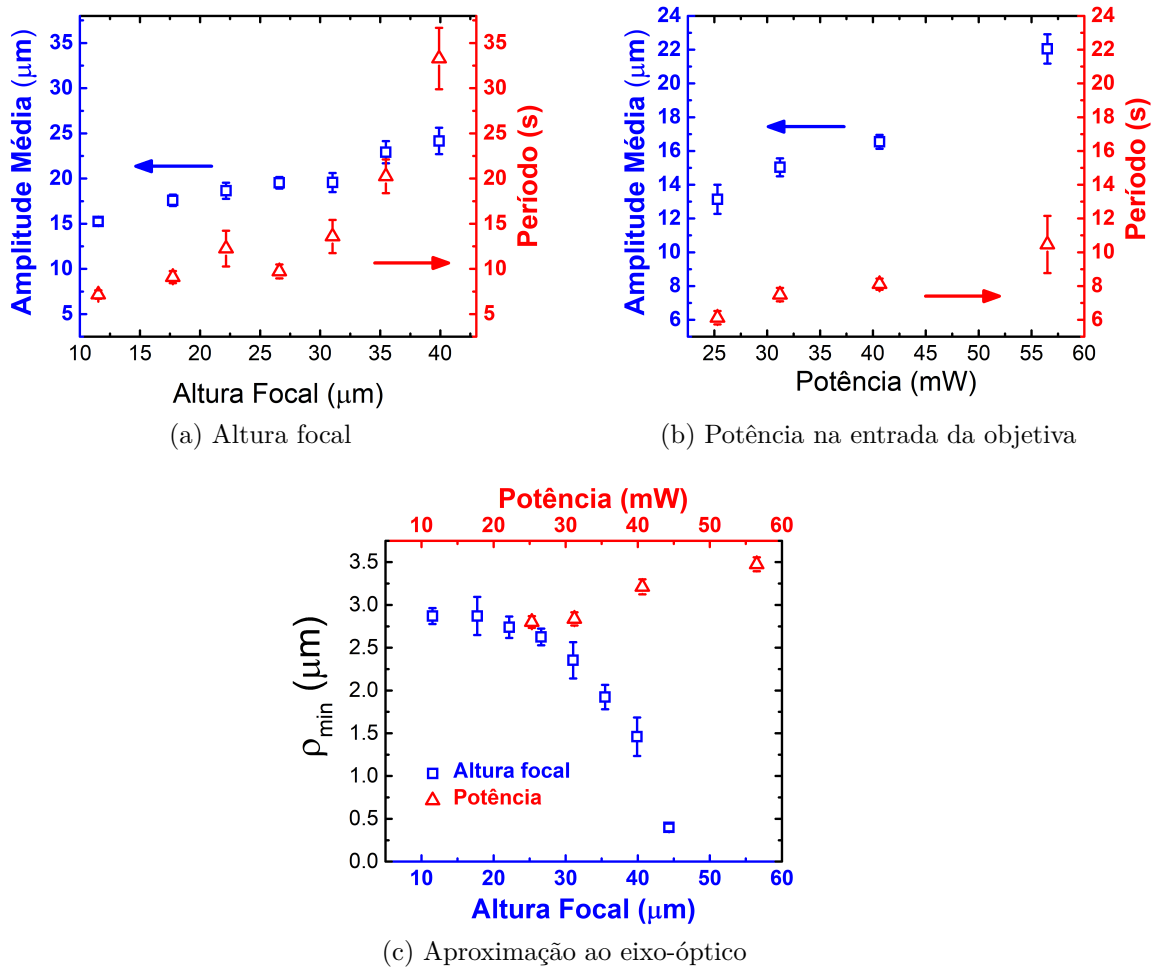


Figura 24 – Caracterização dos parâmetros da dinâmica das partículas de silício em pinças ópticas: **a)** amplitude e período médio como função da altura do foco, **b)** potência do laser. **c)** Aproximação máxima das partículas ao foco como função dos mesmos parâmetros. *Fonte:* extraído da referência (MOURA et al., 2020).

A Figura 24b ilustra a variação da amplitude e do período de oscilação em função da potência do laser medida na entrada da objetiva. Observe que ambas as quantidades aumentam com a potência do laser, resultado semelhante ao encontrado tanto para o germânio (CAMPOS et al., 2019) como para o seleneto de bismuto e telureto de bismuto (CAMPOS et al., 2018a), mas, é o oposto ao encontrado para as partículas de poliestireno com revestimento óxido de ferro (ZHONG; LIU; JI, 2019). Esse resultado tem dupla

importância: permite que as oscilações sejam moduladas com a mudança na potência do laser ampliando a gama de aplicações para as oscilações e ao divergir dos resultados obtidos para as partículas com revestimento magnético, sugere que a física por trás das oscilações seja distinta, nos fazendo questionar se a inversão da força de gradiente, proposta aqui, também não desempenharia um papel relevante nas oscilações do Ge, Bi_2Se_3 e Bi_2Te_3 .

A [Figura 24c](#) ilustra como ρ_{min} (aproximação máxima ao eixo focal) varia com a potência do laser e com a altura focal. Note que ρ_{min} aumenta com a potência do laser, um resultado que é intuitivo, uma vez que as componentes da força resultante repulsiva são maiores com o aumento da potência do laser. Por outro lado, ρ_{min} diminui com o aumento da altura focal. Esse resultado pode ser interpretado de maneira semelhante, uma vez que a aberração esférica em alturas maiores degrada o foco, estendendo espacialmente a distribuição de intensidade do laser em toda a região focal (ROCHA, 2009).

Um resultado interessante obtido aqui é que a partir de uma certa altura crítica ($z_c \geq 43 \mu m$), as partículas de Si deixam de oscilar e são aprisionadas em armadilhas 3D. Diferente das armadilhas convencionais para partículas dielétricas, o aprisionamento das partículas de Si apresentam duas características muito interessantes:

- A posição de equilíbrio das partículas aprisionadas não está sobre o eixo óptico. O último ponto na [Figura 24c](#) ilustra essa situação: para $z > z_c$ as partículas de Si são aprisionadas a uma distância de $\rho_{min} = (0,40 \pm 0,05) \mu m$, a partir do eixo óptico abaixo do plano focal. Tal resultado indica fortemente que uma força repulsiva não negligenciável ainda desempenha um papel importante aqui, evitando que a partícula se alinhe com o eixo óptico. Como a força do gradiente é sempre atrativa nesse caso, essa força repulsiva só pode ser uma combinação das componentes fotoforética e de espalhamento.
- Nós medimos a rigidez da armadilha do aprisionamento κ , das partículas de Si, na pinça óptica analisando as flutuações da sua posição no potencial óptico (WONG; HALVORSEN, 2006). Obtivemos que $\kappa = (3,5 \pm 0,7) \times 10^{-3} pN/\mu m$, para as partículas de Si com $2,5 \mu m$ de raio com a potência do laser de 31 mW (medida na entrada da objetiva) com a altura focal entre 43 a $60 \mu m$ (o valor de κ varia muito pouco à medida que aumentamos a altura focal para valores acima de $43 \mu m$). O κ que obtivemos é cerca de 3 ordens de grandeza menor que as usualmente obtidas para partículas dielétricas em condições similares (ROCHA, 2009). De fato, esse resultado é muito interessante uma vez que nos permite medir forças da ordem femto-Newton sobre as partículas com precisão. Portanto, as partículas de Si podem ser usadas como ferramentas para pinça óptica que pretendem trabalhar com precisão na faixa de força femto-Newton, um recurso muito difícil de ser alcançado com partículas dielétricas convencionais nessa escala de tamanho.

5.3 Conclusão

Em resumo, nós mostramos e caracterizamos a dinâmica oscilatória apresentada pelas partículas de silício em uma pinça óptica com feixe gaussiano. Assim como observado para as partículas de germânio, as partículas de silício apresentaram uma dependência com a direção de polarização do feixe. Para modelar a força óptica resultante estendemos o modelo de competição de forças, desenvolvido anteriormente pelo nosso grupo, para incluir os efeitos da geração de portadores fotoinduzidos. A dinâmica oscilatória observada nas partículas de silício amplia o leque de uso das pinças ópticas, permitindo que sejam aplicadas forças oscilatórias nos sistemas de interesse. Além disso, também temos mostrado que as partículas de silício também podem ser empregadas para estender o uso de pinças ópticas convencionais para trabalhar com precisão na faixa de força femto-Newton, sem a necessidade de realizar qualquer modificação nas configurações experimentais atuais.

6 Generalização do modelo de Ashkin das forças ópticas para incluir o efeito da geração dos portadores de carga nas partículas semicondutoras no regime de Rayleigh

Nosso objetivo neste capítulo é discutir um pouco da física que ocorre nos bastidores da manipulação óptica das partículas semicondutoras através das pinças ópticas. Para isso, estenderemos o modelo de Ashkin (ASHKIN et al., 1986) para incluirmos o “efeito colateral” da geração de portadores sobre as partículas semicondutoras. Por uma questão de simplicidade iremos trabalhar no regime de Rayleigh, cujas equações são analíticas e facilmente manipuláveis. O modelo desenvolvido nesse capítulo é válido para qualquer partícula semicondutora que se adéque ao regime de Rayleigh e cujo mecanismo dominante na geração de portadores seja via absorção de 1 fóton banda a banda ($\alpha = \alpha_1$).

6.1 Introdução

Conforme vimos no [Capítulo 4](#) a óptica dos semicondutores é fortemente influenciada pela densidade de portadores de cargas, que pode ser modificada pela excitação térmica ou pela dopagem da rede cristalina dos semicondutores através da adição de impurezas químicas elementares. Além disso, outra forma de variar a densidade de portadores de um semicondutor é através da absorção óptica, que ocorre quando o semicondutor interage com a radiação eletromagnética.

A excitação do elétron ocorre quando a energia do fóton é suficiente para fazer com que o elétron “salte” de um estado na banda de valência para um estado na banda de condução. Essa transição pode ocorrer de forma direta, na qual o elétron não muda seu vetor de onda (também chamadas de transições verticais) ou podem ocorrer de forma indireta, onde o elétron muda seu vetor de onda, o que pela conservação de momento linear requer a absorção (ou emissão) de um fônon, além da absorção de um fóton. Assim, se o fóton possuir energia maior que a energia de Gap do semicondutor existe a probabilidade de o fóton ser absorvido criando um par elétron-buraco (e-b) aumentando a densidade de portadores do semicondutor.

Diferentemente de isolantes e condutores, os materiais semicondutores podem variar consideravelmente sua densidade de portadores. Por isso, ao interagir com o feixe de laser de uma pinça óptica ($\lambda = 1064$ nm, $E_{fóton} = 1,15$ eV.), é esperado que os

materiais semicondutores possam ter suas densidades de portadores modificadas devido a absorção dos fótons do laser. Conforme mostramos na [subseção 3.2.2.1](#) existem basicamente três mecanismos de absorção óptica nos semicondutores (α_1 , α_2 e α_{PL}) cujo mecanismo dominante depende da estrutura de banda do semiconductor, existência de impurezas na rede cristalina e das propriedades da radiação (como comprimento de onda e intensidade). Semicondutores que apresentam gap direto menor que a energia do fóton, terão como mecanismo dominante α_1 , é o caso por exemplo do germânio (em relação a $\lambda = 1064$ nm), cuja energia de gap em 300 K é $E_{gap} = 0.80$ eV. (MEYER; KRUER; BARTOLI, 1980). Por outro lado, semicondutores de gap indireto como o silício com $E_{gap} = 1.11$ eV (SZE; IRVIN, 1968) ou de gap direto maior que a energia do fóton como o arsenieto de gálio $E_{gap} = 1.42$ eV. (BLAKEMORE, 1982), terão como mecanismo de absorção dominante os processos virtuais de absorção α_2 (em $\lambda = 1064$ nm) em feixes fortemente focalizados como os das pinças ópticas (GAMALY; RODE, 2014).

Note que o laser de uma pinça óptica desempenha um duplo papel sobre os semicondutores, ele é elemento da armadilha óptica que atrai a partícula para a região focal através da força de gradiente e atua como agente excitador do material induzindo a geração de portadores de carga conforme ilustrado na [Figura 25](#).

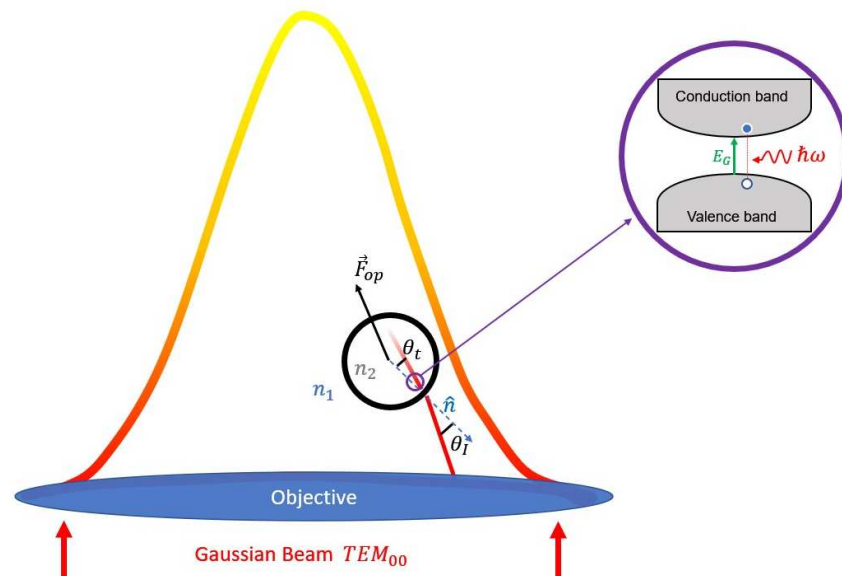


Figura 25 – Esquema ilustrando o duplo papel desempenhado pelo laser: construção da armadilha óptica que conduz as partículas semiconductoras para a região focal e agente excitador do material induzindo a geração dos portadores de carga. **Fonte:** criação do autor.

Além de modificar a óptica dos semicondutores, a geração de portadores também pode aumentar a temperatura da rede cristalina dos semicondutores através da termalização dos portadores quentes (induzidos ou devido a absorção dos portadores livres)

e eventualmente devido a recombinação não radiativa dos pares e-b. Como discutimos na [seção 4.4](#), se $E_{fóton} > E_{gap}$ uma fração da energia absorvida sempre será convertida em calor, independentemente do tipo de recombinação que os portadores venham a ter. Portanto, sempre ocorrerão efeitos térmicos na manipulação de semicondutores por pinças ópticas, mesmo na situação ideal de um semicondutor cuja recombinação seja integralmente radiativa e cujo gap esteja em ressonância com a energia do fóton, uma fração da energia absorvida ainda seria convertida em calor via absorção dos portadores livres (conforme mostramos na [Equação 4.35](#) e na [Equação 4.37](#)). A grande pergunta é: esse aquecimento é suficiente para produzir um gradiente de temperaturas na superfície da partícula capaz de gerar uma força fotoforética suficiente para se sobrepor a força de gradiente e induzir as oscilações observadas? A priori acreditávamos que sim, principalmente na primeira vez que observamos o fenômeno com as partículas de Bi_2Se_3 , no qual a energia de gap é bem menor que a energia do fóton do laser ($E_{gap} = 0.22$ eV.) (MARTINEZ et al., 2017) e o coeficientes de absorção é compatível com os dos metais ($\alpha = 1.4 \times 10^5$ eV.) (FANG et al., 2020b). Contudo, à medida que o fenômeno foi sendo observado em semicondutores com energia de gap mais próximo a energia do fóton e com coeficientes de absorção menores, como o germânio e principalmente o silício, voltamos nossa atenção para avaliar o efeito das mudanças nas propriedades ópticas dos semicondutores devido a geração de portadores. O leitor que está acompanhando esse trabalho em ordem de escrita se recordará que no [Capítulo 5](#) nós propusemos que a força de gradiente se torna repulsiva, a partir de uma determinada posição, para justificar as oscilações observadas no silício. O que iremos fazer no restante desse capítulo é mostrar, de uma maneira mais robusta, como que a força de gradiente se torna repulsiva, que condições são necessárias para que isso ocorra e também qual é o efeito sobre as forças de espalhamento. Em outras palavras, iremos avaliar o efeito da geração de portadores sobre as forças ópticas.

6.2 O Modelo

Nosso modelo utiliza o regime de Rayleigh para calcular as forças ópticas, portanto, é necessário que a partícula satisfaça os requisitos para utilizarmos o regime de Rayleigh. Semicondutores, em geral, possuem um índice de refração maior que os dielétricos, de modo que o regime de Rayleigh, rigorosamente, só é válido para partículas com algumas dezenas de nm de raio (conforme comentamos na [seção 2.2](#)). Contudo, uma vez que ao interagir com o laser a geração de portadores diminui o índice de refração dos semicondutores (e conseqüentemente a variação de fase do campo elétrico), a validade do regime de Rayleigh pode ser estendida. Assim, vamos estimar a força óptica sobre uma partícula de germânio de $a = 100$ nm de raio utilizando o regime de Rayleigh. Escolhemos trabalhar com o germânio pois o cálculo da taxa de geração de portadores de carga é muito mais simples do que no caso do silício, por exemplo, uma vez que o germânio possui gap direto (e,

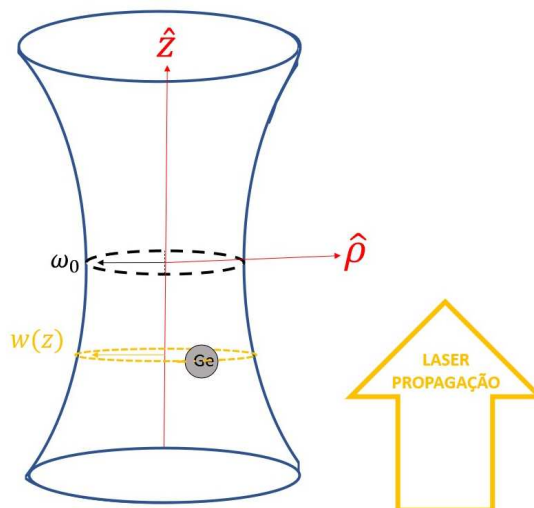


Figura 26 – Esquema ilustrando o sistema de coordenadas utilizado nesse capítulo. **Fonte:** criação do autor.

portanto, o mecanismo de absorção dominante é α_1) enquanto que no silício o processo de absorção dominante é virtual (através de α_2).

Vamos considerar que a partícula de germânio esteja interagindo com uma pinça óptica operando no modo TEM_{00} com laser de $\lambda = 1064$ nm, focalizado através de uma objetiva de grande abertura numérica de modo que a cintura do feixe no foco seja de $\omega_0 = 1,5 \mu m$ e potência no foco seja de $P = 20$ mW. Considere um sistema de coordenadas cilíndricas com origem no foco da objetiva, seja \hat{z} a direção de propagação da onda eletromagnética e ρ a direção transversal conforme ilustrada na Figura 26. Descrevendo o perfil de intensidade do campo elétrico por um campo gaussiano de ordem zero (Equação 2.10) temos:

$$I(\rho, z) = \frac{2P}{\pi w(z)^2} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (6.1)$$

onde $w(z)$ é descrita pela Equação 2.12. De acordo com Barton (DAVIS, 1979) o erro médio ao descrever o perfil de intensidade do campo elétrico através de uma descrição gaussiana de ordem zero é de aproximadamente 4,3%, em relação a descrição gaussiana de quinta ordem, quando $\omega_0 = 1,6\lambda$. Assim, a incerteza ao descrever a intensidade do campo elétrico pela Equação 6.1 é de aproximadamente 5%. A Figura 27a mostra o mapeamento do valor da intensidade em cada ponto (ρ, z) iluminado pelo feixe gaussiano de acordo com a Equação 6.1, enquanto que a Figura 27b ilustra a variação da intensidade em função de ρ para $z = 5 \mu m$.

Note a intensidade obtida é compatível com a utilizada em outros trabalhos para aumentar a densidade de portadores de carga (GALLANT; DRIEL, 1982; MEYER; KRUER; BARTOLI, 1980) em semicondutores, mas não o suficiente para causar danos

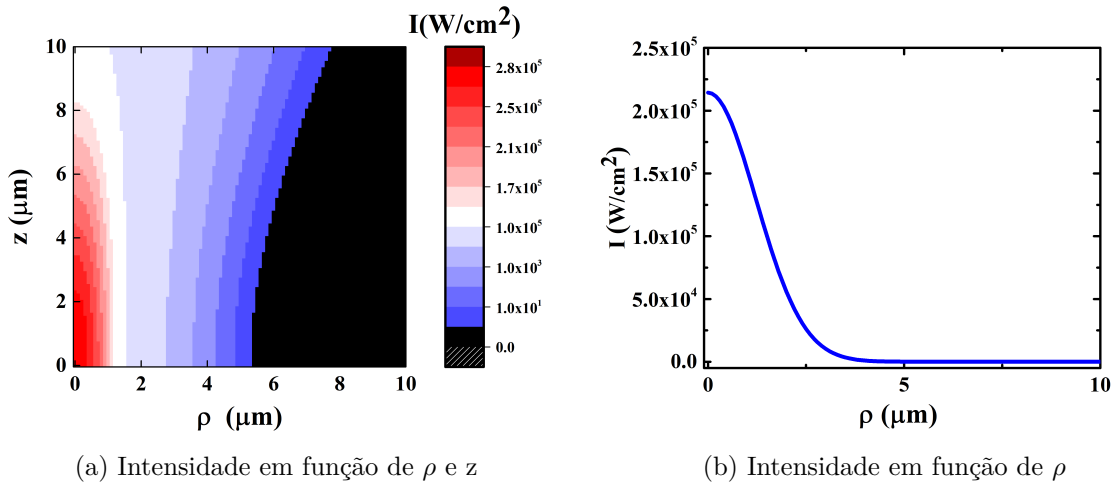


Figura 27 – Perfil de intensidade do campo gaussiano de ordem zero focalizado pela objetiva. **a)** Variação da intensidade em função de ρ e z . **b)** Variação da intensidade em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. Parâmetros: $w_0 = 1,5 \mu\text{m}$; $P = 20 \text{ mW}$; $n_m = 1,33$; $\lambda = 1064 \text{ nm}$. **Fonte:** criação do autor.

ao semicondutor (GAMALY; RODE, 2014; MEYER; BARTOLI; KRUER, 1980), ou seja longe do limite de ablação. A geração de portadores é governada principalmente pela lei de absorção de Beer, onde cada fóton absorvido gera um par elétron-buraco, e a densidade de portadores injetada decresce exponencialmente com a distância a partir da superfície do material (x). Considerando que o coeficiente de absorção e a refletância (normal) do germânio seja de $\alpha = \alpha_1 = 1,7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ e $R = 0,39$ (NUNLEY et al., 2016a) respectivamente, podemos calcular a taxa de geração da densidade de portadores na superfície da partícula de germânio ($x = 0$) utilizando a [Equação 3.17](#):

$$G(x, \rho, z) = (1 - R) \frac{\alpha 2P}{w(z)^2 \hbar \omega} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) e^{-\alpha x} \quad (6.2)$$

onde $\hbar \omega = 1,15 \text{ eV}$. é a energia do fóton. A [Figura 28a](#) ilustra a taxa de geração da densidade de portadores sobre a superfície da partícula de germânio em cada ponto (ρ, z) iluminado pelo feixe gaussiano, enquanto que a [Figura 28b](#) ilustra a variação da taxa de geração em função da distância radial para $z = 5 \mu\text{m}$.

Para obtermos a densidade de portadores geradas pela absorção óptica, devemos multiplicar a taxa de geração dada pela [Equação 6.2](#) pelo tempo de recombinação dos portadores (τ), assim:

$$\delta e = \delta b = G(x, \rho, z) \tau \quad (6.3)$$

onde δe e δb são respectivamente a densidade de elétrons e buracos criados. A densidade total de portadores em função da posição da partícula pode ser obtida somando-se a

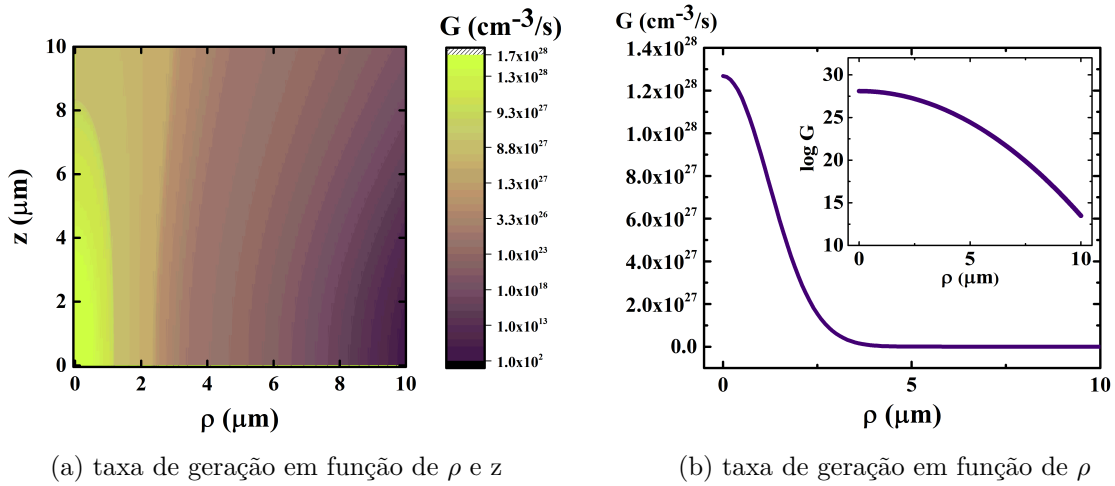


Figura 28 – Taxa da geração de portadores na superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica. **a)** Taxa de geração em função de ρ e z . **b)** Taxa de geração em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. *Gráfico inserido:* Variação do $\log G$ em função de ρ . *Parâmetros:* $\hbar\omega = 1,15 \text{ eV}$; $\alpha = 1,7 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$; $R = 0,39$; demais parâmetros ver [Figura 27](#). **Fonte:** criação do autor.

densidade de portadores intrínseca do semicondutor, $N_i = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ para o germânio (MEYER; KRUEER; BARTOLI, 1980).

$$N = N_i + 2\delta n$$

$$N(x, \rho, z) = N_i + (1 - R) \frac{4\tau\alpha P}{w(z)^2 \hbar\omega} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) e^{-\alpha x} \quad (6.4)$$

Como discutimos no [Capítulo 4](#), o tipo de recombinação é crucial para definir de que forma a energia absorvida será convertida. Além disso, N é proporcional ao tempo de vida dos portadores (outra forma de se referir ao tempo de recombinação). Assim quanto maior for o tempo de vida, maior será a densidade de portadores para uma mesma taxa de geração. Uma característica da recombinação radiativa é possuir tempos de vida longos, maiores que μs , enquanto que os portadores que se recombinam de forma não radiativa (em grande maioria via recombinação Auger) possuem um tempo de vida da ordem de ns . O tipo de recombinação (e, portanto, o tempo de vida dos portadores) depende de vários fatores como: estrutura da banda do semicondutor (FOX, 2002) intensidade da radiação (GAMALY; RODE, 2014), densidade de portadores (GALLANT; DRIEL, 1982), meio onde o semicondutor está imerso (SATO et al., 2009), etc. Tempos de recombinação da ordem de dezenas de nanossegundos foram medidos para o germânio, Driel e Galante (GALLANT; DRIEL, 1982) obtiveram o tempo de recombinação de cerca de 50 ns, enquanto que *Tan et al.* (TAN et al., 2020) obtiveram o tempo de recombinação de 70,9 ns para uma densidade de portadores de $2,4 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Note que esses tempos de recombinação

estão correlacionados com uma recombinação do tipo não radiativa, mais precisamente com a recombinação Auger, o que sugere que uma grande fração da energia absorvida pelo germânio será convertida em calor. A [Figura 29a](#) ilustra a densidade total de portadores (intrínseca e gerada) sobre a superfície da partícula de germânio em cada ponto (ρ, z) iluminado pelo laser, enquanto que a [Figura 29b](#) ilustra a variação da densidade de portadores em função da distância radial quando $z = 5 \mu m$, em ambos os casos é assumido que o tempo de recombinação dos portadores é de $\tau = 80$ ns.

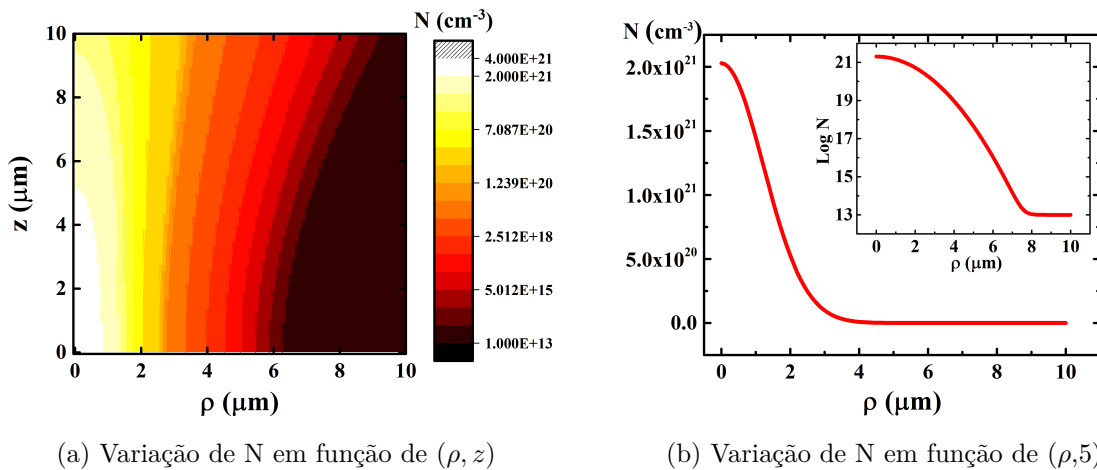


Figura 29 – Densidade de portadores resultante na superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica. **a)** Densidade de portadores em função de ρ e z . **b)** Densidade de portadores em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu m$. *Gráfico inserido:* Variação do $\log N$ em função de ρ . *Parâmetros:* $\tau = 80$ ns; demais parâmetros ver [Figura 28](#). **Fonte:** criação do autor.

Note que a densidade de portadores resultante devido a fotoexcitação é significativamente maior que a densidade intrínseca do germânio ($N_i = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$). De fato, esses valores são compatíveis com os relatados na literatura. Galante e Driel obtiveram uma densidade de portadores de $N = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, ao iluminar com um laser pulsado ($\tau_p = 80$ ns, $\lambda = 1060$ nm, $I = 2 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$) uma pastilha de germânio de $d = 400 \mu m$ de espessura medindo a variação da refletividade de um laser sonda ($\lambda = 10,6 \mu m$) sobre a pastilha durante o pulso do laser fonte. A técnica utilizada limita a detecção da densidade de portadores em aproximadamente $N = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, devido a ressonância entre a frequência de plasma e a frequência do laser sonda (SOKOLOWSKI-TINTEN; LINDE, 2000). Valores de densidade de aproximadamente $N = 3,5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ foram obtidas por *YEH et al.* (YEH et al., 2017) utilizando um laser sonda de $\lambda = 1,55 \mu m$ e configuração próxima à utilizada por Galante e Driel, novamente o valor obtido é próximo a ressonância de plasma da sonda ($N_{res} = 6,8 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$).

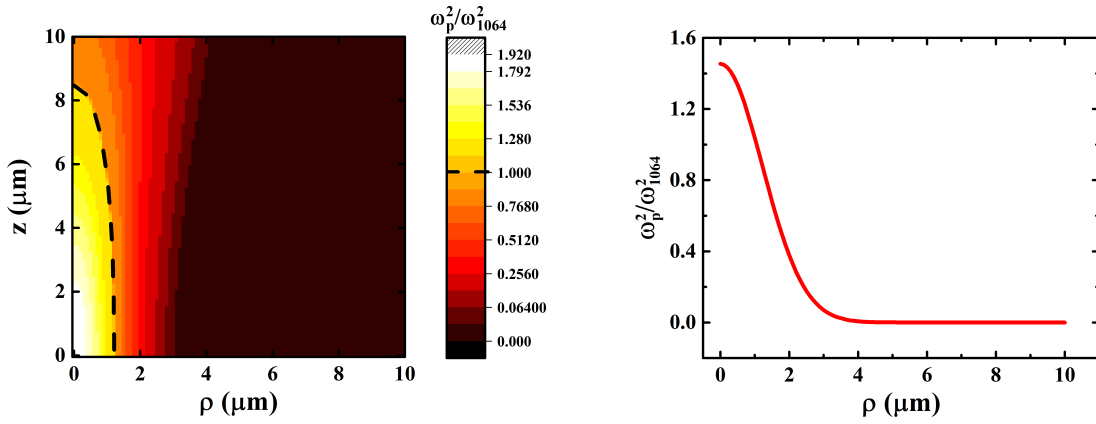
Essa variação de densidade de portadores irá modificar as propriedades ópticas do germânio. Recapitulando a [seção 4.3](#), a constante dielétrica de um semicondutor é dada pela [Equação 4.20](#):

$$\varepsilon_r(\omega) = \varepsilon_{opt} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega_{1064}^2 + i\gamma\omega_{1064})} \right) \quad (6.5)$$

onde ε_{opt} é o termo associado aos elétrons ligados, ω_{1064} é a frequência do laser, $\gamma = 1/\tau_a$ (onde τ_a é a taxa de amortecimento dos portadores livres, para semicondutores a temperatura ambiente $\tau_a \sim 10^{-13}s$) e ω_p é a frequência de plasma do semiconductor dada por:

$$\omega_p^2 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_{opt}\varepsilon_0 m_{eff}^*} \quad (6.6)$$

com e sendo a carga fundamental, m_{eff}^* é a massa efetiva reduzida (para o germânio, $m_{eff}^* = 0,076m_e$, onde m_e é a massa do elétron) e N é a densidade de portadores. Como a frequência do laser é fixa, ao excitar o germânio a razão $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ vai diminuindo. A [Figura 30a](#) ilustra a variação da razão entre $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ na superfície da partícula de germânio em cada ponto (ρ, z) iluminado pelo laser; a linha preta pontilhada indica as posições onde $\omega_p = \omega_{1064}$. A [Figura 30b](#) ilustra a mesma variação só que para $z = 5 \mu m$. Em ambos os casos o tempo de recombinação dos portadores é $\tau = 80$ ns.



(a) Variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função de (ρ, z)

(b) variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função de $(\rho, 5)$

Figura 30 – Quadrado da frequência de plasma induzida sobre a superfície da partícula semicondutora iluminada pela pinça óptica normalizada pelo quadrado da frequência de excitação do laser. **a)** Variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função de ρ e z . Linha tracejada preta: pontos onde $\omega_p = \omega_{1064}$. **b)** Variação de $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ em função do deslocamento radial com $z = 5 \mu m$. *Parâmetros:* $e = 1,602 \times 10^{-19}$ C; $\varepsilon_{opt} = 19,2$; $\varepsilon_0 = 8,854 \times 10^{-12}$ C².N⁻¹.m⁻²; $m_{eff}^* = \left(\frac{1}{0,12.m_e} + \frac{1}{0,21.m_e} \right)^{-1} = 0,076.m_e$; $m_e = 9,109 \times 10^{-31}$ Kg; $\omega_{1064} = 1,75 \times 10^{15}$ rad/s; $\tau = 80$ ns; demais parâmetros ver [Figura 29](#). **Fonte:** criação do autor.

Note que a densidade de portadores geradas no germânio é mais que suficiente para que ocorra a ressonância entre a frequência de plasma e a frequência do laser ($N_{res} = 1,39 \times 10^{21}$ cm⁻³ para ω_{1064}). Como relatamos na [seção 4.3](#), um aumento dessa

magnitude na frequência de plasma tem impacto direto sobre o índice de refração do semiconductor. Rescrevendo $\varepsilon_r = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$, temos:

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_{opt} \left(1 - \frac{\omega_p^2 \tau_a^2}{\omega_{1064}^2 \tau_a^2 + 1} \right) \quad (6.7)$$

$$\varepsilon_2 = \varepsilon_{opt} \left(\frac{\omega_p^2 \tau_a}{\omega_{1064} (1 + \tau_a^2 \omega_{1064}^2)} \right) \quad (6.8)$$

O índice de refração complexo do semiconductor $\tilde{n} = n + i\kappa$ pode ser calculado usando as componentes da constante dielétrica através das relações:

$$n = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\varepsilon_1 + \left(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2 \right)^{\frac{1}{2}} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (6.9)$$

$$\kappa = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[-\varepsilon_1 + \left(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2 \right)^{\frac{1}{2}} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (6.10)$$

A [Figura 31a](#) ilustra a variação da parte real do índice de refração, dado pela [Equação 6.9](#), na superfície da partícula de germânio em cada ponto iluminado pelo laser (a linha tracejada indica os pontos nos quais $n_{Ge} = 1,33$), enquanto que a [Figura 31b](#) ilustra a mesma coisa quando $z = 5 \mu m$, novamente estamos considerando $\tau = 80 ns$.

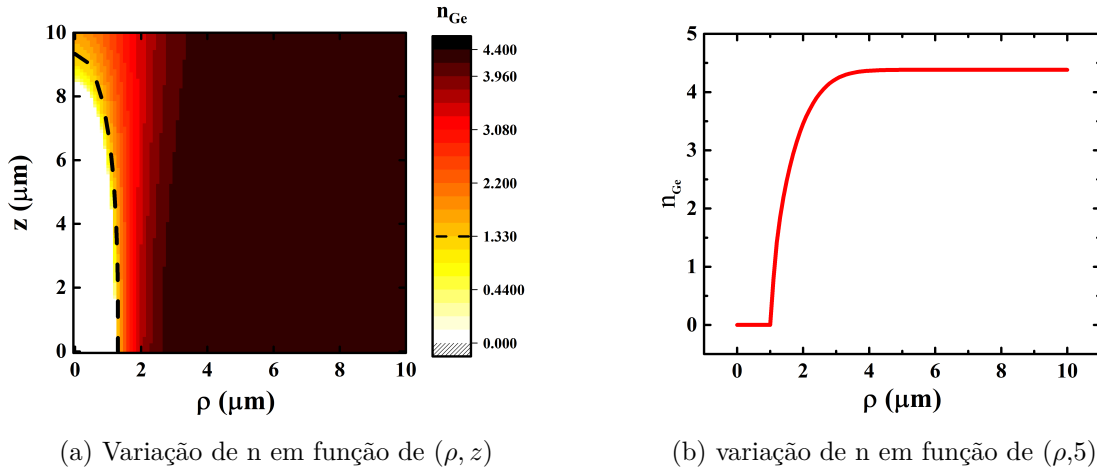


Figura 31 – Parte real do índice de refração induzido sobre a superfície da partícula iluminada pela pinça óptica. **a)** Variação da parte real do índice de refração induzido na superfície do Ge em função de ρ e z . *Linha tracejada:* pontos onde $n_{Ge} = n_m = 1,33$. **b)** Variação da parte real do índice de refração induzido na superfície do Ge em função do deslocamento radial. *Parâmetros:* $\tau_a = 10^{-13}$ s; $\tau = 80$ ns; demais parâmetros ver [Figura 30](#). **Fonte:** criação do autor.

A relação entre n_{Ge} e ω_p fica ainda mais clara se utilizarmos a aproximação $\omega_{1064} \tau_a \gg 1$ na [Equação 6.7](#) e na [Equação 6.8](#), é trivial verificar que $\varepsilon_1 \gg \varepsilon_2$ o que nos

permite escrever:

$$n_{Ge} = \sqrt{\varepsilon_{opt} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_{1064}^2} \right)} \quad (6.11)$$

Como esperado, o aumento da densidade de portadores faz com que o índice de refração diminua, quando $\omega_p \geq \omega_{1064}$ temos $n_{Ge} = 0$. Note que a fração $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ desempenha um papel chave na mudança das propriedades ópticas do germânio quando ele é excitado. Como vimos na [seção 4.1](#), a frequência de plasma está associada ao tempo de resposta dos elétrons quando o plasma é perturbado por um campo elétrico externo, no nosso caso o campo elétrico do laser de frequência ω_{1064} .

Quando $\omega_{1064} \gg \omega_p$, o tempo de resposta dos portadores é muito maior que o tempo de variação do campo elétrico, de modo que, para a onda eletromagnética (EM), os portadores de carga são transparentes. Diferente de um metal (caso que abordamos na [seção 4.1](#)), um semiconductor também possui elétrons ligados (veja [seção 4.3](#)) que respondem a perturbação do campo externo gerando o índice de refração e a reflectância intrínseca do semiconductor ¹. Uma vez que a onda EM pode excitar portadores de carga, aumentando ω_p e diminuindo a parte real do índice de refração, a transparência do semiconductor aumenta (ao contrário dos metais) até que $\omega_p = \omega$. Em outras palavras, os elétrons ligados no semiconductor fazem com que ele seja semitransparente ($R \neq 0$) à onda EM quando $\omega_{1064} \gg \omega_p$, a medida em que $\omega_p \rightarrow \omega_{1064}$, a resposta dos portadores livres faz com que a transparência aumente, isto é, a reflectância diminua. A [Figura 32a](#) ilustra a variação da reflectância (normal à superfície) do germânio em função da razão entre ω_p/ω_{1064} calculada a partir da [Equação 4.26](#) e das [Equação 6.9](#) e [Equação 6.10](#).

O que acontece quando $\omega_p = \omega_{1064}$? No modelo de Lorentz, a ressonância ocorre quando a frequência da onda EM é compatível com uma das frequências naturais de oscilação ω_a do átomo, que é acompanhada por um pico de absorção. Uma vez que ω_a está associado a força restauradora nos elétrons ligados ela não ocorre no modelo de Drude, onde os elétrons são considerados livres. Fazendo uma analogia entre o modelo de Lorentz e ω_a com o modelo de Drude e ω_p , podemos interpretar ω_p como sendo uma frequência natural de oscilação do plasma, ou seja, uma oscilação natural dos portadores de carga coletivamente, de modo que quando $\omega_p = \omega_{1064}$, temos um pico de absorção pelo plasma, fazendo com que $R \rightarrow 0$.

Quando $\omega_p > \omega_{1064}$, temos que $\kappa \gg n$ e por consequência $R \rightarrow 1$, de modo que sua transmitância (T) vai a 0, ou seja, a onda não se propaga mais dentro do semiconductor. Além disso, como κ aumenta, tanto em virtude do aumento de ε_2 mas, principalmente por ε_1 se tornar negativo, temos um aumento em α causado pelo aumento de α_{PL} , que pode ser calculado usando a [Equação 6.10](#) na [Equação 4.27](#). A [Figura 32b](#) ilustra a variação

¹ uma discussão aprofundada sobre esse tema pode ser encontrada na seção 2.1 do livro do Mark Fox (FOX, 2002)

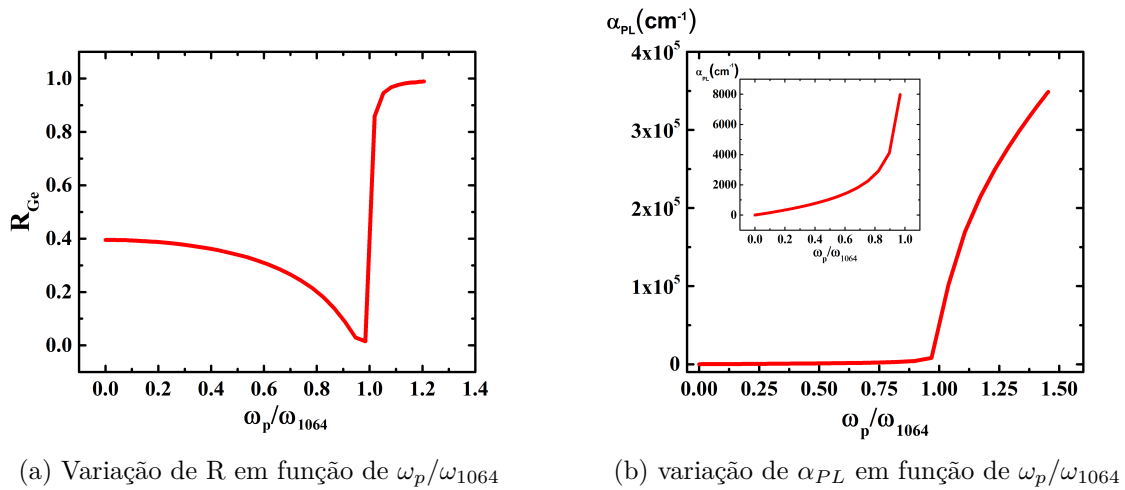


Figura 32 – **a)** Variação da reflectância induzida sobre a superfície da partícula de Ge em função de ω_p/ω_{1064} . **b)** Variação do termo do coeficiente de absorção devido a absorção dos portadores livres em função de ω_p/ω_{1064} . *Gráfico inserido:* a mesma coisa do item b) mas para $\omega_p/\omega_{1064} < 1$. *Parâmetros:* $\tau = 80$ ns; demais parâmetros ver [Figura 32](#). **Fonte:** criação do autor.

de α_{PL} como função de ω_p/ω_{1064} para o germânio. Note que α_{PL} se torna o mecanismo de absorção dominante quando $\omega_p > \omega_{1064}$, implicando que uma fração maior da energia absorvida é convertida em calor. Para $\omega_p \gg \omega_{1064}$, temos que $\alpha \simeq \alpha_{PL}$ e praticamente toda energia absorvida é convertida em calor via termalização dos portadores livres quentes, fazendo com que o semiconductor se comporte, do ponto de vista óptico, como um metal.

Dentro do regime de Rayleigh, a força óptica é função da polarizabilidade Γ , como podemos ver na [seção 2.2](#) pela [Equação 2.2](#). Mais especificamente, a força de gradiente é proporcional à $Re(\Gamma)$ enquanto que a força de espalhamento é proporcional à $Re|\Gamma|^2$, como podemos ver na [Equação 2.19](#) e na [Equação 2.25](#) respectivamente. A polarizabilidade de uma partícula esférica pode ser escrita em termos dos índices de refração ($\tilde{n}_{Ge} = n_{Ge} + i\kappa_{Ge}$) e do meio (água) ($n_m = 1,33$) como (JONES; MARAGÒ; VOLPE, 2015):

$$\Gamma = \frac{3(m^2 - 1)}{(m^2 + 2)} \text{ com } m = \frac{\tilde{n}_{Ge}}{n_m} \quad (6.12)$$

A [Figura 33](#) ilustra a variação da polarizabilidade das partículas de germânio em água, calculada substituindo a [Equação 6.9](#) e a [Equação 6.10](#) na equação [Equação 6.12](#) ($n_m = 1,33$) para várias situações de interesse. A [Figura 33a](#) ilustra a variação da parte real da polarizabilidade ($Re(\Gamma)$) na superfície da partícula de germânio em cada ponto (ρ, z) iluminado pelo laser, a linha pontilhada indica os pontos onde $Re(\Gamma) = 0$. Note que $Re(\Gamma)$ inverte de sinal duas vezes ao se aproximar do eixo óptico, a posição onde a polarizabilidade se torna negativa depende da altura focal. A [Figura 33b](#) ilustra a situação quando $z = 5 \mu m$, a polarizabilidade é positiva nos intervalos $10 \mu m > \rho > 1,15 \mu m$

e $0,75 \mu\text{m} > \rho > 0 \mu\text{m}$, negativa no intervalo $1,15 \mu\text{m} > \rho > 0,75 \mu\text{m}$ e nula quando $\rho = 1,15 \mu\text{m}$ e $\rho = 0,75 \mu\text{m}$.

As figuras [Figura 33c](#) e [Figura 33d](#) ilustram a variação da parte real e imaginária ($Im(\Gamma)$) da polarizabilidade em função da frequência de plasma normalizada pela frequência de excitação do laser. Note que essas curvas são típicas de sistemas ressonantes (como na ressonância ferromagnética ou na ressonância atômica). Fisicamente $Re(\Gamma)$ representa a oscilação do dipolo em fase com o campo EM e $Im(\Gamma)$ representa a oscilação do dipolo em quadratura de fase ² com o campo EM. Note que tanto o pico na parte imaginária quanto o zero na parte real não ocorre quando $\omega_p = \omega_{1064}$, na realidade isso ocorre quando $\omega_p = 1,083\omega_{1064}$. A razão deste deslocamento é bastante simples, ω_p está relacionada com a parte da polarização correspondente aos portadores livres, enquanto que Γ está relacionada com a parte da polarização correspondente aos elétrons ligados, respectivamente P_{livre} e P_{ligado} na [Equação 4.18](#). Em outras palavras, ω_p está relacionada com a oscilação dos portadores livres enquanto que a ressonância mostrada por $Im(\Gamma)$ está relacionada a uma linha de absorção espectroscópica do material, ou seja com a ressonância entre a frequência de oscilação do dipolo (ω_D) e a frequência do laser³. O valor obtido para $\omega_D = 0,92\omega_p$ (na ressonância) é compatível com os valores encontrados na literatura (REZENDE, 2004a).

A força de gradiente pode ser calculada utilizando a [Equação 2.17](#). A componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente pode ser escrita como:

$$\vec{F}_{G\rho}(\rho, z) = \frac{-2\pi n_m^2 a^3}{c} Re(\Gamma) \frac{4\rho}{w(z)^2} \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \hat{\rho} \quad (6.13)$$

onde c é a velocidade da luz no vácuo.

A [Figura 34a](#) ilustra a variação da componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu\text{m}$) para uma partícula de germânio de raio $a = 100 \text{ nm}$ e $\tau = 80 \text{ ns}$. Note que $F_{G\rho}$ se anula fora da origem no ponto ρ_c que denominaremos de ponto crítico. Para $\rho > \rho_c$, a força de gradiente é negativa, ou seja, ela atrai a partícula para a região de maior intensidade do campo elétrico (região focal). Para $\rho < \rho_c$, a força de gradiente é positiva, ou seja, ela empurra a partícula para fora da região focal. A mudança na natureza da força de gradiente ocorre em virtude da mudança das propriedades ópticas do germânio que se originam na geração de portadores de carga. Embora matematicamente $F_{G\rho}$ volte a torna-se negativa⁴ em pontos próximos a $\rho = 0$ como mostra o gráfico inserido

² Quadratura de fase: 90° fora de fase

³ mais detalhes podem ser encontrado nas seções 3.8 e 3.9 do livro do Philip H. Jones (JONES; MARAGÒ; VOLPE, 2015), na seção 8.2.2 do livro do Sergio Rezende (REZENDE, 2004a) e na seção 7.4 do livro do Mark Fox (FOX, 2002)

⁴ O comportamento da $F_{G\rho}$ reflete a dependência funcional de $Re(\Gamma)$ com as componentes do índice de refração n e κ (e, portanto, função da posição relativa ao foco). O fato de $F_{G\rho}$ se tornar atrativo (negativo) novamente não é uma surpresa, é bem conhecido na literatura de pinças ópticas que partículas plasmônicas (como os metais) podem ser aprisionados no regime de Rayleigh em certos comprimentos de onda que fazem com que sua polarizabilidade se torne positiva (detalhes ver referência (JONES;

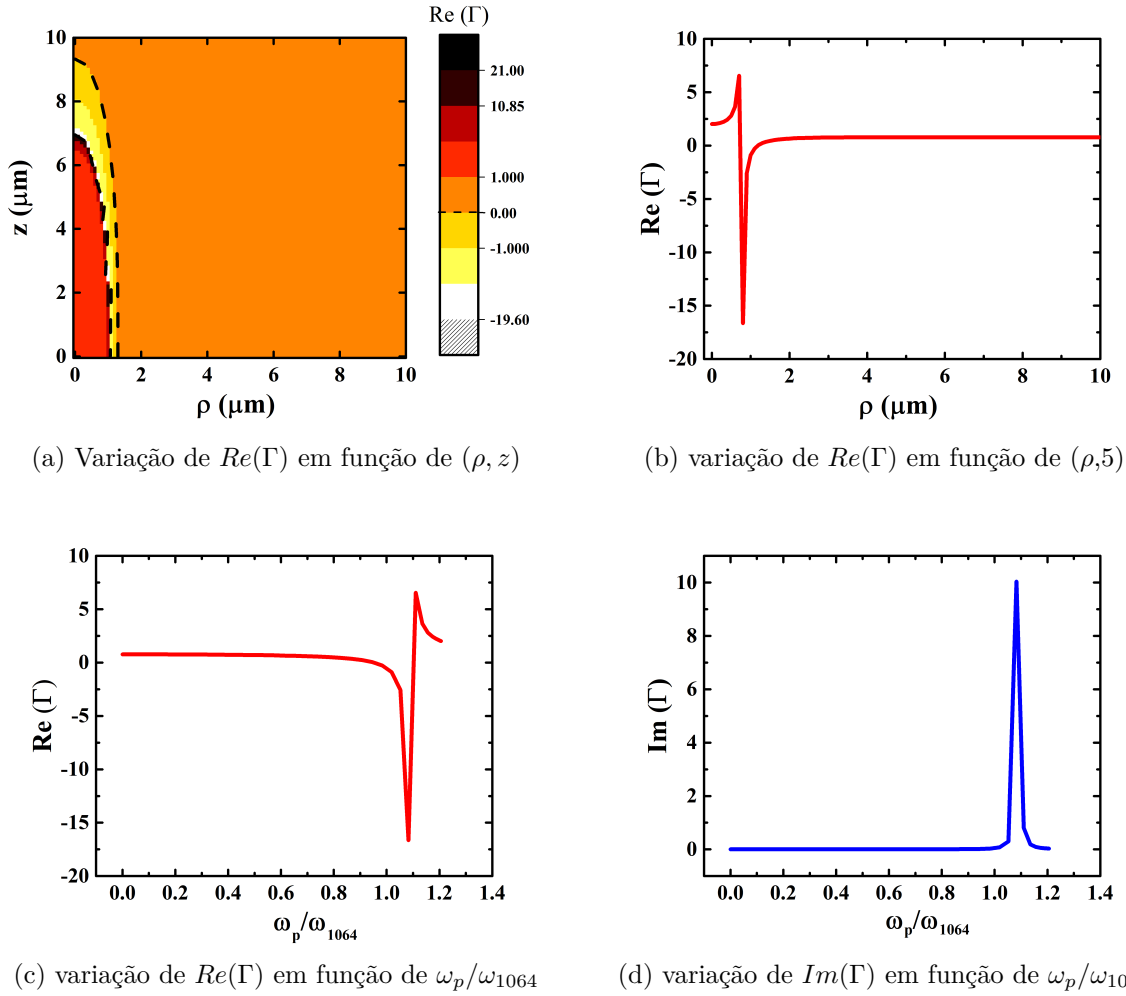


Figura 33 – Polarizabilidade induzida sobre a superfície da partícula iluminada pela pinça óptica. **a)** Variação da parte real da polarizabilidade induzida sobre a superfície em função de ρ e z . *Linha tracejada preta:* pontos onde $Re(\Gamma) = 0$. **b)** Variação da parte real da polarizabilidade em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu m$. **c)** Variação da parte real da polarizabilidade em função de ω_p/ω_{1064} . **d)** Variação da parte imaginária da polarizabilidade em função de ω_p/ω_{1064} . *Parâmetros:* $\tau=80$ ns; $n_m = 1,33$; demais parâmetros ver [Figura 32](#). **Fonte:** criação do autor.

da [Figura 34a](#), fisicamente esses pontos seriam inacessíveis a qualquer partícula que esteja sendo atraída para a região focal pela força de gradiente e qualquer partícula que seja colocada nessa região (por exemplo antes do laser ser ligado) será repelida pela $F_{G\rho}$ quando $\omega_p \rightarrow \omega_{1064}$ como mostra a [Figura 34b](#) que ilustra a variação de $F_{G\rho}$ para uma partícula de germânio inicialmente colocada na posição $(\rho; z) = (0, 5; 5)$ como função da variação da frequência de plasma normalizada pela frequência do laser.

A componente \hat{z} da força de gradiente pode ser escrita como:

(MARAGÒ; VOLPE, 2015)). Note que tal aprisionamento não é possível aqui, uma vez que ao contrário das partículas metálicas, as partículas semicondutoras possuem uma frequência de plasma variável, o que impossibilita o aprisionamento conforme é mostrado na [Figura 34b](#).

$$\vec{F}_{G,z}(\rho, z) = \frac{-2\pi n_m^2 a^3}{c} \text{Re}(\Gamma) \frac{2z\omega_0^2}{z_r^2 \omega(z)^2} \left[1 - \frac{4\rho^2}{w(z)^2} \right] \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \hat{e}_z \quad (6.14)$$

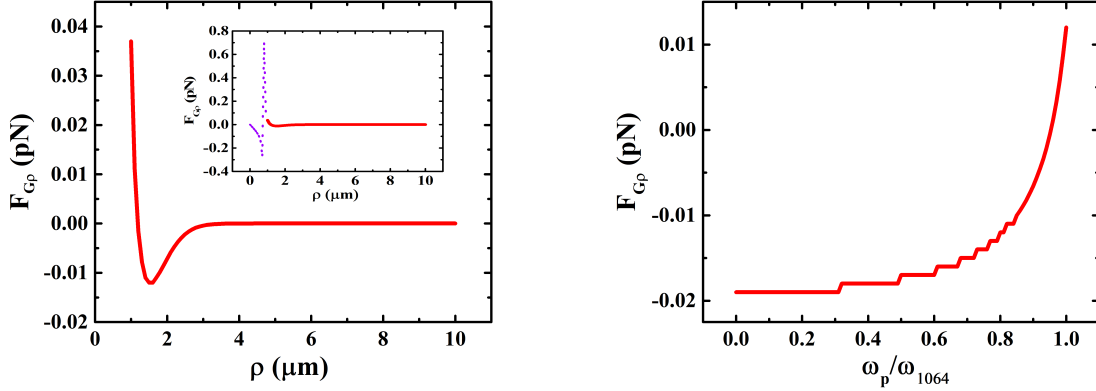
(a) Variação da $F_{G\rho}$ em função de ρ (b) variação de $F_{G\rho}$ em função de ω_p/ω_{1064}

Figura 34 – Componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente ($F_{G\rho}$). **a)** Variação de $F_{G\rho}$ em função do deslocamento radial para $z = 5 \mu\text{m}$. *Gráfico inserido:* variação total de $F_{G\rho}$, a linha roxa tracejada indica a curva matemática obtida da [Equação 6.13](#) que complementa a solução física mostrada no item a). **b)** Variação de $F_{G\rho}$ em função de ω_p/ω_{1064} para uma partícula colocada na posição $(\rho, z) = (0.5, 5)$. **Parâmetros:** $\tau = 80 \text{ ns}$; $a = 100 \text{ nm}$; $n_m = 1,33$; demais parâmetros ver [Figura 33](#). **Fonte:** criação do autor.

As duas componentes da força de gradiente são dependentes do tempo de recombinação dos portadores como mostra a [Figura 35](#) para partículas de germânio de raio $a = 100 \text{ nm}$ e altura focal $z = 5 \mu\text{m}$. Note que quando $\tau = 10 \text{ ns}$ (linha azul) o comportamento das componentes da força de gradiente são os comportamentos usuais esperados para partículas dielétricas como reportado por Harada (HARADA; ASAKURA, 1996). O comportamento usual obtido para F_{Gz} e $F_{G\rho}$ quando $\tau = 10 \text{ ns}$ é decorrente do fato que para esse tempo de vida a densidade de portadores obtidas não é suficiente para que $\omega_p \rightarrow \omega_{1064}$. De fato, o valor máximo obtido para $\omega_p^2/\omega_{1064}^2$ é de 0,24, correspondendo a uma densidade de portadores máxima de $N = 3,34 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ o que resulta em um índice de refração de $n_{Ge} = 3,82$. O tempo de recombinação mínimo necessário para que $\omega_p = \omega_{1064}$ quando a potência no foco do laser é de 20 mW é de $\tau \simeq 42 \text{ ns}$, obviamente se a potência for maior, o tempo mínimo necessário será menor e vice-versa. Para $\tau > 42 \text{ ns}$, a inversão da força de gradiente se torna possível, a linha vermelha mostra a variação de $F_{G\rho}$ ([Figura 36a](#)) e de F_{Gz} ([Figura 36b](#)) em função de ρ quando $\tau = 80 \text{ ns}$ e a linha verde mostra a mesma coisa quando $\tau = 300 \text{ ns}$. Repare que quanto maior é o valor de τ menos a partícula precisa se aproximar do eixo óptico para que a força de gradiente se inverta, ou seja, maior é o ρ_c .

A componente $\hat{\rho}$ da força de espalhamento ($F_{s\rho}$) pode ser estimada usando a [Equação 2.23](#), aproximando a seção de choque de espalhamento transversal ($C_{scat-\rho}$) por:

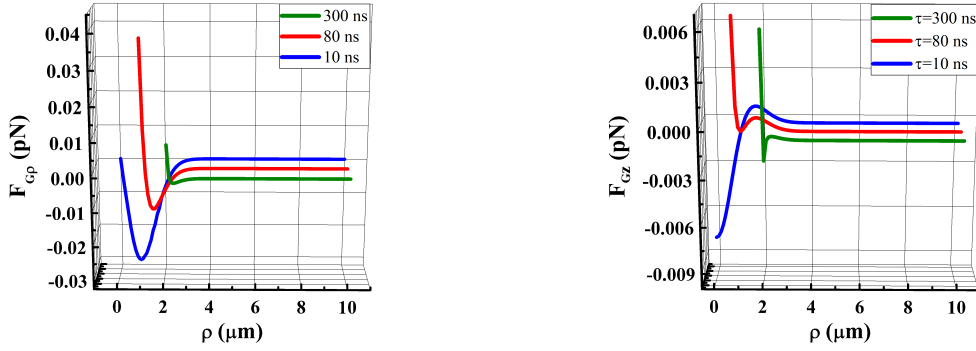
(a) Variação da $F_{G\rho}$ em função de τ (b) variação de F_{Gz} em função de τ

Figura 35 – Variação da força de gradiente em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$) para vários tempos de recombinação dos portadores. **a)** Componente $\hat{\rho}$. **b)** Componente \hat{z} . *Linha sólida azul:* $\tau = 10$ ns. *Linha sólida vermelha:* $\tau = 80$ ns. *Linha sólida verde:* $\tau = 300$ ns. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor.

$$C_{scat\rho} = \frac{\lambda^2}{9\pi} |\Gamma|^2 \left(\frac{2\pi a}{\lambda} \right)^6 \quad (6.15)$$

A Equação 6.15 foi estimada comparando as equações 103 e 104 de artigo de Ambrosio (AMBROSIO; GOUESBET, 2021) com as equações 10,11 e 20 do trabalho do Harada (HARADA; ASAKURA, 1996), sendo uma aproximação para o regime de Rayleigh da componente transversal da força de espalhamento. Note que Equação 6.15 está de acordo com as deduções de Ashkin (ASHKIN et al., 1986) e Hulst (HULST; HULST, 1981), para a seção de choque longitudinal, sendo proporcional a a^6 , e $|\Gamma|^2$. Usando Equação 6.15 em Equação 2.23 temos:

$$F_{s\rho}(\rho, z) = \frac{\lambda^2 n_m}{9\pi c} |\Gamma|^2 \left(\frac{2\pi a}{\lambda} \right)^6 \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \quad (6.16)$$

A componente longitudinal da força de espalhamento é dada pela Equação 2.25 e foi retirada do trabalho de Harada (HARADA; ASAKURA, 1996):

$$F_{sz}(\rho, z) = \frac{n_m 8\pi a^6}{3c} \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^4 |\Gamma|^2 \left(\frac{P_t}{\pi w(z)^2} \right) \exp \left[\frac{-2\rho^2}{w(z)^2} \right] \quad (6.17)$$

A Figura 36a ilustra a variação da $F_{s\rho}$ em função do deslocamento radial ($z=5 \mu m$) para vários tempos de recombinação, enquanto que a Figura 36b ilustra a mesma coisa para F_{sz} . Note que em todos os casos a força de espalhamento é sempre positiva. Assim como para a força de gradiente, para $\tau > 42$ ns, a força de espalhamento se anula em ρ_c devido ao fato de $n_{Ge} = n_m$. Para $\tau < 42$ ns a força de espalhamento tem o comportamento típico de partículas dielétricas.

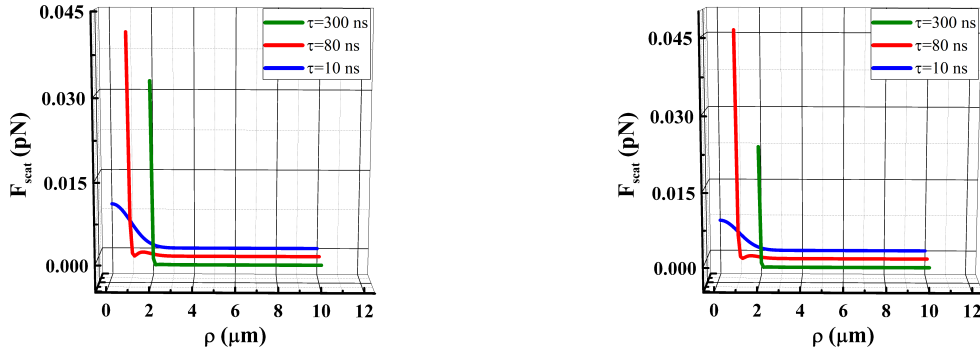
(a) Variação da $F_{s\rho}$ em função de τ (b) variação de F_{sz} em função de τ

Figura 36 – Variação da força de espalhamento em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu m$) para vários tempos de recombinação dos portadores. **a)** Componente $\hat{\rho}$. **b)** Componente \hat{z} . *Linha sólida azul:* $\tau = 10$ ns. *Linha sólida vermelha:* $\tau = 80$ ns. *Linha sólida verde:* $\tau = 300$ ns. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor.

A força óptica total (F_T) sobre a partícula de germânio pode ser obtida somando as contribuições da força de gradiente e da força de espalhamento. A componente $\hat{\rho}$ ($F_{T\rho}$) e a componente \hat{z} (F_{sz}) podem ser escritas respectivamente como:

$$F_{T\rho} = F_{G\rho} + F_{s\rho} \quad (6.18)$$

$$F_{Tz} = F_{Gz} + F_{sz} \quad (6.19)$$

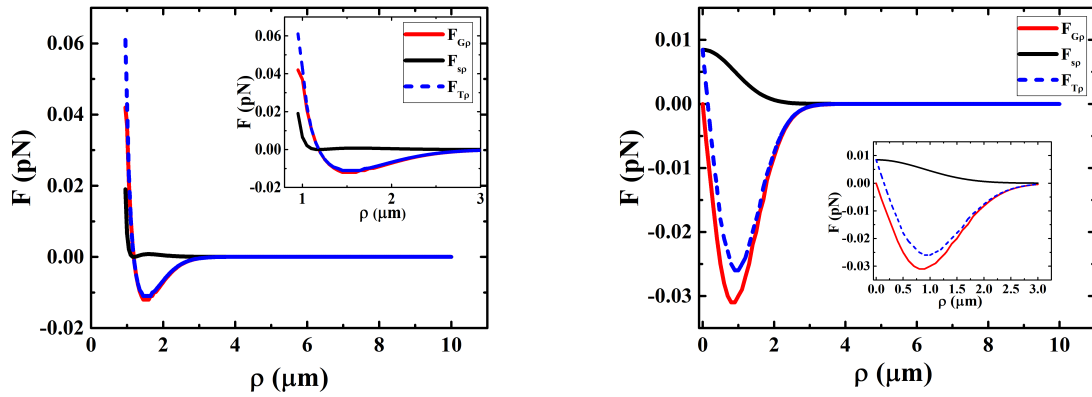
A Figura 37 ilustra a variação de $F_{T\rho}$ como função de ρ ($z = 5 \mu m$) comparando com a variação de $F_{G\rho}$ e $F_{s\rho}$ para $\tau = 80$ ns (Figura 37a) e para $\tau = 10$ ns (Figura 37b).

Note que para $\tau = 10$ ns, $F_{T\rho}$ é atrativa em quase todo o intervalo observado, exceto próximo ao eixo focal ($\rho = 0, 14 \mu m$) onde a força de espalhamento domina e $F_{T\rho}$ se torna repulsiva. Esse resultado sugere que partículas de germânio com $\tau = 10$ ns (ou menor) possam ser aprisionadas próximo ao eixo focal.

Para $\tau = 80$ ns, $F_{T\rho}$ é atrativa para $\rho > \rho_c$, repulsiva para $\rho < \rho_c$ e nula para $\rho = \rho_c$ onde $\rho_c = 1, 18 \mu m$. Note que o comportamento de $F_{T\rho}$ é governado pela força de gradiente, que é a força dominante em todo o intervalo analisado.

A força resultante sobre o eixo-z (incluindo o peso aparente F_P) é dada por:

$$F_{Tz} = F_{Gz} + F_{sz} + F_P \quad (6.20)$$



(a) Componente $\hat{\rho}$ das forças ópticas $\tau = 80$ ns (b) Componente $\hat{\rho}$ das forças ópticas $\tau = 10$ ns

Figura 37 – Variação da componente $\hat{\rho}$ das forças ópticas envolvidas no sistema em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu\text{m}$). **a)** Tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. **b)** Tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida preta:* força de espalhamento. *Linha tracejada azul;* Força óptica resultante. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor.

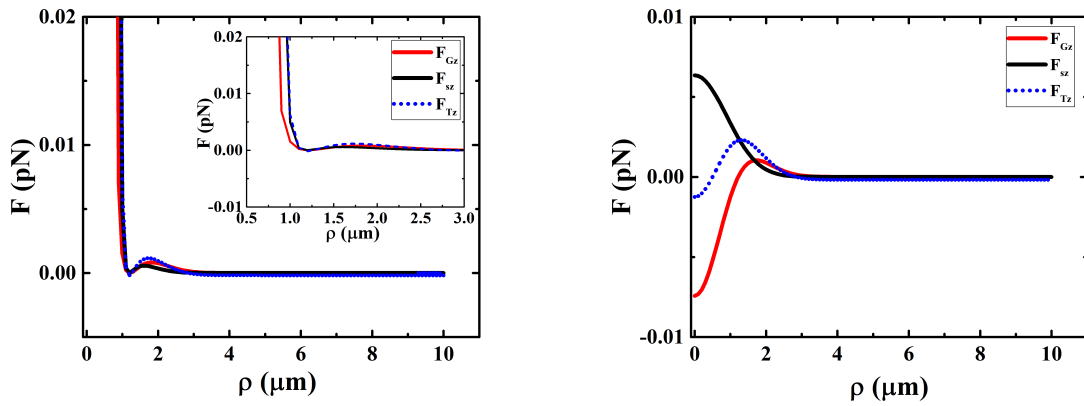
com

$$F_P = -\frac{4}{3}\pi a^3(d_{Ge} - d_m)g \quad (6.21)$$

onde estamos considerando como positiva as forças que atuam no mesmo sentido de propagação do laser, ou seja, no sentido \hat{z} . $d_{Ge} = 5323 \text{ Kg}/\text{m}^3$ é a densidade do germânio, $d_m = 997 \text{ Kg}/\text{m}^3$ é a densidade da água e g é a aceleração da gravidade.

A Figura 38a ilustra a componente \hat{z} das forças envolvidas como função de ρ ($z = 5 \mu\text{m}$) para $\tau = 80$ ns. F_{Tz} é positiva (repulsiva) próxima ao eixo óptico ($\rho < 3 \mu\text{m}$), exceto em ρ_c , onde $F_{Gz} = 0$, $F_{sz} = 0$ e $F_{Tz} = F_P$. Como pode ser observado no gráfico inserido da figura, próximo ao eixo-óptico, F_{Tz} é dominado pela força de espalhamento. Para $\rho > 3 \mu\text{m}$, $|F_P| > F_{sz} + F_{Gz}$, fazendo com que $F_{Tz} < 0$. A Figura 38b ilustra a mesma coisa, porém para $\tau = 10$ ns. Note que próximo ao eixo-óptico ($\rho < 0,5 \mu\text{m}$) a força de gradiente domina a força de espalhamento fazendo com que $F_{Tz} < 0$. Entre $0,5 \leq \rho \leq 1,25$, $F_{Tz} > 0$ em virtude do fato que a força de espalhamento domina a força de gradiente e para $1,25 \leq \rho \leq 3$, $F_{Tz} > 0$ porque tanto a força de gradiente como a força de espalhamento são positivas. Novamente para $\rho > 3 \mu\text{m}$, $|F_P| > F_{sz} + F_{Gz}$, fazendo com que $F_{Tz} < 0$.

A Figura 39 sintetiza a variação de $F_{T\rho}$ e F_{Tz} em função da variação (ρ, z) para $\tau = 10\text{ns}$ e $\tau = 80$ ns, permitindo-nos uma compreensão mais clara sobre a dinâmica sofrida pela partícula de germânio. Note que a força de espalhamento e a componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente são simétricas (par) em relação a componente z enquanto que



(a) Componente \hat{z} das forças ópticas $\tau = 80$ ns (b) Componente \hat{z} das forças ópticas $\tau = 10$ ns

Figura 38 – Variação da componente \hat{z} das forças ópticas envolvidas no sistema em função do deslocamento radial ($z = 5 \mu\text{m}$). **a)** Tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. **b)** Tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Gráfico inserido:* close nos pontos onde a força óptica resultante deixa de ser atrativa e se torna repulsiva. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida preta:* força de espalhamento. *Linha pontilhada azul;* Força óptica resultante. *Parâmetros:* ver Figura 34. **Fonte:** criação do autor.

a componente \hat{z} da força de gradiente é uma função ímpar em relação a componente z . Assim, iremos analisar a componente $\hat{\rho}$ da força total no intervalo $[0 \leq z \leq 10]$ e a componente \hat{z} no intervalo $[-10 \leq z \leq 10]$, para incluirmos a possibilidade de a partícula de germânio cruzar o plano focal.

A Figura 39a ilustra a variação da componente $\hat{\rho}$ da força total para cada ponto iluminado pelo laser quando $\tau = 10$ ns. $F_{T\rho}$ é atrativa em todos os pontos iluminados pelo laser, exceto próximo ao eixo focal, onde a força de espalhamento domina a força de gradiente tonando $F_{T\rho}$ repulsiva exatamente como ilustrada pela Figura 37b. A distância radial na qual $F_{T\rho} = 0$ varia de $\rho = 0,11 \mu\text{m}$ para $z = 0 \mu\text{m}$ à $\rho = 0,24 \mu\text{m}$ para $z = 10 \mu\text{m}$. A Figura 39b ilustra a variação da componente \hat{z} da força total para cada ponto (ρ, z) iluminado pelo laser quando $\tau = 10$ ns. Note que abaixo do plano focal, isso é para valores de $z < 0$, a força é atrativa (conduz a partícula em direção a região focal) quando é positiva e repulsiva quando é negativa. Assim, se inicialmente a partícula se encontra abaixo do plano focal, ela é atraída para o eixo óptico devido a componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente. Para $\rho < 2 \mu\text{m}$, a partícula é atraída para o plano focal, tanto pela componente \hat{z} da força de gradiente como pela componente \hat{z} da força de espalhamento que se sobrepõem à força peso. Acima do plano focal, a partícula é repelida da região focal pela força de espalhamento, que domina a componente \hat{z} da força de gradiente no intervalo $0 \leq z \leq 4$. Em $z \simeq 4 \mu\text{m}$ temos que $F_{Tz} = 0$ o que possibilita que a partícula seja aprisionada. Em outras palavras, uma partícula que inicialmente se encontra abaixo do plano focal será

conduzida até o ponto de equilíbrio localizado em $\rho \simeq 0,14 \mu\text{m}$ e $z \simeq 4 \mu\text{m}$. Note que a partícula pode vir a ser aprisionada próximo ao eixo focal (abaixo do plano focal) quando a força peso for igual a somatória da componente \hat{z} da força de gradiente e da força de espalhamento, o que ocorrerá para $z \simeq -72 \mu\text{m}$ de acordo com a [Equação 6.20](#).

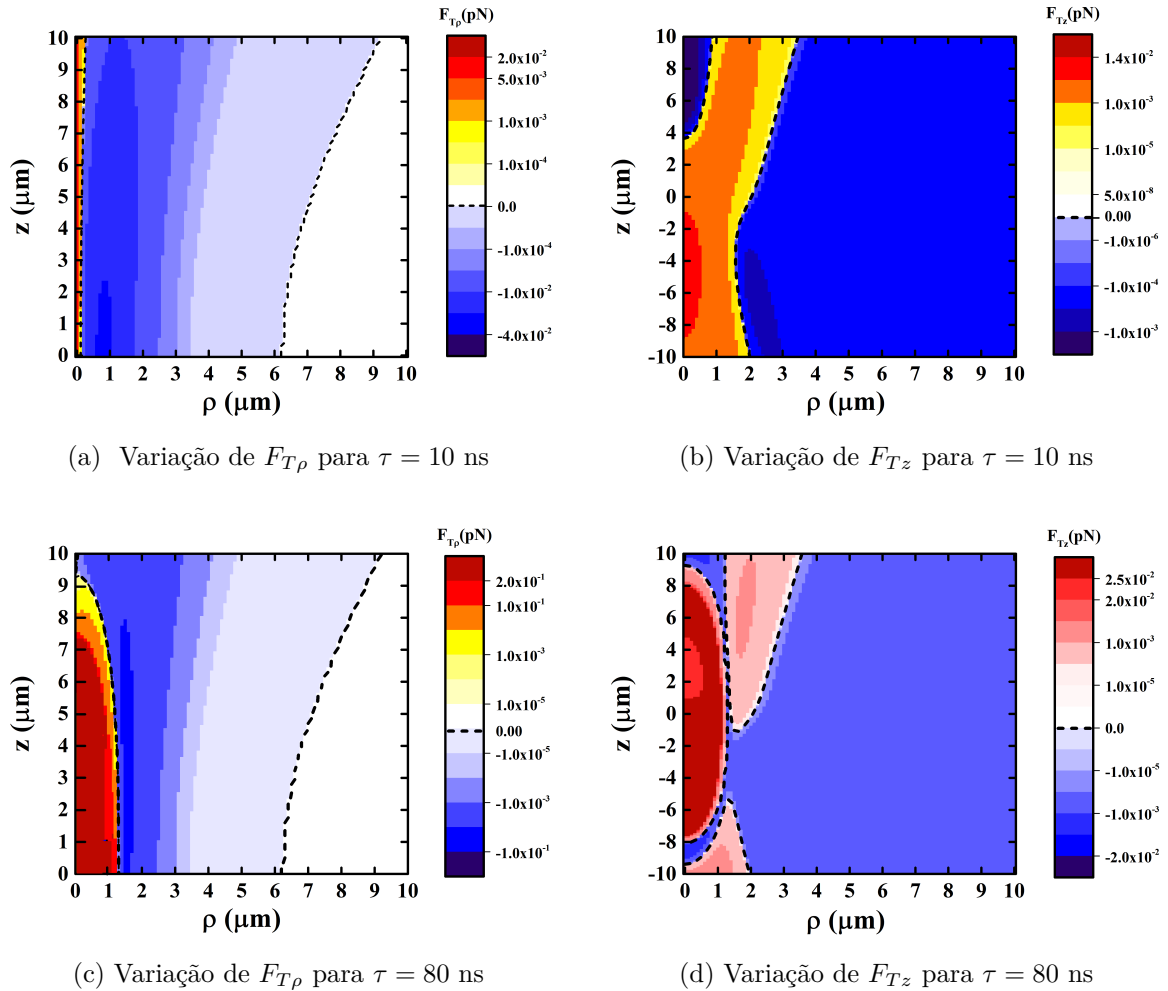


Figura 39 – Variação das componentes da força óptica resultante em função de ρ e z . **a)** Componente $\hat{\rho}$ e $\tau = 10$ ns. **b)** Componente \hat{z} e $\tau = 10$ ns. **c)** Componente $\hat{\rho}$ e $\tau = 80$ ns. **d)** Componente \hat{z} e $\tau = 80$ ns. *Parâmetros:* ver [Figura 34](#). *Fonte:* criação do autor.

Uma dinâmica muito diferente ocorre quando $\tau = 80$ ns. Como ilustra a [Figura 39c](#) a componente $\hat{\rho}$ da força óptica total é atrativa para todos os pontos $\rho > \rho_c$ e repulsiva para todos os pontos $\rho < \rho_c$, onde ρ_c é representado pela linha tracejada próxima ao eixo óptico. Note que ρ_c varia com a altura focal, o que é coerente com a [Figura 37a](#) que mostra que é a força de gradiente que domina o regime repulsivo e a força de gradiente se torna repulsiva devido ao fato do índice de refração da partícula se tornar menor que o índice de refração do meio, que por sua vez depende da altura focal como ilustrada na [Figura 31a](#). A [Figura 39d](#) ilustra a variação da componente \hat{z} da força óptica total (incluindo a força peso) em função de ρ, z quando $\tau = 80$ ns. Note que para qualquer valor de z , $F_{Tz} < 0$

para $\rho > 3 \mu m$, como explicamos anteriormente, isso ocorre porque o modulo da força peso se torna maior que a soma do modulo da componente \hat{z} da força de gradiente e da força de espalhamento. Para $\rho < 3 \mu m$, $F_{Tz} > 0$ em quase todos os pontos acima do plano focal ($z > 0$), a exceção ocorre nos pontos onde $n_{Ge} = n_m$ onde $F_{Gz} = F_{sz} = 0$ implicando que $F_{Tz} = F_P$ e onde $F_{Gz} < 0$ com $|F_{Gz}| > F_{sz}$ como ilustrado na [Figura 38](#). Para pontos abaixo do plano focal ($z < 0$) a situação e bem similar sendo diferida apenas pelo comportamento antissimétrico da força de gradiente. Assim, uma partícula de germânio colocada abaixo do plano focal desenvolveria uma dinâmica oscilatória tanto na direção $\hat{\rho}$ em virtude da inversão da força de gradiente, como na direção \hat{z} em virtude da relação entre as forças ópticas e a força peso.

Em outras palavras, à medida que a partícula é atraída para a região focal, que devido ao perfil gaussiano do feixe é mais intensa, a densidade de portadores do semiconductor aumenta, alterando sua transparência e diminuindo o seu índice de refração. A partir de uma certa distância crítica (ρ_c), o índice de refração da partícula se torna menor que o índice de refração do meio e as componentes da força de gradiente invertem o sentido e atuam de modo a expulsar a partícula para longe da região focal. À medida que a partícula se afasta do foco, os portadores gerados são recombinados reduzindo sua concentração, o índice de refração da partícula aumenta de modo que quando n_{Ge} voltar a ficar maior que n_m , as componentes da força de gradiente se tornam atrativa novamente e reconduzem a partícula para a região focal reconhecendo o ciclo como ilustrado na [Figura 40](#). Enquanto que a dinâmica na direção $\hat{\rho}$ é dominada pela força de gradiente a dinâmica na direção \hat{z} è dominada pela relação entre as forças ópticas e a força peso.

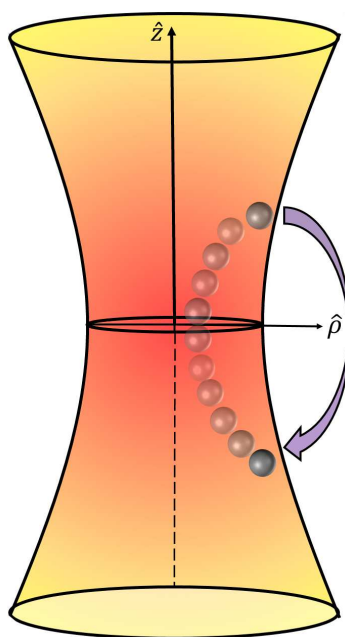


Figura 40 – Esquema ilustrando a dinâmica oscilatória das partículas de Ge. **Fonte:** criação do autor.

Além das forças ópticas outra força pode ocorrer na interação de uma partícula semicondutora com o laser focalizado de uma pinça óptica que é a força fotoforética. Utilizando as idéias desenvolvidas na [seção 4.4](#) podemos estimar a diferença de temperatura induzida na superfície da partícula de germânio ($a = 100$ nm) usando a [Equação 4.38](#) e a [Equação 4.39](#). A [Figura 41](#) ilustra a diferença de temperatura máxima entre a superfície de incidência (T_0) e a superfície diametralmente oposta (T_d) em função do tempo de interação, para um feixe com as características apresentadas nesse capítulo (as propriedades do germânio estão discriminadas na [seção 4.4](#) com exceção do tempo de recombinação). A linha vermelha indica a diferença quando a partícula se localiza na posição $\rho = 1 \mu m$ e $z = 1 \mu m$ e $\tau = 80$ ns e a linha azul indica a diferença quando a partícula se localiza na posição $\rho = 0,15 \mu m$ e $z = 4 \mu m$ e $\tau = 10$ ns. Note que a diferença de temperatura máxima obtida é de $1,75$ °C e $2,29$ °C para $\tau = 80$ ns e $\tau = 10$ ns respectivamente.

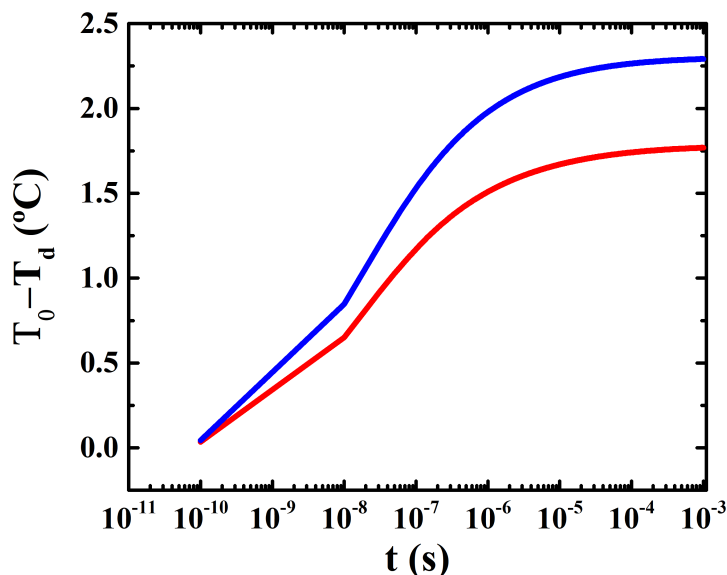


Figura 41 – Diferença entre a temperatura na superfície do semicondutor na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função do tempo de interação entre o semicondutor e a radiação considerando a recombinação como não radiativa. *Linha sólida vermelha:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 1 \mu m$ e $z = 1 \mu m$ e tempo de recombinação $\tau = 80$ ns. *Linha sólida azul:* cálculo realizado usando o valor da intensidade na posição: $\rho = 0,15 \mu m$ e $z = 4 \mu m$ e tempo de recombinação $\tau = 10$ ns. *Parâmetros:* $a = 100$ nm; parâmetros do feixe ver [Figura 27](#); parâmetros para o cálculo da temperatura ver [Figura 20](#). **Fonte:** criação do autor.

6.3 Conclusão

Pelo melhor do nosso conhecimento, está é a primeira vez que um modelo é construído para calcular o efeito da geração de portadores sobre as forças ópticas induzidas em partículas semicondutoras. As forças ópticas são sensíveis à mudança das propriedades ópticas causadas pela geração de portadores de carga. Quando a geração de portadores de carga induzida é suficiente para que a frequência de plasma do semicondutor se aproxime da frequência da radiação incidente, de modo que o índice de refração induzido na partícula se torne menor que o índice de refração do meio, a força de gradiente pode inverter o sentido e atuar como uma força repulsiva, enquanto que a força de espalhamento tem sua amplitude reduzida. Ambas as forças ópticas se anulam na posição (ρ_c, z_c) , conhecida como posição crítica, onde a polarizabilidade se anula, o que implica dizer que os índices de refração da partícula e do meio se tornam iguais. Tais mudanças nas forças ópticas são capazes, a priori, de induzir uma dinâmica oscilatória nas partículas semicondutoras sem a necessidade de se incluir nenhum efeito térmico. O efeito térmico pode ser incluído ao modelo calculando a força fotoforética gerada pela variação de temperatura na superfície da partícula. Note que essa não é uma tarefa trivial, embora possamos estimar a diferença de temperaturas sobre a superfície da partícula, um modelo robusto para cálculo da força fotoforética para partículas semicondutoras em meio líquido ainda não foi desenvolvido, sendo ainda um campo aberto a novos trabalhos.

7 Comportamento oscilatório das micropartículas de germânio no feixe de Bessel e no feixe de Gauss.

Esse capítulo retrata os resultados obtidos para a interação entre as partículas de germânio e a técnica de pinça óptica para dois tipos de feixe: feixe gaussiano e feixe de Bessel, ambos altamente focalizados através de uma objetiva de grande abertura numérica. Para o feixe gaussiano, as partículas de germânio apresentaram dinâmica oscilatória cuja direção de oscilação depende da direção da polarização do feixe. Para o feixe de Bessel obtivemos dois resultados distintos, para baixas potências (até 50 mW) as partículas de germânio são aprisionadas fora do eixo-óptico e abaixo do plano focal, para potências maiores que 50 mW observamos a dinâmica oscilatória que em alguns aspectos se assemelha às oscilações observadas no feixe gaussiano, porém sem a dependência da direção de polarização do feixe. Os resultados apresentados nesse capítulo para o feixe gaussiano foram publicados no periódico "Physical Review Research" em novembro de 2019 com o título "Germanium microparticles as optically induced oscillators in optical tweezers" (<https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.1.033119>).

7.1 Feixe Gaussiano

7.1.1 Materiais e Métodos

As partículas de germânio foram obtidas a partir da técnica de ablação a laser em solução aquosa (Apêndice A). A alta qualidade das partículas de germânio foram confirmadas por microscópio eletrônico de varredura (MEV) (Figura 42a) e análise de espectroscopia Raman (Figura 42b), que demonstraram que as partículas mantêm sua estrutura química durante o processo de ablação. Análises de raio-x também demonstraram que as partículas não apresentam nenhuma impureza em sua composição (CAMPOS et al., 2019).

As partículas de Ge foram suspensas em água deionizada e colocadas em um porta amostras que consiste de um o-ring de borracha colada sobre uma lamínula de microscópio de 150 μm de espessura. A pinça óptica consiste de um laser de fibra dopada de ytérbio 1064 nm (IPG Photonics) operando no modo TEM_{00} , montado sobre um microscópio invertido Nikon Ti-S com uma objetiva 100x de abertura numérica (NA) de 1,4 conforme ilustrado na Figura 43.

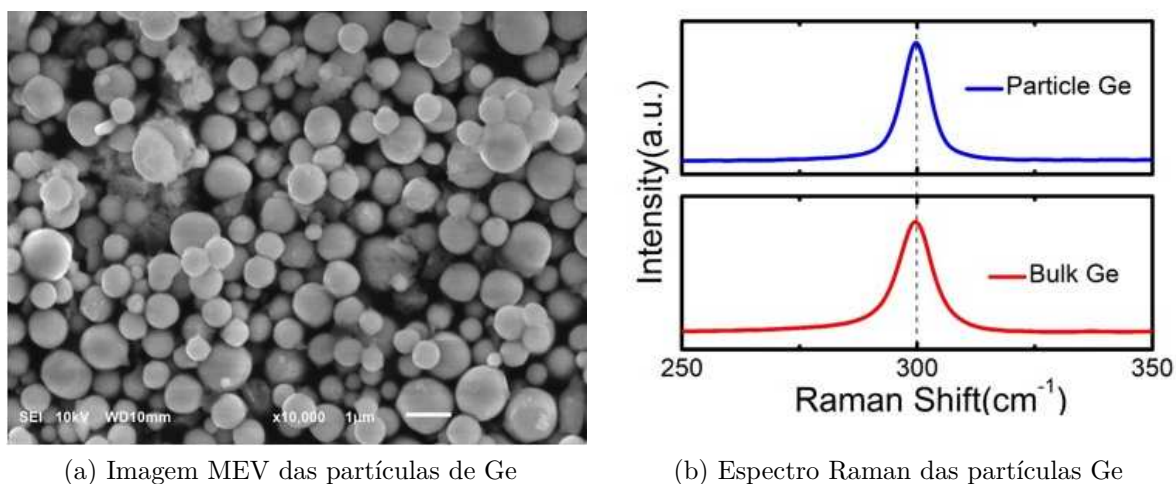


Figura 42 – **a)** Microscopia eletrônica de varredura (MEV) de microesferas de Ge obtidas pela técnica de ablação a laser em solução líquida. As partículas apresentam uma forma esférica bem definida com contornos lisos e superfície homogênea. **b)** Espectros Raman adquiridos a partir do bulk de germânio (*linha sólida vermelha*, dimensão de milímetros) e micropartículas de germânio (*linha sólida azul*), destacando a linha Raman em 300 cm^{-1} comum em ambos os espectros. Os espectros Raman indicam que a eles não experimentaram mudanças químicas durante o processo de síntese. **Fonte:** extraído da referência (CAMPOS et al., 2019).

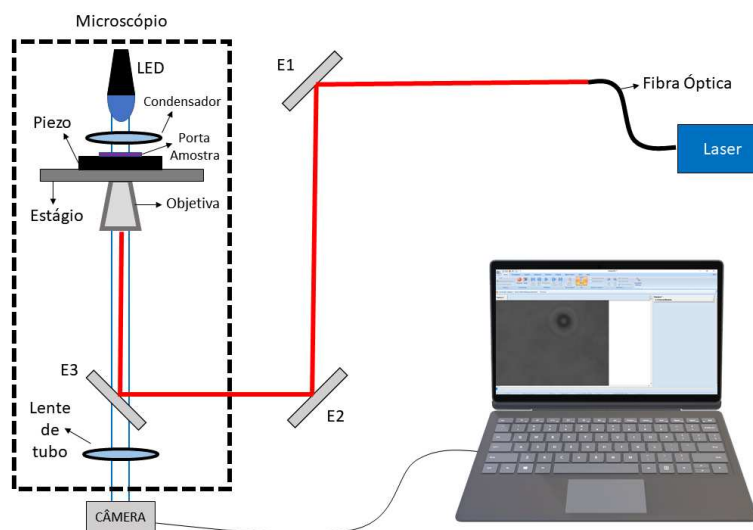


Figura 43 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos da Figura 44 e da Figura 45. A saída do laser é conectada a uma fibra óptica que contém um telescópio acoplado que transmite o laser com 1 cm de diâmetro. Transparência da objetiva; 0,31. Cintura do feixe gaussiano na entrada da objetiva: $\sigma = (1,36 \pm 0,05)\text{ mm}$. Objetiva 100x N.A. 1,4 imersão a óleo. E1 e E2 espelhos planos. E3 espelho dicróico (reflete 1064 nm). **Fonte:** criação do autor.

O movimento individual de cada partícula de germânio para vários ciclos de oscilação foi gravado por videomicroscopia, onde selecionamos partículas com boa forma

esférica. A vídeo-microscopia foi realizada utilizando uma câmera CCD (JAI BM-500GE) utilizando uma taxa de gravação em 15 fps (frames por segundo) e uma resolução de 29 pixels/ μm através do software Stream Pix e analisado com a ajuda do software ImageJ que nos permite obter a posição $[x(t), y(t)]$ do centroide da partícula em qualquer instante de tempo. Utilizando um sistema de coordenadas cilíndricas, com a origem do sistema se encontrando no foco da objetiva, direção de propagação do feixe sobre o eixo-z e tomando o eixo-y como a direção de polarização do feixe. A posição do centroide da partícula em qualquer instante de tempo é representada por $r = r(\rho, \theta, z)$, sendo $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ o deslocamento radial (relativo ao eixo óptico), $\theta = \arctan x/y$ o ângulo azimutal (medido em relação ao eixo x) e z sendo a altura focal (em relação ao plano focal).

7.1.2 Resultados e Discussão

A [Figura 44a](#) ilustra sucessivos frames mostrando a oscilação das partículas de germânio na transição onde a oscilação deixa de ocorrer na direção paralela à direção de polarização do feixe (frames 1 a 4) e passa a ocorrer na direção perpendicular à polarização do feixe (frames 6 a 8) com o frame 5 mostrando a transição. A [Figura 44b](#) mostra o sistema de coordenadas utilizado nesse capítulo, onde o sentido da propagação do laser é fornecido usando a regra da mão direita. A [Figura 44c](#) ilustra o deslocamento radial de uma partícula com $3,1 \mu m$ de diâmetro, sobre um feixe de laser gaussiano em função do tempo, cuja potência na entrada da objetiva é de 37 mW. As oscilações numeradas são correspondentes aos frames mostrados na [Figura 44a](#) enquanto que a cor de fundo é um guia para os olhos e corresponde ao ângulo de oscilação mostrado na [Figura 44b](#). Note que as oscilações ocorrem com amplitude maior para $\theta = \pi/2$ (paralelo a direção de polarização) em relação as oscilações que ocorrem para $\theta = 0$ (perpendicular a polarização) como mostra o gráfico inserido da [Figura 44d](#). Além de possuir amplitude menor, as oscilações para $\theta = 0$ ocorrem mais distante do eixo-óptico que as oscilações para $\theta = \pi/2$.

Em nossas manipulações das partículas de germânio com a técnica de pinça óptica o padrão apresentado pela [Figura 44d](#) se repetia. A partícula oscilava com amplitude maior na direção de polarização e então "girava" para executar oscilações com amplitude menor na direção perpendicular a polarização do laser (a exceção, obviamente, era quando iniciávamos o movimento com as partículas na direção perpendicular). Após a partícula atingir a posição onde $\theta = 0$ ela permanecia oscilando próximo dessa direção (com um intervalo de $\theta = \pm\pi/4$), sem a existência de uma perturbação externa a partícula não retorna a executar oscilações em $\theta = \pi/2$. Esse resultado sugere a existência de uma componente $\hat{\theta}$ na força resultante sobre a partícula que conduz a partícula em direção ao equilíbrio em $\theta = 0$.

A [Figura 45](#) mostra os parâmetros da oscilação das partículas de germânio. A [Figura 45a](#) mostra a variação da amplitude das oscilações em função da potência do laser

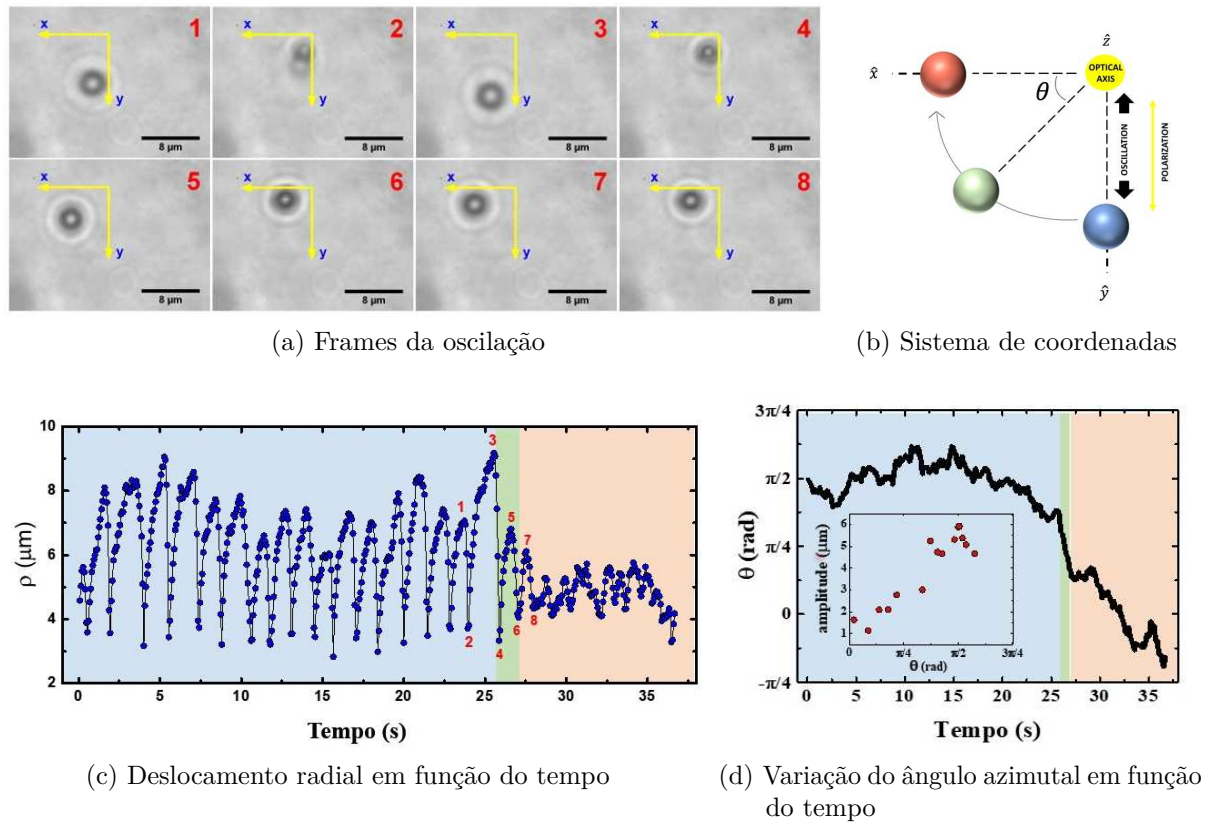
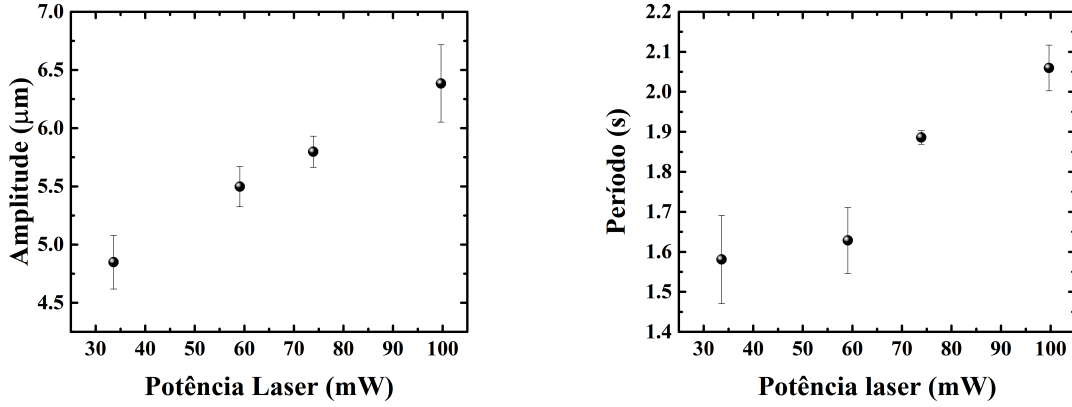


Figura 44 – Partículas de germânio de $1,6 \mu\text{m}$ de raio sobre o feixe gaussiano linearmente polarizado de uma pinça óptica. Potência na entrada da objetiva 37mW . **a)** Sucessivos frames de vídeo mostrando a partícula de Ge oscilando em direção ao eixo óptico. **b)** Sistema de coordenadas mostrando a direção de polarização, juntamente com a definição do ângulo azimutal θ . **c)** Deslocamento radial da partícula (ρ) em função do tempo. O fundo azul (vermelho) indica que as oscilações estão ocorrendo ao longo da direção perpendicular (paralela) à direção de polarização da luz, o fundo verde indica o período transiente onde a partícula deixa de oscilar na direção perpendicular e começa a oscilar na direção paralela a direção de polarização da luz. Os ciclos de oscilação numerados indicam os frames mostrados no item a). **d)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. Gráfico inserido: mostra a variação da amplitude das oscilações com θ . **Fonte:** extraído da referência (CAMPOS et al., 2019).

medida na entrada da objetiva, enquanto que a [Figura 45b](#) mostra a variação do período médio das oscilações em função da potência do laser na entrada da objetiva. Em ambos os casos o aumento da potência resulta no aumento do parâmetro, o que indica que as oscilações podem ser moduladas com a variação de parâmetros simples como a potência na entrada da objetiva.

Assim como discutimos no [Capítulo 5](#), essa dependência do ângulo azimutal ocorre devido a assimetria imposta pela polarização linear do feixe da pinça óptica previsto pela teoria de espalhamento Mie (DUTRA et al., 2007). Em outras palavras, a força de gradiente adquire uma dependência senoidal sobre θ , além de adquirir uma componente $\hat{\theta}$. A fim de incorporar esses resultados no modelo efetivo proposto pelo nosso grupo para



(a) Amplitude média em função da potência do laser (b) Período médio em função da potência do laser

Figura 45 – Partícula de germânio, $1,6 \mu m$ de raio, oscilações na direção perpendicular a direção de polarização da luz. **a)** Variação da amplitude das oscilações em função da potência do laser medida na entrada da objetiva. **b)** Variação do período das oscilações em função da potência do laser medido na entrada da objetiva. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor.

analisar as oscilações sobre as partículas de isolantes topológicas (CAMPOS et al., 2018a), vamos tomar as componentes da força de gradiente como sendo proporcionais ao gradiente da intensidade do campo elétrico (descrito como um campo gaussiano de ordem zero) dado pela Equação 2.18. Assim:

$$I(\rho, z) = I_0 \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (7.1)$$

onde I_0 é a intensidade máxima em $(\rho, z) = (0, 0)$, $w(z)$ é a cintura do feixe na altura z a partir do plano focal ($w(0) = w_0$) descrito por:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{\pi w_0^2 n_m}\right)^2} \quad (7.2)$$

e a força de gradiente dada por: $\vec{F}_G = F_{G\rho}\hat{\rho} + F_{G\theta}\hat{\theta} + F_{Gz}\hat{z}$, com:

$$F_{G\rho} = -\frac{2\rho f_{G\rho} \exp 1/2}{w(z)(1 + \eta_\rho)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) (1 - \eta_\rho \cos 2\theta) \quad (7.3)$$

$f_{G\rho}$ é a magnitude máxima de $F_{G\rho}$, para um dado valor de z , que ocorre em $\rho = w(z)/2$ e $\theta = \pm\pi/2$. η_ρ é um parâmetro que quantifica a força da assimetria do feixe no eixo- ρ . Para a componente- z :

$$F_{Gz} = \frac{2e f_{Gz} \rho^2}{w(z)^2(1 + \eta_z)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) (1 - \eta_z \cos 2\theta) \quad (7.4)$$

f_{Gz} é a magnitude máxima de F_{Gz} ocorrendo em $\rho = w(z)/2$ e $\theta = \pm\pi/2$, e é o número de Euler e η_z é o parâmetro que quantifica a força da assimetria no eixo- z . Finalmente, a componente $\hat{\theta}$ predita pela teoria de espalhamento Mie é escrita como:

$$F_{G\theta} = -\frac{2\rho f_{G\theta} \exp 1/2}{w(z)} \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \sin 2\theta \quad (7.5)$$

$f_{G\theta}$ é a magnitude de $F_{G\theta}$ ocorrendo em $\rho = w(z)/2$ e $\theta = n\pi/4$ com $n = \pm 1, \pm 3, \pm 5, \dots$

A [Equação 7.4](#) foi escrita supondo que a variação em z da partícula ao longo da oscilação é desprezível, assim a dependência da componente \hat{z} (como escrita na [Equação 5.9](#)) está incorporada na magnitude de F_{Gz} . De fato, como pode ser visto na [Figura 44a](#), a variação do padrão de difração (frames 1 a 4) é bastante sutil, sugerindo que a variação ao longo do eixo z é de fato bem pequena. Note que isso difere do que observamos para o silício ([Figura 21a](#)), onde a oscilação nitidamente cruzava o plano focal. Contudo, não devemos interpretar essa diferença como sendo uma característica da partícula, mas como uma característica da configuração da pinça óptica, pois como veremos, em outras configurações a partícula de germânio também desempenha uma oscilação 3D em uma pinça construída com feixe gaussiano.

No contexto em que publicamos o artigo referente às oscilações do germânio, nós interpretamos a dinâmica oscilatória desempenhada pelas partículas de germânio como resultado de um delicado balanço entre as forças ópticas (força de gradiente e força de espalhamento) e a força fotoforética. Como descrevemos na [seção 2.2](#), as forças ópticas surgem da transferência (e extinção) do momento da luz ao interagir com a partícula, enquanto que a força fotoforética surge do aquecimento não homogêneo da partícula ao absorver a energia da luz. Como discutido na [seção 4.4](#), o aquecimento da rede cristalina do semiconductor é devido a absorção óptica e proporcional à intensidade do feixe ([Equação 4.38](#)), da mesma maneira que a força de espalhamento ([Equação 2.23](#)). Ambas as forças desempenham um papel semelhante na dinâmica das pinças ópticas gaussianas: elas empurram as partículas semitransparentes para longe da região focal. Assim, podemos contabilizar a ação dessas duas forças de forma conjunta e por uma questão de simplicidade a chamaremos a resultante delas de força radiométrica. Em coordenadas cilíndricas temos:

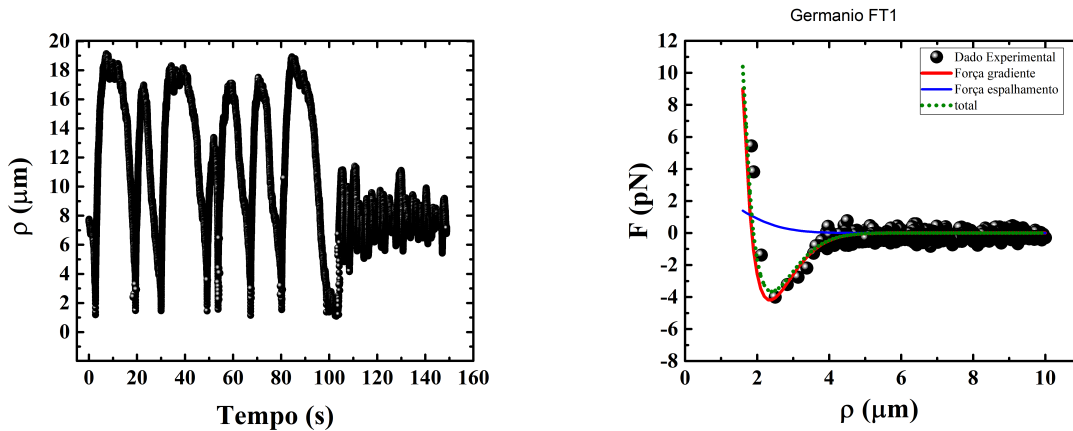
$$F_R = (F_{R\rho}\hat{\rho} + F_{Rz}\hat{z}) \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (7.6)$$

onde $F_{R\rho}$ e F_{Rz} são as magnitudes máximas da componente $\hat{\rho}$ e \hat{z} respectivamente, correspondendo aos seus valores no eixo óptico.

A força resultante sobre a partícula (excluindo a força de Stokes), é dada por: $\vec{F} = \vec{F}_G + \vec{F}_R + \vec{P}$, onde $\vec{P} = -4/3\pi a^3(d_{Ge} - d_m)g\hat{z}$ é o peso aparente da partícula de germânio com $a = 1,55 \mu m$ sendo o raio da partícula, $d_{Ge} = 5323 \text{ kg/m}^3$ e $d_m = 997$

kg/m^3 sendo a densidade do germânio e da água respectivamente e $g = 9,8 m/s$ sendo a aceleração da gravidade.

A fim de verificar se as diferenças apresentadas entre as oscilações do germânio (Figura 44c) e do silício (Figura 20a) são decorrentes das propriedades dos materiais ou da diferença entre o setup experimental em que ambos os experimentos foram feitos, nós repetimos o experimento da interação das partículas de germânio com a pinças ótica no mesmo setup utilizado nos experimentos das partículas de silício descrito pela Figura 19. A videomicroscopia foi feita seguindo o procedimento da seção 5.1 com taxa de filmagem em 325 FPS. A Figura 46a mostra o resultado obtido para uma partícula de germânio de raio $(2,1 \pm 0,1) \mu m$, com potência na entrada da objetiva de 45 mW. Diferente do observado no setup descrito pela Figura 43, a amplitude das oscilações $(15,6 \pm 0,3) \mu m$ e o período $(7,4 \pm 0,7) s$ foram consideravelmente maiores, além disso as oscilações ocorrem cruzando o plano focal, ou seja, de perfil 3D, semelhante ao observado para as partículas de silício. Novamente, as oscilações começam na direção paralela a direção de polarização do feixe ($\phi = \pi/2$) e são “giradas” para oscilarem na direção perpendicular a direção de polarização (a partir de $t = 100 s$).



(a) $\rho \times t$ setup experimento Si

(b) Comparação entre os pontos experimentais e o modelo efetivo

Figura 46 – Partícula de germânio com $2,5 \mu m$ de raio, montagem experimental fornecida pela Figura 19, potência na entrada da objetiva $P = 37 mW$. **a)** Deslocamento radial em função do tempo. **b)** Comparação entre a componente radial da força óptica resultante obtida experimentalmente (esferas pretas) e a componente radial das forças ópticas prevista pelo modelo efetivo descrito pela Equação 7.7 e Equação 7.6. *Linha sólida vermelha:* força de gradiente. *Linha sólida azul:* força de espalhamento. *Linha tracejada verde:* força total (força de gradiente + força de espalhamento). *Parâmetros modelo:* $w_0 = 0,40 \mu m$; $P = 16 mW$; $z = 4 \mu m$; $f_{G\rho} = 18 pN$; $f_{R\rho} = 3 pN$; $\tau = 220 ns$; demais parâmetros ver Figura 30. **Fonte:** criação do autor.

Diferente de um metal, um semicondutor possui mais de um processo de absorção óptica e como discutimos na seção 4.4. Nem toda energia óptica absorvida é necessariamente

convertida em calor na rede cristalina do semicondutor; parte da energia absorvida pode ser emitida na forma de luz quando a recombinação é do tipo radiativa. Além disso, o processo de aquecimento nos semicondutores é consequência da geração de portadores, e, portanto, todos os resultados discutidos no [Capítulo 6](#) ocorrem de forma simultânea ao aquecimento da rede cristalina do semicondutor.

Baseado no modelo que desenvolvemos no [Capítulo 6](#), podemos modificar o modelo efetivo discutido nos parágrafos anteriores para incluirmos os efeitos da geração de portadores de carga. O que faremos é incluir o termo de polarizabilidade na [Equação 7.3](#), de modo que os efeitos da geração de portadores sejam considerados através da modificação no índice de refração da partícula de germânio. Note que os cálculos que realizamos na [seção 6.2](#) para obter uma expressão para a densidade de portadores ([Equação 6.4](#)), constante dielétrica ([Equação 6.5](#)), frequência de plasma ([Equação 6.6](#)), índice de refração ([Equação 6.9](#) e [Equação 6.10](#)) e polarizabilidade ([Equação 6.12](#)) são independentes do regime óptico e portanto válido para partículas de qualquer tamanho. Assim, podemos rescrever a [Equação 7.3](#) como:

$$F_{G\rho} = -f_{G\rho} Re(\Gamma)\rho \exp\left(\frac{-2\rho^2}{w(z)^2}\right) \quad (7.7)$$

onde Γ é a polarizabilidade da partícula fornecida pela [Equação 6.12](#), $f_{G\rho}$ é a amplitude máxima da componente $\hat{\rho}$ da força de gradiente. A dependência angular da força de gradiente está incluída nesse parâmetro onde estamos supondo que a direção da oscilação é constante. A força radiométrica, continua composta pela somatória das forças de espalhamento e da força fotoforética e prevista pela [Equação 7.6](#). As componentes $\hat{\theta}$ e \hat{z} da força de gradiente podem ser reescritas para seguir o modelo da [Equação 7.7](#) (comparação não realizada).

A [Figura 46b](#) mostra a comparação entre a força óptica resultante (esferas pretas), obtida de maneira semelhante à descrita na [seção 5.2](#), com o modelo efetivo para a força de gradiente (linha sólida vermelha) descrito pela [Equação 7.7](#), o modelo efetivo para a força radiométrica (linha sólida azul) descrita pela [Equação 7.6](#) e a força resultante óptica teórica (linha verde pontilhada) obtida pelo somatório da força de gradiente e da força radiométrica. A polarizabilidade da partícula de germânio foi calculada de acordo com a [seção 6.2](#) considerando um feixe gaussiano de ordem zero, com $w_0 = 0,40 \mu m$ (objetiva $NA = 1.3$), $P = 16 \text{ mW}$, $z = 4 \mu m$, a amplitude da força de gradiente e da força radiométrica sendo $f_{G\rho} = 18 \text{ pN}$ e $f_{R\rho} = 3 \text{ pN}$ respectivamente, o tempo de recombinação do germânio foi de $\tau = 220 \text{ ns}$, demais parâmetros necessário para o cálculo de Γ são os mesmos utilizados na [seção 6.2](#). Os dados experimentais retratam o comportamento da força óptica resultante sobre a partícula de germânio durante o movimento de aproximação ao eixo óptico. O perfil da força óptica resultante durante o movimento de afastamento ao eixo óptico foi omitido, uma vez que ocorre acima do plano focal e nosso setup não permite

o controle sobre a variação do centroide da partícula no eixo z (estamos considerando que a partícula permaneça em uma altura focal constante abaixo do plano focal). O aumento da taxa de captura nós permitiu aumentar a resolução dos pontos experimentais na transição entre o movimento atrativo-repulsivo, o que permite uma melhor comparação entre os dados experimentais e o modelo teórico. Note que o modelo prevê muito bem o comportamento experimental dentro do regime de aproximação. O tempo de recombinação utilizado para calcular a densidade de portadores (e conseqüentemente a polarizabilidade) é maior ao que utilizamos no [Capítulo 6](#) que foi de $\tau = 80$ ns. Essa diferença pode ser explicada considerando as aproximações utilizadas para calcular a força como: a aproximação paraxial ($w_0 = 0,37\lambda$) o que gera um erro no valor da intensidade uma vez que o feixe (focalizado) não obedece a aproximação paraxial, a aproximação do movimento ao longo do eixo z como constante ($z = 4 \mu m$), efeitos de aberração no feixe, entre outros. Além disso, uma vez que o semiconductor está em um meio líquido, o tempo de recombinação dos portadores pode ser alterado (SATO et al., 2009), o que pode justificar o aumento no tempo de recombinação do germânio necessário para ajustar o modelo aos dados experimentais em relação aos que foram obtidos teoricamente e apresentados no [Capítulo 6](#).

Como uma consequência da geração de portadores, a absorção óptica gera também o aquecimento da rede cristalina do semiconductor, o que pode gerar a força fotoforética discutida na [subseção 2.2.2](#) e incluída no nosso modelo efetivo dentro da chamada força radiométrica em que também incluímos as forças de espalhamento. Note que o tempo de recombinação utilizado em nosso modelo é compatível com uma recombinação não radiativa, o que implica dizer que uma grande fração da energia absorvida é convertida em calor na rede cristalina do semiconductor. Utilizando os cálculos do [seção 4.4](#) a diferença máxima entre a extremidade iluminada da partícula (T_0) e a extremidade diametralmente oposta (T_d) pode ser estimada para um tempo de interação suficientemente longo para que a diferença de temperatura entre as duas extremidades atinja o equilíbrio através da [Equação 4.39](#). A [Figura 47](#) mostra a variação de temperatura nas extremidades da partícula em função dos pontos (ρ, z) iluminados pela pinça óptica para uma recombinação integralmente não radiativa e integralmente radiativa. As figuras foram construídas considerando um tempo de interação de $t = 0,01$ s, potência $P = 16$ mW (potência transmitida), cintura do laser no foco de $w_0 = 0,40 \mu m$, tempo de recombinação $\tau = 220$ ns, raio da partícula $a = 2,15 \mu m$, e demais parâmetros explicitados para o germânio na [seção 4.4](#). Como esperado, quando a recombinação é não radiativa a diferença de temperaturas entre as extremidades da partícula é maior (em relação a recombinação radiativa) em decorrência que uma maior fração da energia óptica incidente é convertida em calor na rede cristalina do semiconductor. Note que o tempo de interação, isto é o tempo em que a partícula interage com a radiação de intensidade $I(\rho, z)$ está sobrestimada para os valores de ρ mais próximos ao eixo óptico devido ao fato que a velocidade das

partículas nessa região ser maior, fazendo com que o tempo que a partícula fica próximo ao eixo óptico é menor que 10 ms, como pode ser visto na [Figura 46](#), onde o tempo entre dois pontos consecutivos é dado por $t = 1/(taxaFPS) = 1/325 = 3ms$, de modo que os valores na [Figura 47](#) estão sobrestimados para os valores próximo ao eixo óptico.

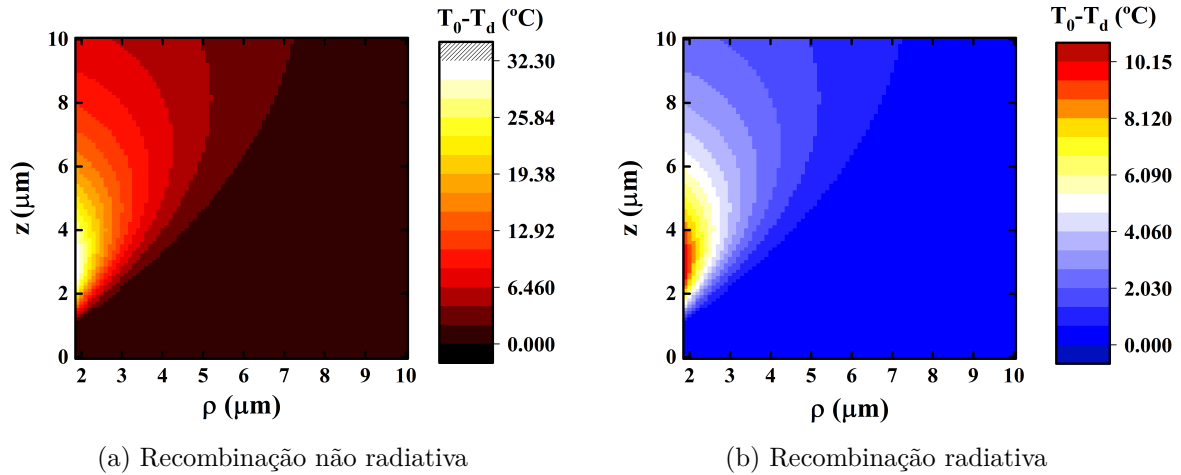


Figura 47 – **a)** Recombinação não radiativa. **b)** Recombinação radiativa. Diferença entre a temperatura na superfície do semiconductor na posição de incidência da radiação (T_0) e na posição diametralmente oposta (T_d) em função dos pontos (ρ, z) iluminados pela pinça óptica para um tempo de interação de $t = 10$ ms. *Parâmetros:* $w_0 = 0,40 \mu m$; $P = 16$ mW; $\tau = 220$ ns; $a = 2,15 \mu m$; demais parâmetros ver [Figura 16](#). **Fonte:** criação do autor.

Note que em ambos os casos os valores da diferença de temperatura sobre a superfície da partícula mudam consideravelmente quando a partícula se aproxima de ρ_c . Isso sugere que o efeito da força fotoforética seja complementar ao efeito da inversão da força de gradiente, com as três forças (junto com a força de espalhamento) atuando para afastar a partícula da região focal.

Dentro do regime de Rayleigh, vimos no [Capítulo 6](#) que os efeitos da inversão da força de gradiente ocorrem antes da força de espalhamento se tornar dominante ([Figura 37](#)), o que nos sugere que nesse caso o efeito da geração de portadores é fundamental para que ocorra as oscilações, principalmente porque para partículas Rayleigh o efeito da força fotoforética pode ser considerado desprezível nos semicondutores. Para partículas com raio na ordem de micrômetros, a força fotoforética desempenha um papel relevante e pode influenciar na armadilha óptica, podendo inclusive gerar as oscilações observadas, como previsto por nossos primeiros modelos. Por melhor dos nossos esforços e do que se consegue encontrar na literatura é extremamente difícil aferir se as oscilações nas partículas de germânio ocorrem por efeitos térmicos ou pela inversão da força de gradiente. Ambos os mecanismos têm origem no mesmo fato físico: a absorção óptica e geração/recombinação dos portadores de carga. Soma-se ainda a dificuldade experimental em se medir diretamente a existência de um gradiente de temperaturas sobre a superfície da partícula durante

o ciclo de oscilação ou de se medir a variação da densidade de portadores durante as oscilações. Portanto, tanto a geração da força fotoforética como a inversão da força de gradiente, e no caso do germânio provavelmente ambas, podem induzir oscilações nas partículas semicondutoras.

A importância em se discriminar os dois mecanismos (força fotoforética e inversão da força de gradiente) decorre do interesse da aplicação das oscilações. Para um uso biológico, como por exemplo para estirar uma molécula de DNA ou membrana celular é preferível minimizar os efeitos de aquecimento, uma vez que podem danificar o sistema biológico, e portanto, ter uma oscilação puramente óptica é o ideal. Por outro lado, para estudos em termodinâmica como, por exemplo, para estudar máquinas térmicas de moléculas únicas, pode ser interessante maximizar o efeito térmico e, portanto, ter uma oscilação induzida pela força fotoforética pode ser o mais interessante. Teoricamente, é possível chegar a esses dois extremos escolhendo as propriedades do material semicondutor e do laser afim de maximizar o efeito desejado. Por exemplo, para minimizar os efeitos térmicos é preciso minimizar as frações da energia óptica absorvida que é convertida em calor, podemos minimizar a fração da energia de termalização dos portadores quentes induzidos (χ_T) fazendo com que a energia dos fótons do laser seja ressonante com a energia de gap do semicondutor ($\hbar\omega = E_g$) como mostram as [Equação 4.29](#) e [Equação 4.34](#). Outra maneira de minimizar a conversão de energia óptica em energia térmica é escolhendo semicondutores com gap direto (em relação ao comprimento de onda do laser) e estrutura de bandas que favoreçam a recombinação radiativa.

7.2 Feixe de Bessel

Nessa seção abordaremos os resultados experimentais obtidos para a interação das partículas de germânio com um feixe de Bessel fortemente focalizado por uma objetiva de grande abertura numérica. A motivação para a realização desse trabalho surge como consequência de um outro trabalho realizado pelo nosso grupo (ANDRADE; GARCIA; ROCHA, 2021) onde se construiu uma configuração de pinças ópticas capaz de aprisionar partículas superparamagnéticas. Esse resultado é interessante não só pelo fato de se possibilitar a criação das chamadas pinças híbridas (pinça óptica e pinça magnética) que permitem a aplicação simultânea de forças ópticas e forças magnéticas sobre a mesma partícula, como também pela capacidade da configuração de aprisionar partículas com alto coeficiente de absorção como são as partículas superparamagnéticas ($\alpha \simeq \alpha_{Fe_3O_4} = 43675 \text{ cm}^{-1}$). A capacidade do feixe de Bessel de aprisionar partículas absorventes decorre da distribuição da intensidade em vários anéis reduzindo o efeito líquido das forças fotoforética e de espalhamento (OLIVEIRA; CAMPOS; ROCHA, 2018; RUBINOV et al., 2003).

Uma vez que as partículas superparamagnéticas, que são espalhadas no feixe

gaussiano devido ao domínio da força radiométrica, são pinçadas no feixe de Bessel, é razoável presumir que as partículas de germânio, que oscilam no feixe gaussiano devido a alternância de domínio entre a força de gradiente e a força radiométrica, sejam pinçadas no feixe de Bessel em decorrência do enfraquecimento da força radiométrica. Portanto, nosso intuito era utilizar o feixe de Bessel focalizado para construir uma armadilha óptica capaz de aprisionar as partículas de germânio. Contudo, como será mostrado a seguir, o pinçamento só foi possível em um estreito intervalo de potências (entre 30 mW e 50 mW) e ocorria fora do eixo-óptico e abaixo do plano focal. Para potências maiores que 50 mW a dinâmica oscilatória ocorria de maneira próxima ao que era visto para o feixe gaussiano, porém com algumas características únicas, como iremos detalhar nessa seção. O feixe de Bessel pode ser gerado facilmente a partir de feixes gaussianos que operam no modo TEM_{00} utilizando lente axicon ou um modulador espacial de luz (SLM).

7.2.1 Função de Bessel

No [Apêndice B](#) nós detalhemos o processo de geração dos feixes de Bessel a partir da solução exata da equação de Helmholtz. Os feixes de Bessel são tratados como feixes não difrativos, ou seja, o perfil transversal de intensidade é invariante ao longo da propagação da onda EM. Nossa armadilha é construída por um feixe de Bessel de ordem zero, cujo perfil de intensidade na entrada da objetiva é dado por:

$$I(\rho) = I_0 J_0^2\left(\frac{2.4}{\rho_B}\rho\right) \quad (7.8)$$

onde I_0 é intensidade sobre o eixo óptico e ρ_B é o raio de Bessel (distância entre o eixo óptico e o primeiro mínimo). A [Figura 57](#) na [seção B.3](#) ilustra o perfil transversal da intensidade do feixe de Bessel.

7.2.2 Materiais e Métodos

As partículas de germânio foram produzidas de maneira similar à apresentada na [subseção 7.1.1](#) e suspensas em água deionizada (detalhes ver [Apêndice A](#)). A [Figura 48](#) ilustra o arranjo experimental. Um laser linearmente polarizado, modelo MIL-III(CNI lasers), operando no modo TEM_{00} , com potência máxima de 1,5 W, $\lambda = 1064$ nm e diâmetro de 1,5 mm foi usado. Um telescópio montado com as lentes L_1 (distância focal de 25,4 mm) e L_2 (distância focal de 75 mm) foi utilizado para adequar o diâmetro do feixe ao modulador espacial de luz (SLM, PLUTO - Holoeve Photonics AG)). Nós utilizamos uma placa de meia onda (PO) para ajustar a polarização do feixe à polarização de operação do SLM. O SLM é conectado a um computador e controlado através do software Holoeve Application, que possui uma biblioteca pre carregada permitindo o SLM emular vários elementos ópticos. O feixe de Bessel (ordem zero) é criado fazendo o SLM

emular uma lente Axicon. O SLM permite selecionar o raio do menor anel do feixe de Bessel selecionando o número de pixels do menor anel no software. Um segundo telescópio foi montado com as lentes L_3 (distância focal de 1000 mm) e L_4 (distância focal de 200 mm) para ajustar o diâmetro do feixe à abertura da objetiva. O feixe incide na entrada de um microscópio invertido modelo Nikon eclipse Ti com uma objetiva 100x NA= 1,4 (diâmetro da entrada 7,0 mm) que é responsável por focalizar o feixe de Bessel.

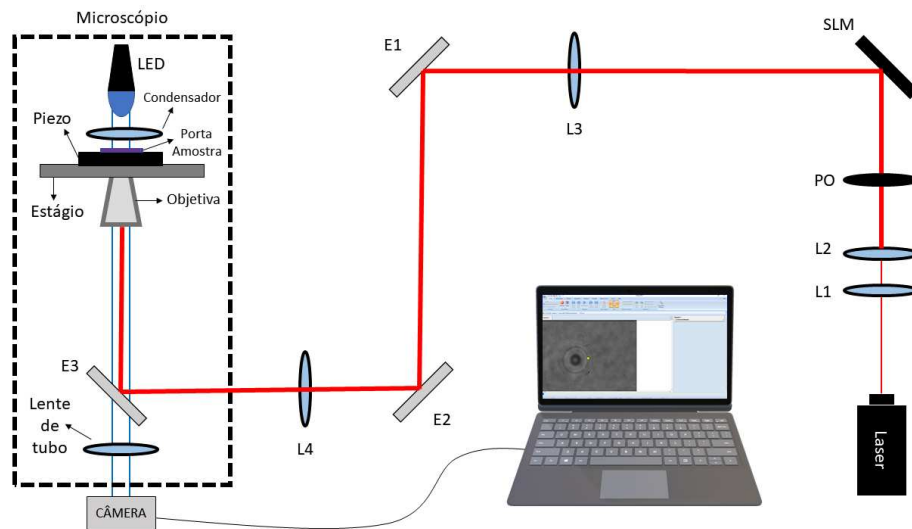


Figura 48 – Esquema da montagem óptica utilizada nos experimentos com feixe de Bessel. L1 lente plano-convexa $f = 25,4$ mm, L2 lente plano convexa $f = 75,0$ mm, as lentes L1 e L2 atuam como um “beam expander” (expansor de feixe). PO placa de meia onda, para ajustar a polarização do feixe a polarização de trabalho do modulador espacial de luz (SLM). L3 lente plano convexa $f = 1000$ mm e L4 lente plano convexa $f = 200$ mm. E1 e E2 espelhos planos, E3 espelho dicróico (reflete 1064 nm). **Fonte:** criação do autor.

7.2.3 Caracterização do Feixe de Bessel

A caracterização do perfil de intensidade do feixe de Bessel foi realizada fotografando o feixe na entrada da objetiva. Para isso foi utilizada uma câmera CMOS Basler (Basler acA1920-155uc) com uma relação de 64,5 pixel/mm. Para obter a relação pixel/mm nós fotografamos um objeto de fase com dimensão conhecida na mesma posição onde fotografamos o feixe, comparando o número de pixels da largura do objeto de fase com o valor da largura do objeto de fase em mm, obtemos a relação pixel/mm da câmera na posição desejada.

O perfil de intensidade do feixe é fornecido medido a escala de cinza de 256 níveis ao longo do diâmetro do feixe. O software do SLM nos permite controlar o raio do menor anel de Bessel que é definido pelo número de pixels no SLM. Controlando o raio do menor anel nós podemos controlar toda a distribuição de intensidade do feixe através do parâmetro experimental conhecido como raio de Bessel (ρ_B) definido como a distância entre

o centro do feixe e o primeiro mínimo (Figura 49a). A transparência média da objetiva foi determinada medindo a potência antes e depois de passar pela objetiva utilizado um medidor de potência para feixes altamente focalizados (ThorLabs Slide Power Sensor S170C), a medida na objetiva foi de 30%. Nós trabalhamos com 6 raios Bessel, construídos variando o número de pixel do raio do menor anel de Bessel no software do SLM. As respectivas medidas do número de pixel (B-i)¹ e o valor do raio de Bessel medido na entrada da objetiva (em milímetros) são: $B34 \rightarrow (0,499 \pm 0,001)\text{mm}$, $B37 \rightarrow (0,544 \pm 0,007)\text{mm}$, $B40 \rightarrow (0,587 \pm 0,002)\text{mm}$, $B43 \rightarrow (0,631 \pm 0,003)\text{mm}$, $B46 \rightarrow (0,674 \pm 0,002)\text{mm}$, $B49 \rightarrow (0,717 \pm 0,003)\text{mm}$, como está ilustrado na Figura 49b. Na Figura 49c nós mostramos o perfil de intensidade transversal do feixe Bessel na entrada da objetiva. Note que a Figura 49 é similar a Figura 57 (Apêndice C), o que demonstra que o perfil obtido pela SLM é de fato um perfil de Bessel de primeiro tipo e ordem zero.

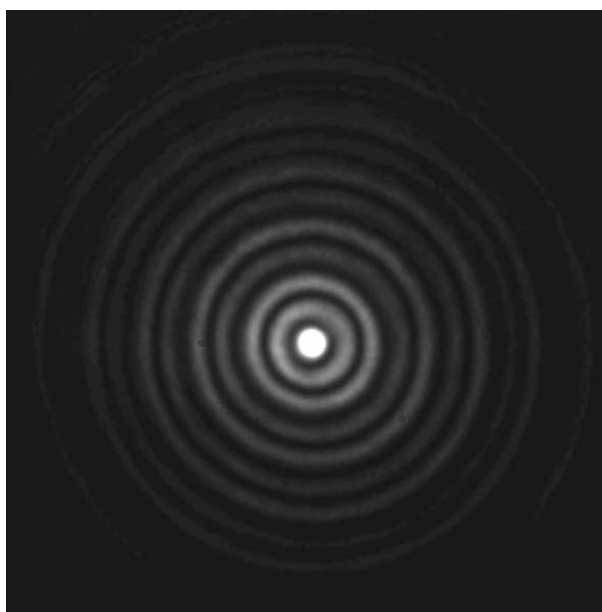
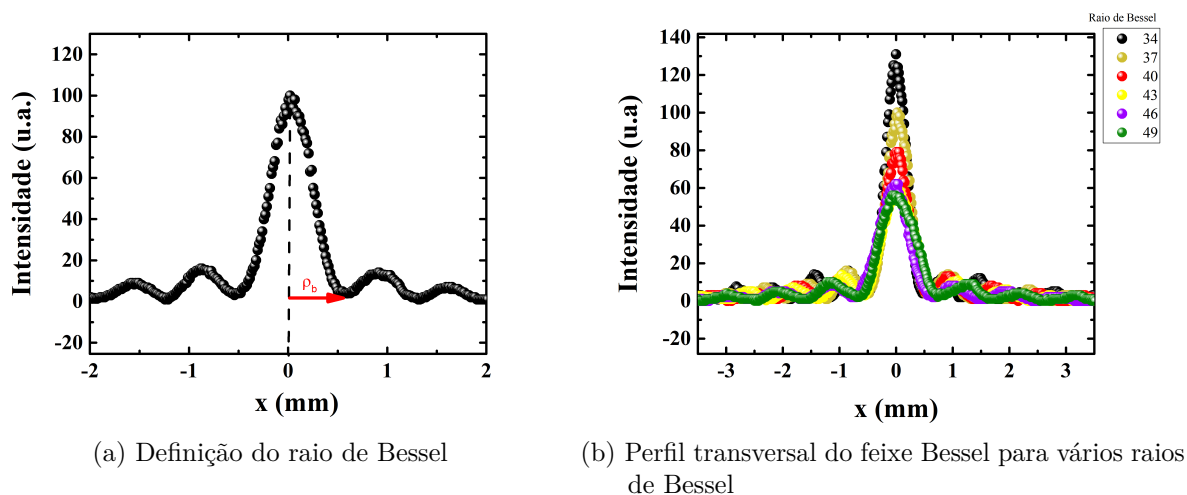
7.2.4 Resultados e Discussão

Como temos discutidos nos últimos capítulos, existem basicamente três forças que atuam nas partículas semicondutoras: a força de gradiente, as forças de espalhamento e a força fotoforética, o arranjo entre essas três forças produziram as oscilações observadas para as partículas de silício e germânio no feixe gaussiano. Agora, vamos investigar a dinâmica produzida por essas forças quando o perfil do feixe muda de gaussiano para um perfil de Bessel fortemente focalizado. Podemos observar dois comportamentos distintos das partículas de germânio nessa nova configuração: uma no intervalo de potências entre 35mW até 50mW, onde as partículas eram aprisionadas e outro para potências no intervalo entre 50mW e 70 mW, onde as partículas apresentaram a dinâmica oscilatória. Para potências acima de 70 mW não foi possível observar nem o pinçamento nem a dinâmica oscilatória, a partícula era atraída para o eixo focal e posteriormente repelida para uma distância maior que o “spot” do laser. Nas seções a seguir iremos detalhar os resultados obtidos tanto do regime de aprisionamento quanto do regime de oscilação.

7.2.4.1 Pinçamento no feixe de Bessel

A armadilha óptica foi gerada focalizando fortemente o feixe de Bessel gerado pelo SLM. As partículas de germânio podem ser aprisionadas em diferentes condições do feixe de Bessel, o que nos motivou a estudar como a constante de rigidez da armadilha (κ_i , $i = x, y$) se modifica ao variarmos parâmetros importantes do feixe de Bessel como o raio de Bessel e a altura focal (distância do foco do laser à lamínula). Determinamos o valor de κ_i através da medida e análise das flutuações Brownianas da partícula no potencial óptico. Para isso, utilizamos uma câmera CMOS Basler (Basler acA1920-155uc) a 200 FPS, e filmamos a partícula por aproximadamente 120s. Para gerar uma boa estatística,

¹ Pixel medido no SLM



(c) Perfil do feixe na entrada da objetiva

Figura 49 – **a)** Esquema ilustrando a definição de raio de Bessel (seta vermelha). **b)** Variação do perfil transversal de intensidade do feixe de Bessel para diferentes raios de Bessel, o número no gráfico indica o raio (em pixels) do menor anel de Bessel selecionado no software do SLM para gerar o perfil de Bessel. Detalhes da conversão do valor do raio de Bessel de pixel para mm (na entrada da objetiva) ver [Apêndice C](#). **c)** Fotografia mostrando os anéis do feixe de Bessel na entrada da objetiva. **Fonte:** criação do autor.

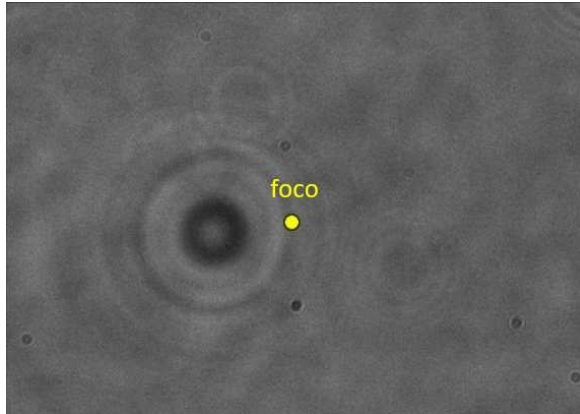
repetimos o processo 5 vezes para cada parâmetro do feixe de Bessel analisado. Note que, como cada partícula pode possuir tamanho e formato levemente diferente da outra, as médias foram tomadas em relação aos experimentos de uma mesma partícula. A fim de verificar a reprodutividade do experimento, nós reproduzimos o processo do parágrafo anterior para 4 partículas distintas e comparamos qualitativamente o resultado obtido que demonstrou a reprodutividade dos experimentos. Através da videomicroscopia nós

obtemos as coordenadas (x,y) do centroide da partícula, das quais podemos obter os histogramas das coordenadas x e y , de modo que κ_i pode ser determinada diretamente a partir da variância da posição das partículas utilizando o método da correção de Wong and Halvorsen (WONG; HALVORSEN, 2006).

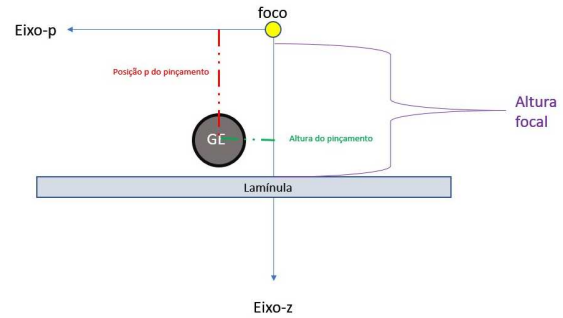
Para todas as configurações utilizadas nesse trabalho, as partículas foram capturadas fora do eixo óptico e abaixo do plano focal como mostrado na [Figura 50a](#) e ilustrado pela [Figura 50b](#). A partícula fica suspensa a cerca de $4 \mu m$ acima da superfície da lamínula e a posição em relação ao foco pode ser controlada modificando a altura da objetiva. O pinçamento fora do eixo óptico é uma característica de armadilhas ópticas construídas com feixe de Bessel como reportado por Rubnov (RUBINOV et al., 2003). Note que nosso feixe está focalizado, isso significa que os raios ópticos que compõem o feixe de Bessel interferem e mudam o padrão tradicional ilustrado pela [Figura 49a](#) à medida que são focalizados, modificando a armadilha como um todo. Além disso, a focalização do feixe de Bessel cria uma dependência ao longo do eixo z do perfil transversal de intensidade o que torna nossa armadilha 3D, diferente das armadilhas ópticas de Bessel não focalizadas que são 2D (RUBINOV et al., 2003). O perfil de intensidade gerado pela focalização do feixe de Bessel possibilitou o aprisionamento das partículas superparamagnéticas (ANDRADE; GARCIA; ROCHA, 2021), sugerindo que a distribuição da intensidade favorece as forças de gradiente em detrimento das forças radiométricas (ou que as forças radiométricas atuam no sentido de aprisionar as partículas) quando comparada com as armadilhas de feixe gaussiano em partículas absorventes. Contudo, o aprisionamento relatado para as partículas superparamagnéticas ocorrem próximas à região focal, o que nos sugere que o pinçamento fora do eixo seja uma característica das partículas de germânio.

A [Figura 50c](#) mostra a variação de κ_x e κ_y em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva) para uma altura focal de $h = 15 \mu m$, potência de 32 mW medida na entrada da objetiva e raio da partícula de $2,48 \mu m$. Note que os valores κ_i oscilam levemente em torno do valor de $\kappa = 0,0085 pN/\mu m$ exceto para $\rho_B = 0,52 mm$, onde $\kappa_x = 0,0022 pN/\mu m$ e $\kappa_y = 0,0029 pN/\mu m$. As barras de erro representam o erro padrão da média de κ_i para as 5 medidas realizadas para cada raio de Bessel. A [Figura 50c](#) mostra a variação da posição média onde ocorre o pinçamento (posição do centroide da partícula) em função do raio de Bessel, as barras de erro representam o erro padrão sobre a média da posição média de pinçamento nas 5 medidas realizadas. Note que, a posição média de pinçamento diminui com o aumento do raio, possuindo um regime linear para os raios de Bessel entre $0,55 mm$ e $0,675 mm$. O aumento do raio de Bessel aumenta o raio do anel central do feixe de Bessel e por consequência ocorre um alargamento do perfil de intensidade do feixe o que ocasiona uma redução na intensidade máxima obtida sobre o eixo óptico conforme mostramos na [Figura 49b](#). Note que a aproximação da partícula ao eixo óptico com o aumento do raio de Bessel é compatível com o fato que κ_i permanece aproximadamente constante ao aumentarmos o raio de Bessel: a diminuição da

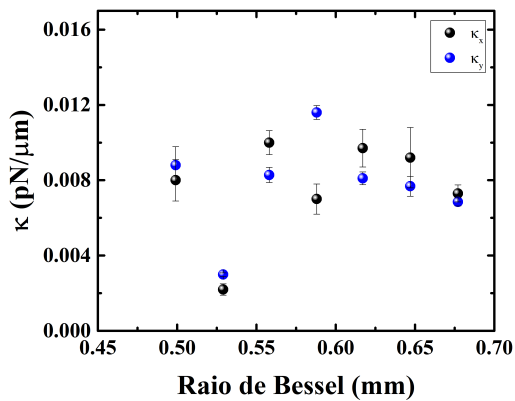
intensidade é compensada pela aproximação ao eixo óptico. Esse resultado é extremamente interessante pois nos permite controlar a posição de pinçamento sem perder eficiência através de um parâmetro de fácil controle no SLM.



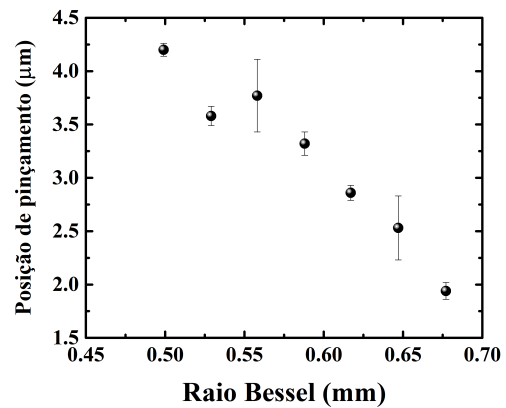
(a) Quadro da posição do pinçamento



(b) Ilustração do pinçamento



(c) Pinçamento variando o raio de Bessel



(d) Posição média do pinçamento

Figura 50 – Pinçamento das partículas de germânio no feixe de Bessel focalizado. altura focal: $h = 10 \mu\text{m}$, potência na entrada da objetiva: 32 mW, raio da partícula $a = 2,4 \mu\text{m}$. **a)** Quadro do vídeo mostrando a posição de pinçamento, círculo amarelo posição do foco. **b)** Esquema ilustrando a configuração do pinçamento, a partícula se encontra fora do eixo óptico e abaixo do plano focal. **c)** Variação da constante de força da pinça (ou rigidez da armadilha) κ em função do raio de Bessel. *Esferas pretas: κ_x . Esferas azuis: κ_y .* **d)** Posição média do pinçamento (distância entre o centroide da partícula e o eixo-óptico) em função do raio de Bessel. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor.

A focalização do feixe de Bessel cria uma dependência com o eixo z do perfil transversal de intensidade convertendo a armadilha do feixe de Bessel em uma armadilha 3D. A Figura 51a mostra o padrão de difração da partícula de germânio ($2.48 \mu\text{m}$ de raio) para diferentes alturas focais (distância entre a lamínula e a posição onde a objetiva focaliza o laser como mostrado na Figura 50b). Note que o padrão de difração da partícula muda quando aumentamos a altura focal o que indica que a posição relativa entre o

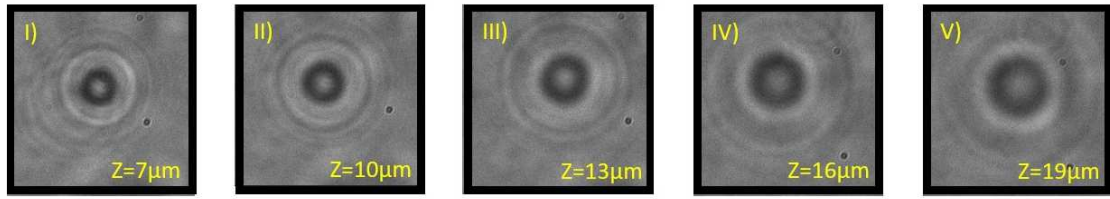
centroide da partícula e a posição de focalização aumenta, implicando que a intensidade local próxima a partícula diminui devido ao aumento da cintura do feixe focalizado. A [Figura 51b](#) mostra a variação de κ_i em função da variação da altura focal para a partícula de germânio para um feixe de Bessel focalizado cuja potência e o raio de Bessel do feixe na entrada da objetiva eram respectivamente $P = 32$ mW e $\rho_B = 0,49$ mm. Nós obtivemos κ_i de maneira análoga ao que foi reportada anteriormente e a altura focal foi mudada através do knob do microscópio mudando a altura da objetiva em relação a lamínula fixa pelo estágio do microscópio. Observe que κ_i decresce à medida que a altura focal aumenta refletindo a variação de intensidade do feixe na posição de equilíbrio da partícula. Como podemos ver na [Figura 51c](#), a diminuição da altura focal aproxima o ponto de equilíbrio estável onde ocorre o pinçamento do eixo óptico.

As características do pinçamento obtidas para o germânio e mostradas na [Figura 50](#) e na [Figura 51](#) são bem distintas das obtidas para as partículas superparamagnéticas pelo nosso grupo (ANDRADE; GARCIA; ROCHA, 2021). Essas diferenças são oriundas das propriedades do germânio e sobretudo pelo fato dele não ser aprisionado próximo ao foco como ocorre com as partículas superparamagnéticas, de modo que o perfil de intensidade do feixe na posição de pinçamento é influenciado pela interferência do campo elétrico ao ser focalizado que é modificado ao variarmos o raio de Bessel ou a altura focal. Outro parâmetro que seria de nosso interesse avaliar como κ se modificaria seria variando a potência. Contudo, ao aumentarmos a potência para valores maiores que 50 mW, medidos na entrada da objetiva, o pinçamento deixa de ocorrer e a partícula começa a executar uma dinâmica oscilatória, parecida com a observada no feixe gaussiano. As propriedades dessa oscilação serão discutidas na próxima seção.

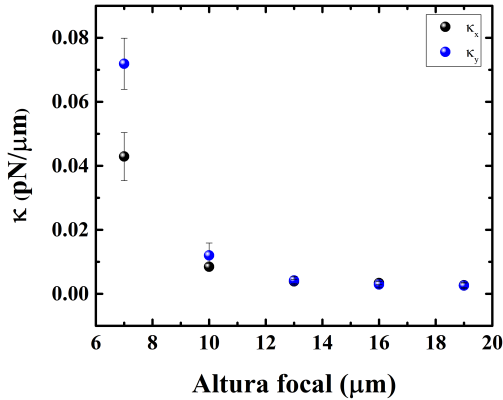
7.2.5 Oscilações no feixe de Bessel

Como mencionamos na seção anterior, o pinçamento das partículas de germânio ocorre no intervalo de potências entre 30 mW e 50 mW. Para potências acima de 50 mW o aprisionamento deixa de ocorrer e as partículas de germânio apresentam uma dinâmica oscilatória. Ao contrário do que foi observado no feixe gaussiano, nenhuma dependência com a direção de polarização do laser foi observada, ou seja, as partículas oscilam sem modificar a direção e as mudanças na amplitude da oscilação são em decorrência de perturbações e não da dependência azimutal da força de gradiente (como pode ser observado no [Apêndice C](#), a variação do ângulo azimutal não implica em uma mudança na amplitude das oscilações). Outra característica das oscilações no feixe de Bessel focalizado é que elas ocorrem também no eixo z , fazendo com que a partícula atravesse o plano focal conforme mostrado na [Figura 52](#).

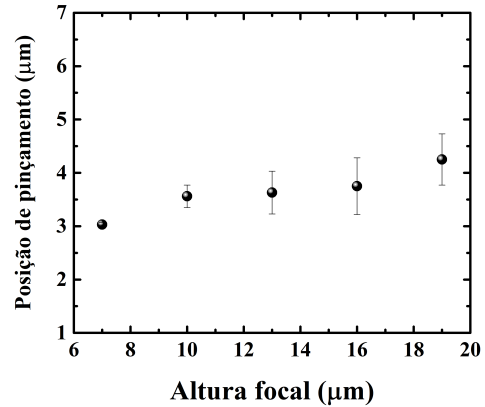
Nós obtivemos o movimento individual de cada partícula de germânio em vários ciclos de oscilação através da videomicroscopia. A filmagem do movimento da partícula foi



(a) Frames variando altura



(b) Pinçamento variando a altura focal



(c) Posição média do pinçamento

Figura 51 – Pinçamento das partículas de germânio no feixe de Bessel focalizado. raio de Bessel: $\rho_b = 0,49 \text{ mm}$, potência na entrada da objetiva: 32 mW, raio da partícula $a = 2,4 \text{ }\mu\text{m}$. **a)** Sucessivos frames de vídeo em diferentes alturas focais mostrando o padrão de difração da partícula. **b)** Variação da constante de força da pinça (ou rigidez da armadilha) κ em função da altura focal h . *Esferas pretas:* κ_x . *Esferas azuis:* κ_y . **c)** Posição média do pinçamento (distância entre o centroide da partícula e o eixo-óptico) em função da altura focal. Barras verticais indicam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor.

realizada com uma câmera CMOS Basler (acA1920-155u) com uma taxa de captura de 160 FPS e uma resolução de $17,1 \text{ pixel}/\mu\text{m}$ (câmera focalizada pela objetiva). A análise do vídeo foi realizada de maneira semelhante ao que fizemos na [subseção 7.1.1](#) e o sistema de coordenadas é o mesmo que o indicado pela [Figura 44b](#) com a única diferença que agora a direção de polarização se encontra sobre o eixo x (direção de polarização do campo elétrico do feixe gaussiano incidente no SLM). A [Figura 53a](#) mostra a variação do deslocamento radial do centroide da partícula ($2,48 \text{ }\mu\text{m}$ de raio) em função do tempo para oscilações paralelas a polarização, para um feixe com $\rho_B = (0,64 \pm 0,02) \text{ mm}$ e potência de 60 mW (medidos na entrada da objetiva) focalizado a $h = 16 \text{ }\mu\text{m}$ acima da lamínula pela objetiva, enquanto que a [Figura 53b](#) mostra a variação do ângulo azimutal da partícula durante a oscilação. As oscilações cujas partículas iniciam o movimento na direção perpendicular a direção de polarização ($\theta = \pi/2$) possuem comportamento semelhante ao mostrado na [Figura 53a](#), nenhuma dependência com o ângulo azimutal foi observada nos experimentos realizados, de modo que a direção de oscilação ocorreu na direção inicial, dentro de um

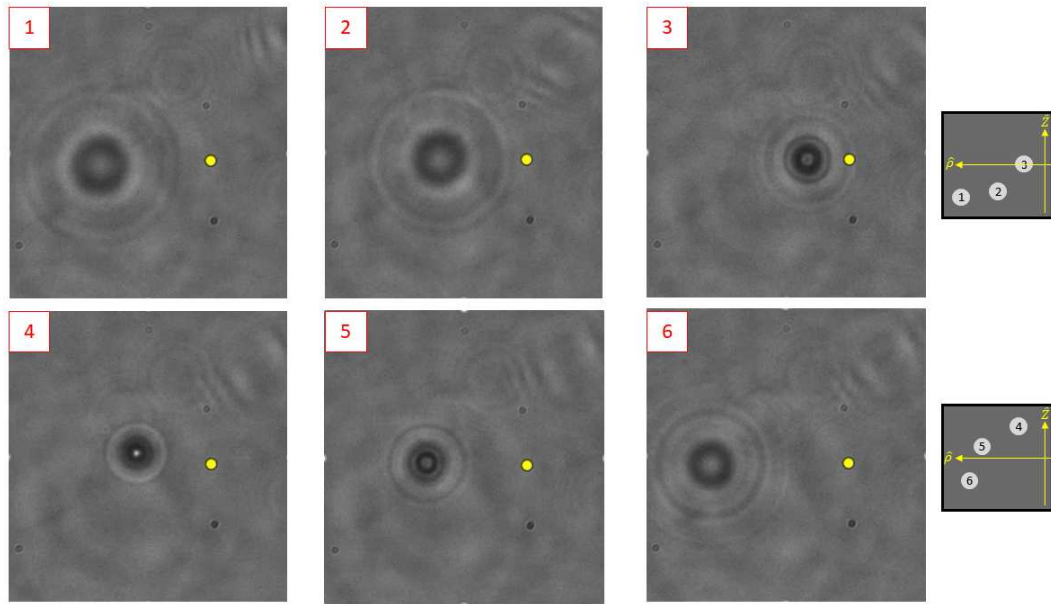
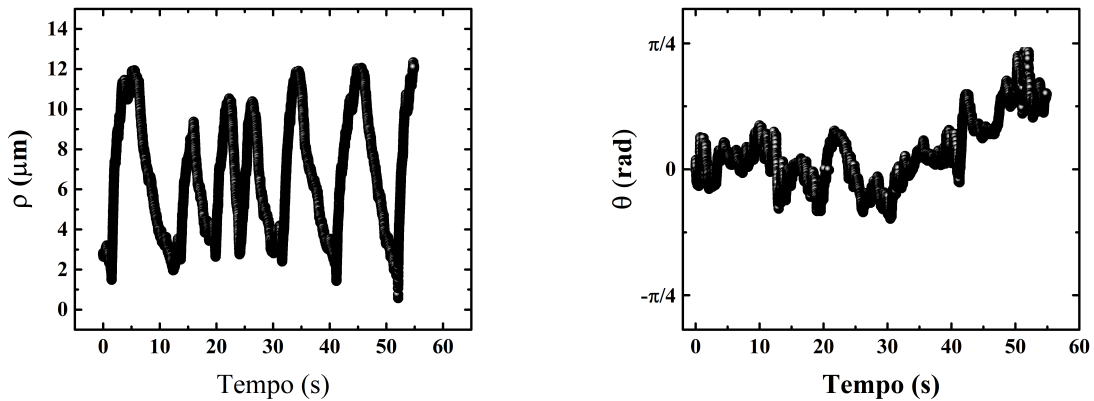


Figura 52 – Sucessivos frames de video mostrando a partícula de Ge executando a dinâmica oscilatória 3D. Os quadros à direita ilustram a posição da partícula em relação ao plano- ρz , note que a partícula cruza o plano focal. Ponto amarelo indica a posição do eixo óptico no plano xy . *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,64 \pm 0,02 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor.

intervalo de $\pm\pi/4$, que decorre devido a perturbação do sistema.



(a) Deslocamento radial em função do tempo

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo

Figura 53 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,64 \pm 0,02 \text{ mm}$; $P = 60 \text{ mW}$; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor.

As oscilações foram observadas em um intervalo estreito de potências que depende do tamanho do raio de Bessel escolhido. Para $\rho_B = 0,499 \text{ mm}$, as oscilações foram observadas no intervalo entre 50 mW a 75mW. Para $\rho_B > 0,5 \text{ mm}$, foi necessário aumentar

a potência para que as oscilações pudessem ser obtidas. Para uma potência de 60 mW foi possível obter oscilações para $0,49 \text{ mm} < \rho_B < 0,71 \text{ mm}$. Outro aspecto importante para que as oscilações fossem observadas era uma grande altura focal (h), o que significa dizer que o feixe focalizado possuía uma grande cintura na posição da partícula. Nós observamos oscilações para o intervalo $15 \text{ }\mu\text{m} < h < 22 \text{ }\mu\text{m}$ quando a potência era 60 mW e $\rho_B = 0,49 \text{ mm}$. Para outros valores de ρ_b o intervalo de h onde foi possível observar as oscilações foram semelhantes. Quando $h < 15 \text{ }\mu\text{m}$, a partícula era atraída para o eixo focal, porem era repelida para uma distância focal onde a intensidade era fraca para atrai-la novamente; comportamento semelhante ocorria quando $h > 22 \text{ }\mu\text{m}$.

Conseguimos aprisionar a partícula novamente quando a potência era 60 mW, $h=16 \text{ }\mu\text{m}$ e $\rho_B = 0,732 \text{ mm}$. A constante de rigidez da armadilha (κ_i i=x,y) e a posição onde a partícula foi capturada foram respectivamente: $\kappa_x = (0,019 \pm 0,001) \text{ pN}/\mu\text{m}$, $\kappa_y = (0,0086 \pm 0,0005) \text{ pN}/\mu\text{m}$ e $\rho = (4,07 \pm 0,11) \text{ }\mu\text{m}$. Note que o valor obtido para κ está de acordo com o que encontramos na [subseção 7.2.4.1](#) e também compatível com o valor de $\kappa = (3,5 \pm 0,7) \times 10^{-3} \text{ pN}/\mu\text{m}$ obtido para o silício na [seção 5.2](#).

Variando o tamanho do raio de Bessel (na entrada da objetiva) é possível modular a amplitude da oscilação, como ilustra a [Figura 54a](#). A amplitude foi obtida subtraindo o deslocamento máximo (ρ_{max}) do deslocamento mínimo (ρ_{min} , ou aproximação máxima ao eixo óptico) consecutivos, foi realizada uma média sobre a amplitude de 1 experimento para cada ρ_B e as barras de erro correspondem ao erro padrão da média, a potência utilizada foi 60 mW e $h = 16 \text{ }\mu\text{m}$. O comportamento qualitativo da variação da amplitude em função de ρ_B foi comparado com o resultado obtido para outros experimentos com a mesma partícula e com partículas diferentes, todos os resultados foram qualitativamente semelhantes ao mostrado pela [Figura 54a](#). Note que a amplitude aumenta no intervalo $0,49 \text{ }\mu\text{m} \leq \rho_B \leq 0,645 \text{ }\mu\text{m}$ e depois decresce até que em $\rho_B = 0,732 \text{ mm}$ a partícula deixa de oscilar sendo aprisionada em $\rho = 4,07 \text{ }\mu\text{m}$.

A [Figura 54b](#) mostra a variação média do período em função de ρ_B quando a potência na entrada da objetiva era de 60 mW e $h = 16 \text{ }\mu\text{m}$, os pontos representam a média sobre um experimento e a barra de erro representa o erro padrão da média. O período foi obtido calculando o intervalo de tempo gasto para que a partícula se desloque entre dois ρ_{min} consecutivos. Diferentemente da amplitude, a variação do período não teve um comportamento consistente com a variação de ρ_B . A inconsistência no comportamento do período das oscilações acontece porque o perfil de intensidade criando pela interferência do campo elétrico cria posições (ρ, z) onde a partícula é desacelerada (considerando o movimento em direção ao eixo óptico) podendo inclusive executar pequenas oscilações enquanto seu movimento líquido é de se aproximar do eixo óptico. A [Figura 54c](#) ilustra a oscilação quando $\rho_B = 0,61 \text{ mm}$, com os círculos vermelhos mostrando o efeito discutido no parágrafo anterior. Para calcular o período das oscilações onde esse efeito ocorre,

consideramos o tempo imediatamente anterior ao tempo onde essas “mini oscilações” ocorrem, de modo que o valor médio apresentado na [Figura 54b](#) para os raios de Bessel que apresentarem esse efeito estão subestimados. Além de $\rho_B = 0,61$ mm, para $\rho_B = 0,55$ mm esse efeito também ocorre de forma mais proeminente, mas de forma geral, esse efeito foi observado para todos os valores de ρ_B , como por exemplo ocorre em $t = 30$ s na [Figura 53a](#), no [Apêndice C](#) nós mostramos o perfil das oscilações das partículas de germânio para cada um dos raios de Bessel discutidos nesse trabalho.

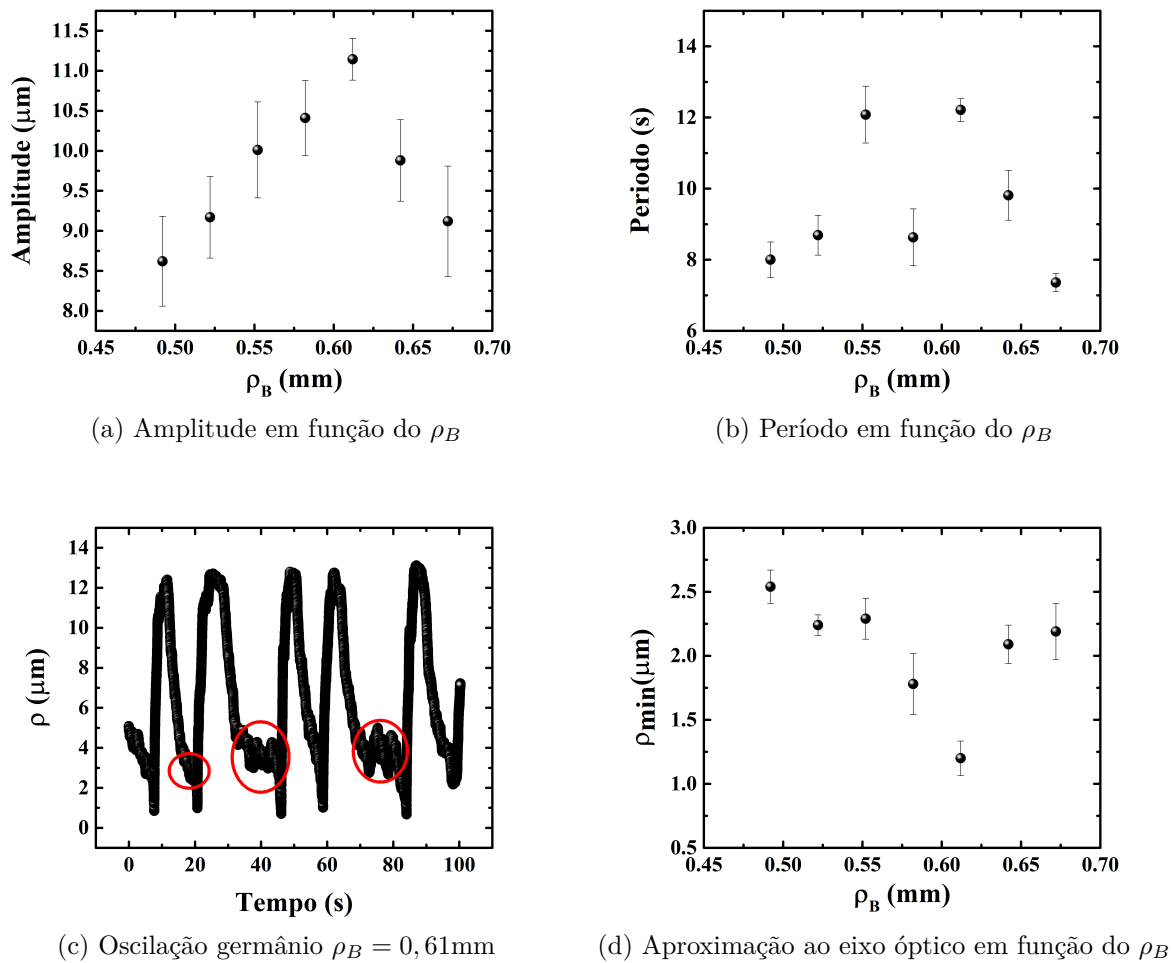


Figura 54 – **a)** Amplitude média de oscilação em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). **b)** Período médio das oscilações em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). **c)** Deslocamento radial da partícula de germânio em função do tempo para $\rho_b = 0,61$ mm. Os círculos vermelhos indicam o efeito de desaceleração (ou pequenas oscilações) causado pela interferência do campo elétrico do feixe de Bessel ao ser focalizado. **d)** Média da aproximação máxima ao eixo óptico (ρ_{min}) em função do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva). As barras verticais representam o erro padrão da média. **Fonte:** criação do autor.

A [Figura 54d](#) mostra a aproximação máxima que a partícula de germânio faz ao eixo óptico (ρ_{min}) durante as oscilações em função de ρ_B . Os pontos foram obtidos

fazendo a média da aproximação máxima ao eixo óptico durante as oscilações e as barras de erro indicam o erro padrão da média. Note que ρ_{min} decresce no intervalo $0,50 \mu m < \rho_B < 0,61 \mu m$, aumenta no intervalo $0,61 \mu m < \rho_B < 0,65 \mu m$ e se mantém estável no intervalo $0,65 \mu m < \rho_B < 0,67 \mu m$. Para $\rho_B = 0,67 \mu m$, a partícula é capturada em $\rho = (4,45 \pm 0,40) \mu m$ mas apresenta oscilações se a partícula se aproximar de eixo óptico devido a algum agente externo. Porém, para $\rho_B \leq 0,73 \mu m$ ela é aprisionada em $\rho = 4,07 \mu m$, sem que nenhuma oscilação fosse observada mesmo aproximando a partícula do eixo (detalhes [Apêndice C](#)). O comportamento observado para ρ_{min} se assemelha ao que observamos para a posição de pinçamento das partículas de germânio relatadas na [Figura 50d](#). Ao aumentarmos ρ_B , a intensidade do feixe é “diluída” devido ao aumento do raio do anel central do feixe de Bessel incidente na objetiva, com isso a partícula precisa se aproximar mais do eixo óptico para que possa se aproximar da intensidade que é necessária para que ocorra a oscilação. Contudo, para $\rho_B > 0,67 \mu m$, os efeitos de interferência do campo elétrico mudam o perfil de intensidade a ponto de modificar as oscilações e permitir o aprisionamento das partículas. Assim, o aumento em ρ_{min} diminui a intensidade local na posição da partícula e modifica o perfil de intensidade permitindo o aprisionamento da partícula próximo de $\rho = 4 \mu m$ quando $\rho_B > 0,73 \mu m$.

O comportamento observado para as partículas de germânio na armadilha óptica construída a partir do feixe de Bessel focalizado é interessante pois permite que tenhamos dois comportamentos distintos: a partícula é aprisionada e manipulada como uma partícula dielétrica e a partícula apresenta a dinâmica oscilatória. Isso amplia as possibilidades de uso das partículas semicondutoras, principalmente considerando que a ordem de grandeza obtida para κ é de até femto-Newton por micrômetro, que é algo muito difícil de se obter com partículas de tamanho na ordem de micrômetros, permitindo o uso de partículas de germânio para o estudo de diversos sistemas interessantes, onde baixas forças são necessárias. Além disso, como mencionamos no início da seção, a armadilha se mostrou eficiente em capturar partículas absorventes, como as partículas superparamagnéticas, o que serviu de inspiração para tentarmos aprisionar as partículas de germânio. Embora o aprisionamento tenha sido possível, as características dele foram bem diferentes da que observamos nas partículas superparamagnéticas. Note que é extremamente complicado inferir se o aprisionamento fora do eixo óptico é decorrente de alguma característica do perfil de intensidade, que devido à focalização do feixe não possui mais o perfil descrito pela [Figura 49](#), ou se é decorrente de alguma força repulsiva de origem térmica ou devido as forças de espalhamento.

Outra possibilidade para justificar a diferença entre o aprisionamento entre as partículas de germânio e as partículas superparamagnéticas é baseada no modelo desenvolvido no [Capítulo 6](#). Diferente das partículas superparamagnéticas, a absorção das partículas de germânio aumenta a densidade de portadores, modificando as propriedades ópticas, e consequentemente as características da armadilha. Como mostramos na [seção 6.2](#), para

uma partícula de Rayleigh e para um feixe gaussiano focalizado, o aprisionamento fora do eixo (e do plano focal) surge como uma consequência da geração de portadores não ser suficiente para inverter a força de gradiente, criando posições (ρ, z) onde a força de espalhamento se iguala à força de gradiente, deslocando a posição de equilíbrio estável. Essa hipótese justificaria não apenas a diferença entre o aprisionamento das partículas como também a necessidade de aumentar a potência (em relação ao feixe gaussiano) para a ocorrência das oscilações, pois como o feixe de Bessel distribui a intensidade em vários máximos secundários, para que o máximo central tenha o mesmo fluxo de fótons (que do feixe gaussiano), seria necessária uma potência maior do laser. Além disso, ao aumentarmos ρ_B , o fluxo de fótons no máximo central diminui, o que justifica o pinçamento para $\rho_B > 0,67$ mm, uma vez que o fluxo de fótons não seria suficiente para gerar a inversão da força de gradiente.

7.3 Conclusão

As partículas de germânio suspensas em água apresentam a dinâmica oscilatória nas duas configurações estudadas nesse trabalho, com características particulares a cada configuração. No feixe gaussiano, nós observamos que a oscilação das partículas são sensíveis à direção de polarização do feixe do laser e que as oscilações foram observadas em um grande intervalo de potências (entre 35 mW e 100 mW, medida na entrada da objetiva), além disso, modificando a configuração experimental (para a configuração semelhante a utilizada nos experimentos do silício) podemos perceber que as oscilações das partículas de germânio apresentam o mesmo caráter oscilatório 3D observado nas partículas de silício. Por outro lado, no feixe de Bessel, elas não apresentaram dependência com a direção de polarização e a dinâmica oscilatória (3D) só foi observada para potências acima de 50 mW (medida na entrada da objetiva), para um intervalo do valor do raio de Bessel (medido na entrada da objetiva) $0,49 \text{ mm} \leq \rho_B \leq 0,67 \text{ mm}$ e para o intervalo da altura focal $15 \mu\text{m} \leq h \leq 22 \mu\text{m}$.

Outra característica da configuração usando o feixe de Bessel foi a capacidade de aprisionar as partículas de germânio, isso ocorreu quando a potência era inferior a 50 mW ou quando o raio de Bessel era maior que $\rho_B = 0,732$ mm (medido na entrada da objetiva) para potências maiores que 50 mW. Nas duas situações o aprisionamento ocorria fora do eixo-óptico e abaixo do plano focal, com uma rigidez da armadilha da ordem de femto-Newton (por micrômetro). Essa característica das armadilhas construídas com o feixe de Bessel focalizado permite a construção de armadilhas híbridas, onde é possível manipular e induzir a dinâmica oscilatória sobre as micropartículas de germânio modificando parâmetros simples como a potência ou o raio de Bessel (que é controlado pelo software do SLM) o que permite expandir o leque de opções para o uso dos semicondutores como ferramentas para pinças ópticas. Por exemplo, pode-se conduzir a partícula para uma

determinada região do sistema e então induzir as oscilações naquela região, o que pode ser muito útil para estudar reologia de sistemas não uniformes, ou para realizar estiramentos na molécula de DNA que pode ser realizada de maneira convencional através do deslocamento do estágio do microscópio ou através das oscilações da partícula. Outro ponto interessante do aprisionamento das partículas de germânio é a escala de força (femto-Newton por micrômetro) que é muito difícil de se obter em partículas micrométricas, mas parece ser a ordem de grandeza do aprisionamento das partículas semicondutoras (como o germânio e o silício).

Por fim, nós modificamos o modelo utilizado para explicar as oscilações nas partículas de germânio no feixe gaussiano. Baseados nos resultados do [Capítulo 6](#) e no modelo desenvolvido para o silício no [Capítulo 5](#), podemos elaborar um modelo efetivo que contabiliza as forças ópticas (gradiente e radiométrica) incluindo os efeitos da geração de portadores sobre a polarizabilidade da partícula que se ajusta melhor aos resultados experimentais.

Referências

ALVES, P.; ROCHA, M. Videomicroscopy calibration of optical tweezers by position autocorrelation function analysis. *Applied Physics B*, Springer, v. 107, n. 2, p. 375–378, 2012.

AMARAL, J.; LIMA, C. Moldando a luz: a física por trás dos feixes ópticos. *Revista Brasileira de Ensino de Física*, SciELO Brasil, v. 43, 2021.

AMBROSIO, L. A.; GOUESBET, G. On transverse radiation pressure cross-sections in the generalized lorenz–mie theory and their numerical relationship with the dipole theory of forces. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Elsevier, v. 261, p. 107491, 2021.

AMENDOLA, V.; MENEGHETTI, M. What controls the composition and the structure of nanomaterials generated by laser ablation in liquid solution? *Physical Chemistry Chemical Physics*, Royal Society of Chemistry, v. 15, n. 9, p. 3027–3046, 2013.

ANDRADE, U.; GARCIA, A.; ROCHA, M. Bessel beam optical tweezers for manipulating superparamagnetic beads. *Applied Optics*, Optical Society of America, v. 60, n. 12, p. 3422–3429, 2021.

ASHKIN, A. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, American Physical Society, v. 24, p. 156–159, Jan 1970. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.24.156>>.

ASHKIN, A. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Physical review letters*, APS, v. 24, n. 4, p. 156, 1970.

ASHKIN, A. Trapping of atoms by resonance radiation pressure. *Physical Review Letters*, APS, v. 40, n. 12, p. 729, 1978.

ASHKIN, A. Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime. *Biophysical journal*, Elsevier, v. 61, n. 2, p. 569–582, 1992.

ASHKIN, A. *OPTICAL TRAPPING AND MANIPULATION OF NEUTRAL PARTICLES USING LASERS: A REPRINT VOLUME WITH COMMENTARIES*. [S.l.]: World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2006. ISBN 981-02-4057-0.

ASHKIN, A.; DZIEDZIC, J. M. Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres. *Phys. Rev. Lett.*, American Physical Society, v. 38, p. 1351–1354, Jun 1977. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.38.1351>>.

ASHKIN, A.; DZIEDZIC, J. M. Optical trapping and manipulation of viruses and bacteria. *Science*, American Association for the Advancement of Science, v. 235, n. 4795, p. 1517–1520, 1987.

ASHKIN, A.; DZIEDZIC, J. M.; BJORKHOLM, J. E.; CHU, S. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles. *Optics letters*, Optical Society of America, v. 11, n. 5, p. 288–290, 1986.

- BARTON, J.; ALEXANDER, D.; SCHAUB, S. Internal and near-surface electromagnetic fields for a spherical particle irradiated by a focused laser beam. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 64, n. 4, p. 1632–1639, 1988.
- BARTON, J. P.; ALEXANDER, D. R. Fifth-order corrected electromagnetic field components for a fundamental gaussian beam. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 66, n. 7, p. 2800–2802, 1989.
- BAZONI, R.; MOURA, T.; ROCHA, M. Hydroxychloroquine exhibits a strong complex interaction with dna: Unraveling the mechanism of action. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, ACS Publications, v. 11, n. 22, p. 9528–9534, 2020.
- BLAKEMORE, J. Semiconducting and other major properties of gallium arsenide. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 53, n. 10, p. R123–R181, 1982.
- BOCHOVE, E. J.; WALKUP, J. F. A communication on electrical charge relaxation in metals. *American Journal of Physics*, American Association of Physics Teachers, v. 58, n. 2, p. 131–134, 1990.
- BOYD, R. W. *Nonlinear optics*. [S.l.]: Academic press, 2020.
- BUSTAMANTE, C.; ALEXANDER, L.; MACIUBA, K.; KAISER, C. M. Single-molecule studies of protein folding with optical tweezers. *Annual review of biochemistry*, Annual Reviews, v. 89, p. 443–470, 2020.
- CAMPOS, W. H.; FONSECA, J. M.; CARVALHO, V. E. de; MENDES, J. B. S.; ROCHA, M. S.; MOURA-MELO, W. A. Topological insulator particles as optically induced oscillators: Toward dynamical force measurements and optical rheology. *ACS Photonics*, v. 5, n. 3, p. 741–745, 2018. Disponível em: <<https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.7b01322>>.
- CAMPOS, W. H.; FONSECA, J. M.; MENDES, J. B.; ROCHA, M. S.; MOURA-MELO, W. A. How light absorption modifies the radiative force on a microparticle in optical tweezers. *Applied optics*, Optical Society of America, v. 57, n. 25, p. 7216–7224, 2018.
- CAMPOS, W. H.; MOURA, T. A.; MARQUES, O. J. B. J.; FONSECA, J. M.; MOURA-MELO, W. A.; ROCHA, M. S.; MENDES, J. B. S. Germanium microparticles as optically induced oscillators in optical tweezers. *Phys. Rev. Research*, American Physical Society, v. 1, p. 033119, Nov 2019. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevResearch.1.033119>>.
- DAVIS, L. Theory of electromagnetic beams. *Physical Review A*, APS, v. 19, n. 3, p. 1177, 1979.
- DUTRA, R.; VIANA, N.; NETO, P. M.; NUSSENZVEIG, H. Polarization effects in optical tweezers. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, IOP Publishing, v. 9, n. 8, p. S221, 2007.
- FANG, M.; WANG, Z.; GU, H.; TONG, M.; SONG, B.; XIE, X.; ZHOU, T.; CHEN, X.; JIANG, H.; JIANG, T. et al. Layer-dependent dielectric permittivity of topological insulator Bi_2Se_3 thin films. *Applied Surface Science*, Elsevier, v. 509, p. 144822, 2020.
-

- FANG, M.; WANG, Z.; GU, H.; TONG, M.; SONG, B.; XIE, X.; ZHOU, T.; CHEN, X.; JIANG, H.; JIANG, T. et al. Layer-dependent dielectric permittivity of topological insulator Bi_2Se_3 thin films. *Applied Surface Science*, Elsevier, v. 509, p. 144822, 2020.
- FAZAL, F. M.; BLOCK, S. M. Optical tweezers study life under tension. *Nature photonics*, Nature Publishing Group, v. 5, n. 6, p. 318–321, 2011.
- FOX, M. *Optical properties of solids*. [S.l.]: American Association of Physics Teachers, 2002.
- GALLANT, M.; DRIEL, H. V. Infrared reflectivity probing of thermal and spatial properties of laser-generated carriers in germanium. *Physical Review B*, APS, v. 26, n. 4, p. 2133, 1982.
- GAMALY, E. G.; RODE, A. Transient optical properties of dielectrics and semiconductors excited by an ultrashort laser pulse. *JOSA B*, Optical Society of America, v. 31, n. 11, p. C36–C43, 2014.
- GARRETT, A. B. The discovery of the transistor: W. Shockley, J. Bardeen, and W. Brattain. *Journal of Chemical Education*, ACS Publications, v. 40, n. 6, p. 302, 1963.
- GOUESBET, G.; MAHEU, B.; GRÉHAN, G. Light scattering from a sphere arbitrarily located in a gaussian beam, using a Bromwich formulation. *JOSA A*, Optical Society of America, v. 5, n. 9, p. 1427–1443, 1988.
- HARADA, Y.; ASAKURA, T. Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime. *Optics communications*, Elsevier, v. 124, n. 5-6, p. 529–541, 1996.
- HULST, H. C.; HULST, H. C. van de. *Light scattering by small particles*. [S.l.]: Courier Corporation, 1981.
- JIANG, Y.; PILLAI, S.; GREEN, M. A. Realistic silver optical constants for plasmonics. *Scientific reports*, Nature Publishing Group, v. 6, n. 1, p. 1–7, 2016.
- JOHNSON, P. B.; CHRISTY, R.-W. Optical constants of the noble metals. *Physical Review B*, APS, v. 6, n. 12, p. 4370, 1972.
- JONES, P. H.; MARAGÒ, O. M.; VOLPE, G. *Optical tweezers: Principles and applications*. [S.l.]: Cambridge University Press, 2015.
- KITTEL, C.; MCEUEN, P. *Kittel's Introduction to Solid State Physics*. [S.l.]: John Wiley & Sons, 2018.
- KOGELNIK, H.; LI, T. Laser beams and resonators. *Applied Optics*, Optical Society of America, v. 5, n. 10, p. 1550–1567, 1966.
- MARTINEZ, G.; PIOT, B.; HAKL, M.; POTEMSKI, M.; HOR, Y.; MATERNA, A.; STRZELECKA, S.; HRUBAN, A.; CAHA, O.; NOVÁK, J. et al. Determination of the energy band gap of Bi_2Se_3 . *Scientific reports*, Nature Publishing Group, v. 7, n. 1, p. 1–5, 2017.
- MAZOLLI, A.; NETO, P. M.; NUSSENZVEIG, H. Theory of trapping forces in optical tweezers. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, The Royal Society, v. 459, n. 2040, p. 3021–3041, 2003.
-

MCPEAK, K. M.; JAYANTI, S. V.; KRESS, S. J.; MEYER, S.; IOTTI, S.; ROSSINELLI, A.; NORRIS, D. J. Plasmonic films can easily be better: rules and recipes. *ACS photonics*, ACS Publications, v. 2, n. 3, p. 326–333, 2015.

MEYER, J.; BARTOLI, F.; KRUEER, M. Optical heating in semiconductors. *Physical Review B*, APS, v. 21, n. 4, p. 1559, 1980.

MEYER, J.; KRUEER, M.; BARTOLI, F. Optical heating in semiconductors: Laser damage in ge, si, insb, and gaas. *Journal of Applied Physics*, American Institute of Physics, v. 51, n. 10, p. 5513–5522, 1980.

MOURA, T.; ANDRADE, U.; MENDES, J.; ROCHA, M. Silicon microparticles as handles for optical tweezers experiments. *Optics Letters*, Optical Society of America, v. 45, n. 5, p. 1055–1058, 2020.

MURPHY, C. J. Sustainability as an emerging design criterion in nanoparticle synthesis and applications. *Journal of Materials Chemistry*, Royal Society of Chemistry, v. 18, n. 19, p. 2173–2176, 2008.

NETO, P. M.; NUSSENZVEIG, H. Theory of optical tweezers. *EPL (Europhysics Letters)*, IOP Publishing, v. 50, n. 5, p. 702, 2000.

NIEMINEN, T. A.; HECKENBERG, N. R.; RUBINSZTEIN-DUNLOP, H. Forces in optical tweezers with radially and azimuthally polarized trapping beams. *Optics letters*, Optical Society of America, v. 33, n. 2, p. 122–124, 2008.

NUNLEY, T. N.; FERNANDO, N. S.; SAMARASINGHA, N.; MOYA, J. M.; NELSON, C. M.; MEDINA, A. A.; ZOLLNER, S. Optical constants of germanium and thermally grown germanium dioxide from 0.5 to 6.6 ev via a multisample ellipsometry investigation. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, American Vacuum Society, v. 34, n. 6, p. 061205, 2016.

NUNLEY, T. N.; FERNANDO, N. S.; SAMARASINGHA, N.; MOYA, J. M.; NELSON, C. M.; MEDINA, A. A.; ZOLLNER, S. Optical constants of germanium and thermally grown germanium dioxide from 0.5 to 6.6 ev via a multisample ellipsometry investigation. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, American Vacuum Society, v. 34, n. 6, p. 061205, 2016.

OLIVEIRA, L.; CAMPOS, W. H.; ROCHA, M. S. Optical trapping and manipulation of superparamagnetic beads using annular-shaped beams. *Methods and Protocols*, Multidisciplinary Digital Publishing Institute, v. 1, n. 4, p. 44, 2018.

POLIMENO, P.; MAGAZZU, A.; IATI, M. A.; PATTI, F.; SAIJA, R.; BOSCHI, C. D. E.; DONATO, M. G.; GUCCIARDI, P. G.; JONES, P. H.; VOLPE, G. et al. Optical tweezers and their applications. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Elsevier, v. 218, p. 131–150, 2018.

REN, K.; GREHA, G.; GOUESBET, G. Radiation pressure forces exerted on a particle arbitrarily located in a gaussian beam by using the generalized lorenz-mie theory, and associated resonance effects. *Optics communications*, Elsevier, v. 108, n. 4-6, p. 343–354, 1994.

- REN, K.; GRÉHAN, G.; GOUESBET, G. Prediction of reverse radiation pressure by generalized lorenz–mie theory. *Applied optics*, Optical Society of America, v. 35, n. 15, p. 2702–2710, 1996.
- REZENDE, S. M. *Materiais e dispositivos eletrônicos*. [S.l.]: Editora Livraria da Física, 2004.
- REZENDE, S. M. *Materiais e dispositivos eletrônicos*. [S.l.]: Editora Livraria da Física, 2004.
- RICHARDS, B.; WOLF, E. Electromagnetic diffraction in optical systems, ii. structure of the image field in an aplanatic system. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, The Royal Society London, v. 253, n. 1274, p. 358–379, 1959.
- ROCHA, M. Optical tweezers for undergraduates: theoretical analysis and experiments. *American Journal of Physics*, American Association of Physics Teachers, v. 77, n. 8, p. 704–712, 2009.
- ROHRBACH, A. Stiffness of optical traps: quantitative agreement between experiment and electromagnetic theory. *Physical review letters*, APS, v. 95, n. 16, p. 168102, 2005.
- RUBINOV, A.; EV, A. A.; ERMOLAEV, I.; KUROCHKIN, Y. A.; MIKHNEVICH, S. Y. Localization of spherical particles under the action of gradient forces in the field of a zero-order bessel beam. rayleigh–gans approximation. *Journal of Applied Spectroscopy*, Springer, v. 70, n. 4, p. 565–572, 2003.
- SAKAI, K.; NODA, S. Optical trapping of metal particles in doughnut-shaped beam emitted by photonic-crystal laser. *Electronics Letters*, IET, v. 43, n. 2, p. 107–108, 2007.
- SATO, S.; HARADA, Y.; WASEDA, Y. Optical trapping of microscopic metal particles. *Optics letters*, Optical Society of America, v. 19, n. 22, p. 1807–1809, 1994.
- SATO, S.; IKEDA, T.; HAMADA, K.; KIMURA, K. Size regulation by bandgap-controlled etching: Application to germanium nanoparticles. *Solid state communications*, Elsevier, v. 149, n. 21-22, p. 862–865, 2009.
- SCHINKE, C.; PEEST, P. C.; SCHMIDT, J.; BRENDEL, R.; BOTHE, K.; VOGT, M. R.; KRÖGER, I.; WINTER, S.; SCHIRMACHER, A.; LIM, S. et al. Uncertainty analysis for the coefficient of band-to-band absorption of crystalline silicon. *AIP Advances*, AIP Publishing LLC, v. 5, n. 6, p. 067168, 2015.
- SHVEDOV, V.; DAVOYAN, A. R.; HNATOVSKY, C.; ENGHETA, N.; KROLIKOWSKI, W. A long-range polarization-controlled optical tractor beam. *Nature photonics*, Nature Publishing Group, v. 8, n. 11, p. 846–850, 2014.
- SOKOLOWSKI-TINTEN, K.; LINDE, D. von der. Generation of dense electron-hole plasmas in silicon. *Physical Review B*, APS, v. 61, n. 4, p. 2643, 2000.
- STAGNI, L. A simple theory of the laser-induced damage in semiconductors. *Applied physics*, Springer, v. 12, n. 1, p. 31–37, 1977.
- SZE, S.; IRVIN, J. Resistivity, mobility and impurity levels in gaas, ge, and si at 300 k. *Solid-State Electronics*, Elsevier, v. 11, n. 6, p. 599–602, 1968.
-

TAN, C.-S.; LU, M.-Y.; PENG, W.-H.; CHEN, L.-J.; HUANG, M. H. Germanium possessing facet-specific trap states and carrier lifetimes. *The Journal of Physical Chemistry C*, ACS Publications, v. 124, n. 24, p. 13304–13309, 2020.

WONG, W. P.; HALVORSEN, K. The effect of integration time on fluctuation measurements: calibrating an optical trap in the presence of motion blur. *Optics express*, Optical Society of America, v. 14, n. 25, p. 12517–12531, 2006.

YEH, T.-T.; SHIRAI, H.; TU, C.-M.; FUJI, T.; KOBAYASHI, T.; LUO, C.-W. Ultrafast carrier dynamics in ge by ultra-broadband mid-infrared probe spectroscopy. *Scientific reports*, Nature Publishing Group, v. 7, n. 1, p. 1–10, 2017.

ZHANG, H.; LIU, K.-K. Optical tweezers for single cells. *Journal of the Royal Society interface*, The Royal Society London, v. 5, n. 24, p. 671–690, 2008.

ZHONG, M.-C.; LIU, A.-Y.; JI, F. Opto-thermal oscillation and trapping of light absorbing particles. *Optics express*, Optical Society of America, v. 27, n. 21, p. 29730–29737, 2019.

APÊNDICE A – Processo de síntese das partículas através da técnica de ablação a laser em solução líquida

As partículas utilizadas nesse trabalho foram sintetizadas através da técnica de ablação a laser em solução líquida (ALSL). Entre as principais vantagens de se utilizar a ALSL para sintetizar partículas e nano materiais podemos destacar:

- É uma técnica bastante versátil, com mínimas mudanças nos parâmetros é possível sintetizar uma variedade de materiais((AMENDOLA; MENEGHETTI, 2013)).
- É uma técnica que atende aos requisitos da chamada "química verde", não sendo necessário o uso de substâncias químicas e não gerado resíduos tóxicos((MURPHY, 2008)).
- É uma técnica barata (em comparação as outras rotas de síntese de partículas), pois a operação e o arranjo experimental necessários são mínimos, os percussores químicos são substituídos pelos materiais alvo e outros produtos químicos caros raramente são usados.
- De uma forma geral, a ALSL é a mais rápida, barata e limpa maneira de produzir partículas coloidais no intervalo entre dezenas de nanômetros até milímetros.

A técnica consiste na remoção de material de uma superfície sólida pela irradiação com um feixe de laser (geralmente pulsado). A luz do laser penetra no material através da superfície, a alta intensidade do campo elétrico local gerado pela luz do laser é suficiente para remover elétrons do bulk da amostra, fazendo com que eles se comportem como elétrons livres. Os elétrons livres são gerados com uma grande energia cinética, ao colidir com os átomos do bulk da amostra, essa energia cinética é convertida em calor levando ao aquecimento da superfície da amostra e conseqüentemente a vaporização da superfície. Quando a fluência do laser é o suficiente, partes da superfície da amostra (chamadas de semente) serão transferidas para o estado de plasma (formando uma nuvem de plasma). A diferença entre a pressão do plasma da semente e do meio em volta (líquido) leva a uma rápida expansão e resfriamento do plasma gerando as partículas coloidais. Os parâmetros da síntese são divididos em duas categorias: parâmetros do material (material alvo, solventes e solutos, temperatura do sistema e pressão) e parâmetros do laser (comprimento

de onda, duração do pulso, energia, taxa de repetição, número de pulsos de laser e área do spot do laser sobre o alvo) ¹. A Figura 55 ilustra o processo geral da ALSL.

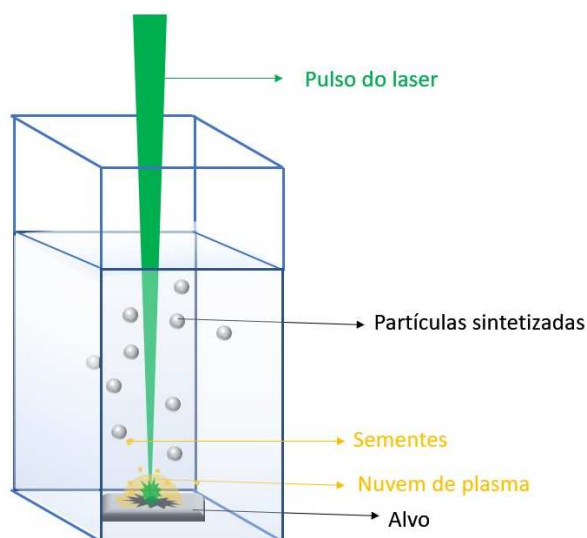


Figura 55 – Esquema ilustrando o processo de síntese de partículas através da técnica de ALSL em água deionizada. **Fonte:** adaptado da referência (AMENDOLA; MENEGHETTI, 2013).

Para a produção das partículas utilizadas nesse trabalho a ALSL foi realizada em um laser Nd:YAG Quantel, modelo Brilliant B. A luz do laser usado para a ablação foi a onda de segundo harmônico ($\omega = 532$ nm) com uma energia de pulso de 70 mJ e 10 Hz no regime de nanosegundos. A configuração experimental usada para sintetizar as micropartículas consiste em cristais de germânio (pureza 99,99%) como material alvo imerso em 10 ml de água destilada como líquido de trabalho para a ablação. O laser foi focalizado sobre a superfície do germânio sob uma camada líquida de aproximadamente 10 mm de espessura com um spot de cerca de 1 mm de diâmetro usando uma lente focal de 50 mm. O alvo era movido perpendicularmente ao feixe de laser durante 5 minutos para irradiar superfícies frescas durante todo o processo. Os experimentos foram conduzidos em temperatura ambiente ($T \simeq 295$ K) e pressão de 1 atm.

As partículas de silício foram sintetizadas de forma similar utilizando o segundo harmônico ($\omega = 532$ nm) com uma energia de pulso de 50 mJ e 10Hz no regime de nanosegundos. O laser foi focalizado sobre a superfície do alvo de silício (pureza 99,99%) sob uma camada líquida de aproximadamente 10 mm de espessura com um spot de cerca de 1 mm de diâmetro usando uma lente focal de 50 mm. O alvo era movido perpendicularmente ao feixe de laser durante 10 minutos para irradiar superfícies frescas durante todo o processo. Os experimentos foram conduzidos em temperatura ambiente ($T \simeq 295$ K) e pressão de 1 atm.

¹ Para mais detalhes sobre o processo de ablação consultar a referência (AMENDOLA; MENEGHETTI, 2013)

Análise de espectroscopia Raman mostrou que o processo de ablação não modificou a estrutura química das partículas semicondutoras (conforme pode ser visto na [Figura 42b](#)). A alta qualidade e o formato esférico das partículas foram confirmadas através de microscopia eletrônica de varredura (MEV), conforme mostram a [Figura 42a](#) para o germânio e a [Figura 18](#) para as partículas de silício. Esses resultados demonstram que a ALSL é uma excelente técnica para sintetizar partículas semicondutoras para o uso em pinças ópticas produzindo partículas com formato esférico, baixo custo de produção e síntese simples de ser realizada.

APÊNDICE B – Feixes Ópticos

Nesse capítulo iremos deduzir a equação de Helmholtz e resolve-la para obter os feixes ópticos Gaussiano e de Bessel. Esse capítulo foi baseado no trabalho realizado por Amaral e Lima e publicado na revista Brasileira de ensino de física sobre o título: “**Moldando a luz: a física por trás dos feixes ópticos**”, v.43, 2021. Detalhes podem ser conferidos na referência (AMARAL; LIMA, 2021).

B.1 Equação de Helmholtz

As equações de Maxwell no vácuo são escritas como:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{B.1})$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{B.2})$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (\text{B.3})$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B}(\vec{r}, t) = -\epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (\text{B.4})$$

Aplicando o rotacional na [Equação B.3](#) e usando a [Equação B.4](#) e [Equação B.1](#), obtemos:

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{B.5})$$

que é a equação de onda para a radiação eletromagnética (EM) com $c = (\epsilon_0 \mu_0)^{-1/2}$. Uma equação análoga pode ser obtida para $\vec{B}(\vec{r}, t)$ tomando o rotacional da [Equação B.4](#) e usando [Equação B.3](#) e [Equação B.2](#). Entretanto, a magnitude de \vec{E} é muito maior que a de $\vec{B} = \vec{E}/c$, de modo que é comum utilizar o \vec{E} para descrever as ondas EM.

Vamos considerar ondas EM monocromáticas, isto é de frequência única ω . Assumindo que a parte temporal seja harmônica, podemos escrever $\vec{E}(\vec{r}, t)$ como:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \text{Re} \vec{E}(\vec{r}) e^{-i\omega t} = \frac{1}{2} [\vec{E}(\vec{r}) e^{-i\omega t} + \vec{E}^*(\vec{r}) e^{i\omega t}] \quad (\text{B.6})$$

Substituindo [Equação B.6](#) na [Equação B.5](#) obtemos a equação vetorial de Helmholtz:

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}) + k^2 \vec{E}(\vec{r}) = 0 \quad (\text{B.7})$$

A maioria dos feixes utilizados em pinças ópticas são linearmente polarizados, ou seja, o \vec{E} tem uma componente apenas. Para feixes linearmente polarizados, podemos reescrever a [Equação B.7](#) em uma equação escalar, o que origina a equação escalar de Helmholtz:

$$\nabla^2 E(\vec{r}) + k^2 E(\vec{r}) = 0 \quad (\text{B.8})$$

A [Equação B.8](#) descreve a propagação de ondas monocromáticas linearmente polarizadas, onde o primeiro termo descreve o efeito de difração ao longo da propagação. A evolução espacial da amplitude complexa $E(\vec{r})$, pode ser descrita pela parte transversal (x,y) e pela parte longitudinal (z). A [Equação B.8](#) é separável em 11 sistemas de coordenadas, porém apenas em 4 é possível obter soluções transversais e longitudinais (cartesiano, cilíndrico circular, cilíndrico parabólico, cilíndrico elíptico). Cada solução da equação escalar de Helmholtz em um desses sistemas de coordenadas leva a um tipo de feixe óptico como o Gaussiano, Hermite-Gauss, Laguerre-Gauss, Bessel, etc.

Existem basicamente duas formas de se resolver a [Equação B.8](#): a forma exata ou utilizando a aproximação paraxial. A aproximação paraxial fornece soluções para descrever feixes que estão sujeitos à difração ao longo da propagação, enquanto que a solução exata pode fornecer soluções não difrativas. Isto é, o perfil transversal de intensidade é invariante ao longo da propagação.

B.2 Aproximação Paraxial

Vamos começar deduzindo uma solução utilizando a aproximação paraxial. Assumindo que a direção de propagação da onda EM seja o eixo-z, podemos escrever a amplitude complexa do campo elétrico como:

$$E(\vec{r}) = u(\vec{r})e^{-ikz} \quad (\text{B.9})$$

onde $u(\vec{r})$ é uma função complexa.

Um campo descrito pela [Equação B.9](#) é chamado de campo paraxial. Um campo paraxial é descrito por uma onda plana que se propaga pelo eixo-z enquanto que a sua amplitude $u(\vec{r})$ varia lentamente com a posição \vec{r} . A variação de $u(\vec{r})$ e sua derivada em relação a z, devem ser desprezível dentro de uma distância de propagação igual a λ (comprimento de onda da radiação), de modo que o campo mantenha sua natureza de onda plana. Escrevendo $\nabla = \nabla_t + \partial_z$, onde ∇_t é a componente transversal do operador ∇ , e utilizando a [Equação B.9](#), a [Equação B.8](#) fica:

$$\nabla_t^2 u(\vec{r}) + \frac{\partial^2 u(\vec{r})}{\partial z^2} - 2ik \frac{\partial u(\vec{r})}{\partial z} = 0 \quad (\text{B.10})$$

A aproximação paraxial implica que para uma propagação δz temos $\partial_z u(\vec{r}) \ll u(\vec{r})$ implicando que $\partial_z^2 u(\vec{r}) \ll \partial_z u(\vec{r})$, o que nós permite negligenciar o segundo termo da [Equação B.10](#) e reescreve-lá como:

$$\nabla_t^2 u(\vec{r}) - 2ik \frac{\partial u(\vec{r})}{\partial z} = 0 \quad (\text{B.11})$$

A [Equação B.11](#) é conhecida como Equação Paraxial de Helmholtz (EPH) e a partir dela podemos obter os feixes ópticos paraxiais resolvendo-a no respectivo sistema de coordenadas de interesse. Algumas famílias de soluções importantes da EPH dão origens aos feixes: Gaussiano (KOGELNIK; LI, 1966), Hermite-Gauss (KOGELNIK; LI, 1966) e Laguerre-Gauss (AMARAL; LIMA, 2021).

B.2.1 Feixe Gaussiano

O feixe gaussiano é uma das soluções mais importantes da EPH, pois é o perfil de saída de muitos ressonadores ópticos e um dos perfis mais utilizados para construção de pinças ópticas. O feixe gaussiano pode ser obtido através do modo fundamental [00] da família de soluções para a EPH em coordenadas cartesianas (e também cilíndricas) conhecidas como modos de Hermite-Gauss (AMARAL; LIMA, 2021) e também através do modo fundamental [00] de outra família de soluções da EPH em coordenadas cilíndricas chamadas de modos de Laguerre-Gauss (AMARAL; LIMA, 2021). O modo fundamental, tanto de Laguerre-Gauss como de Hermite-Gauss, pode ser obtido diretamente da EPH resolvendo-a em coordenadas cilíndricas e assumindo que $u(\vec{r})$ na [Equação B.9](#) é do tipo:

$$u(\vec{r}) = E_0 \exp \left[-i \left(k \frac{x^2 + y^2}{2q(z)} + P(z) \right) \right] e^{-ikz} \quad (\text{B.12})$$

substituindo a [Equação B.12](#) na [Equação B.9](#) e finalmente na [Equação B.11](#) obtemos:

$$-2k \left(\frac{dP(z)}{dz} + \frac{i}{q(z)} \right) - \frac{k^2}{q^2(z)} \left(1 - \frac{dq(z)}{dz} \right) (x^2 + y^2) = 0 \quad (\text{B.13})$$

onde

$$q(z) = z + iz_r \quad (\text{B.14})$$

$$\exp[-iP(z)] = \left[1 + \left(\frac{z}{z_r} \right)^2 \right]^{1/2} \exp \left[-i \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_r} \right) \right] \quad (\text{B.15})$$

Assim:

$$u(\vec{r}) = \frac{E_0}{[1 + (z/z_r)^2]^{1/2}} \exp \left[-\frac{kz_r r^2}{2(z^2 + z - r^2)} \right] \exp \left[-i \frac{kz(x^2 + y^2)}{2(z^2 + z_r^2)} \right] \exp [i\phi(z)] e^{-ikz} \quad (\text{B.16})$$

onde $\phi(z) = \tan^{-1}(z/z_r)$ é conhecido como ângulo de Gouy. Por convenção, a cintura do feixe ao longo da propagação é definida em relação a cintura no ponto $z = 0$ (w_0) como:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_r} \right)^2} \quad (\text{B.17})$$

Assim, podemos definir $z_r = w_0^2 k / 2$ como sendo a distância de propagação na qual o feixe gaussiano se propaga como uma onda plana, também conhecida como comprimento de Rayleigh. Outra definição importante é o raio de curvatura (curvatura da frente de onda) do feixe:

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z}{z_r} \right)^2 \right] \quad (\text{B.18})$$

Utilizando essas definições, podemos rescrever a [Equação B.9](#) como:

$$E(x, y, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left[-\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2} \right] \exp \left[-i \frac{r^2}{2R(z)} - ikz + i\phi(z) \right] \quad (\text{B.19})$$

O perfil de intensidade é dado por:

$$I(x, y, z) = |E(x, y, z)|^2 = E_0^2 \frac{w_0^2}{w(z)^2} \exp \left[-\frac{2(x^2 + y^2)}{w(z)^2} \right] \quad (\text{B.20})$$

Note que a medida que o feixe se propaga ao longo do eixo-z, o perfil de intensidade transversal se modifica em virtude do alargamento da cintura $w(z)$. A [Figura 56](#) ilustra o perfil de intensidade para o feixe gaussiano quando $w(z) = 5$.

B.3 Solução Exata da Equação de Helmholtz

A solução direta da [Equação B.8](#), também conhecida como solução exata da equação de Helmholtz (EEH), dá origem a uma família de soluções cujo perfil transversal de intensidade é invariante ao longo da propagação do feixe. Tais soluções permitem a criação dos chamados feixes não difrativos.

Uma das famílias de solução que podem ser obtidas da EEH, quando resolvida no sistema de coordenadas cilíndricas, são as funções de Bessel. Escrevendo a [Equação B.8](#) em coordenadas cilíndricas temos:

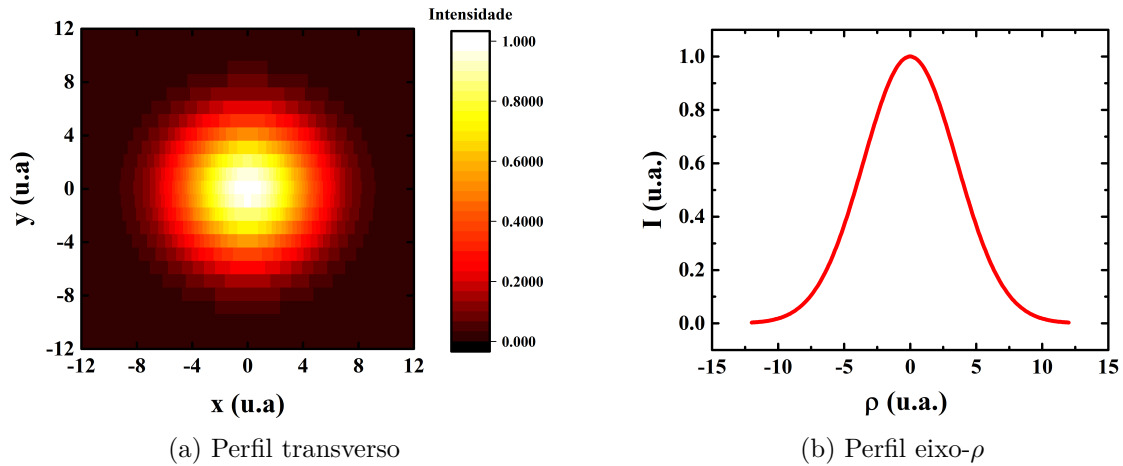


Figura 56 – Perfil de intensidade (normalizado) para o feixe gaussiano com $w(z) = 5$ u.a. **a)** Projeção transversal. **b)** Projeção ao longo do eixo- ρ . u.a.=unidades arbitrárias. **Fonte:** criação do autor.

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial E(\rho, \phi, z)}{\partial \rho} \right) + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 E(\rho, \phi, z)}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 E(\rho, \phi, z)}{\partial z^2} + k^2 E(\rho, \phi, z) \quad (\text{B.21})$$

A EEH é separável em coordenadas cilíndricas, de modo que podemos escrever $E(\rho, \phi, z) = R(\rho)\Phi(\phi)Z(z)$, além disso procuramos por soluções não difrativas, isto é $I(\rho, \phi, 0) = I(\rho, \phi, z > 0)$, uma maneira de incluímos essa solução é fazer:

$$Z(z) = \exp i\beta z \quad (\text{B.22})$$

onde β é uma constante a ser especificada. Substituindo $E(\rho, \phi, z)$ por $R(\rho)\Phi(\phi)Z(z)$ na [Equação B.21](#) e aplicando a separação de variáveis nós obtemos:

$$\frac{1}{\rho R(\rho)} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial R(\rho)}{\partial \rho} \right) + \frac{1}{\rho^2 \Phi(\phi)} \frac{\partial^2 \Phi(\phi)}{\partial \phi^2} + \alpha^2 = 0 \quad (\text{B.23})$$

onde $\alpha = k - \beta$. Operando [Equação B.23](#) obtemos as seguintes equações para $R(\rho)$ e $\Phi(\phi)$:

$$\frac{\partial^2 \Phi(\phi)}{\partial \phi^2} = -m^2 \Phi(\phi) \quad (\text{B.24})$$

$$\frac{\partial^2 R(\rho)}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial R(\rho)}{\partial \rho} + \left(\alpha^2 + \frac{m^2}{\rho^2} \right) = 0 \quad (\text{B.25})$$

A solução da [Equação B.24](#) é uma função periódica em 2π implicando que a constante m deva ser um número inteiro $m = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$, assim:

$$\Phi(\phi) = \exp(-im\phi) \quad (\text{B.26})$$

A solução da [Equação B.25](#) é facilmente obtida reconhecendo-a como a equação diferencial de Bessel de ordem m , cujas soluções são as funções de Bessel de primeiro tipo de ordem m $J_m(\alpha\rho)$, onde α é o parâmetro da função de Bessel. A solução da EEH em coordenadas cilíndricas é portanto:

$$E(\rho, \phi, z) = A_m J_m(\alpha\rho) \exp(-im\phi) \exp(i\beta z) \quad (\text{B.27})$$

onde A_m é uma constante e α e β são respectivamente a componente transversal e longitudinal do vetor de onda \vec{k} ($k = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2}$). Novamente, o perfil de intensidade do feixe é dado por $I = |E|^2$, que pode ser escrito como:

$$I(\rho) = |A_m|^2 J_m^2(\alpha\rho) \quad (\text{B.28})$$

Note que o perfil de intensidade permanece o mesmo para qualquer valor de z , o que sustenta a condição dos feixes de Bessel serem não difrativos. Um feixe não difrativo surge quando a variação de fase de cada onda plana que compõe o feixe muda de forma idêntica quando o feixe se propaga. Assim, os feixes de Bessel são vistos como um conjunto de ondas planas com amplitudes e componente longitudinal do vetor de onda iguais. Para que os feixes de Bessel fossem não difrativos por uma distância infinita seria necessário que cada onda plana tivesse uma extensão espacial infinita e portanto energia infinita. Porém, na prática os modos de Bessel são gerados em uma região finita e, portanto, seu comportamento não difrativo ocorre em uma região finita sobre o eixo- z .

Experimentalmente, para o modo fundamental de Bessel $m = 0$, podemos associar o parâmetro α (componente transversal do vetor de onda) da [Equação B.28](#) com a distância entre o eixo central do feixe e o ponto onde ocorre o primeiro mínimo, também chamada de raio de Bessel ρ_B , assim:

$$\alpha = \frac{2.4}{\rho_B} \quad (\text{B.29})$$

de modo que podemos escrever a intensidade do feixe de Bessel em função do raio de Bessel como:

$$I(\rho) = |A_0|^2 J_0^2\left(\frac{2.4}{\rho_B}\rho\right) \quad (\text{B.30})$$

A [Figura 57](#) ilustra o perfil transversal de intensidade para o modo fundamental de Bessel para $\rho_B = 1,5$ u.a. Para $m \neq 0$, o feixe de Bessel adquire momento angular (também chamada de carga topológica) não nula (AMARAL; LIMA, 2021).

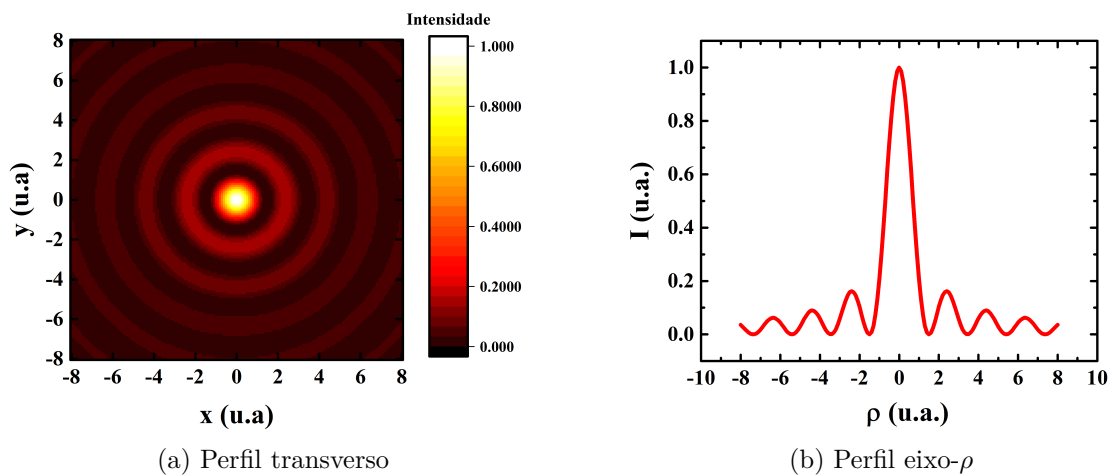
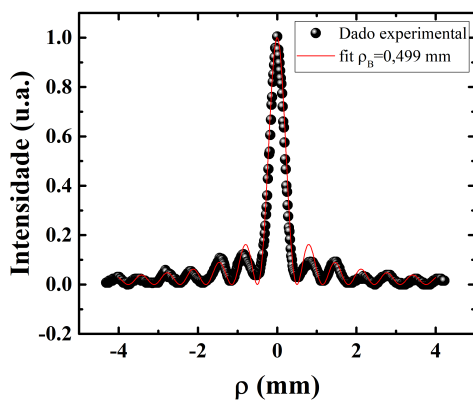


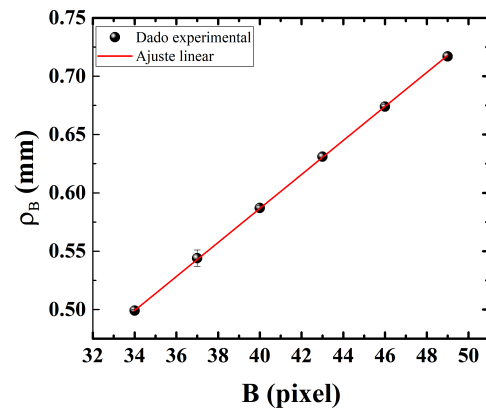
Figura 57 – Perfil de intensidade (normalizado) do modo fundamental de Bessel para $\rho_B = 1.5$ u.a. **a)** Projeção transversal. **b)** Projeção ao longo do eixo- ρ . u.a.=unidades arbitrárias. **Fonte:** criação do autor.

APÊNDICE C – Dinâmica oscilatória da partícula de germânio variando o raio de Bessel

Nesse apêndice apresentaremos o perfil de oscilação (deslocamento radial em função do tempo) para cada um dos raios de Bessel (ρ_B) utilizados nesse trabalho. O raio de Bessel foi medido na entrada da objetiva fotografando o perfil de intensidade na posição da objetiva. O perfil de intensidade normalizado foi ajustado com a [Equação B.30](#) e do ajuste retiramos o ρ_B , conforme mostra a [Figura 58a](#). A [Figura 58b](#) mostra a variação de ρ_B em função do raio do anel central do feixe de Bessel gerado no software do SLM (em pixels), os perfis de intensidade dos feixes de Bessel gerados estão ilustrados na [Figura 49b](#).



(a) Determinação ρ_B para B34.

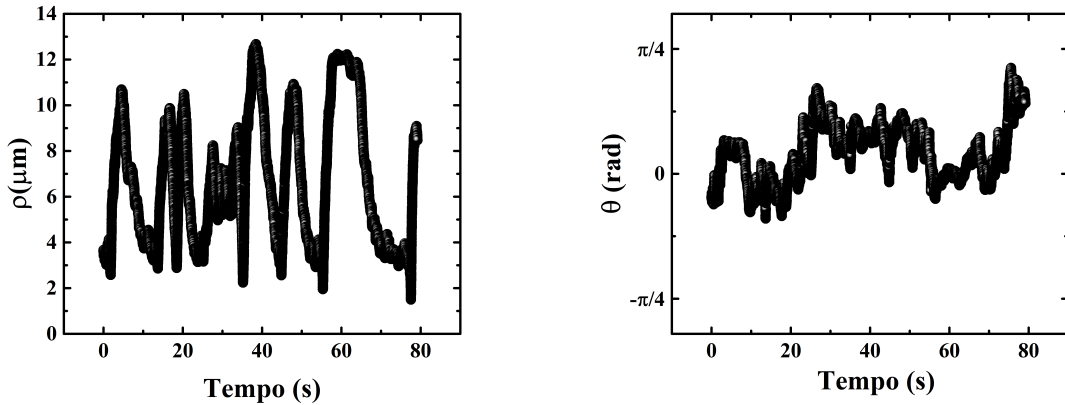


(b) Variação de ρ_B em função do raio do anel central no SLM.

Figura 58 – **a)** Determinação do raio de Bessel (ρ_B) a partir do ajuste da [Equação B.30](#) no perfil de intensidade (normalizado) fotografado na entrada da objetiva. O perfil foi gerado pelo software da SLM escolhendo-se o raio do anel central do feixe de Bessel (em pixels). Para um raio do anel central de 34 pixels obtivemos $\rho_B = 0,499$ mm. **b)** Variação do ρ_B em função do raio do anel central (B) no SLM. As barras verticais representam o erro obtido do ajuste. **Fonte:** criação do autor.

As figuras [Figura 59](#), [Figura 60](#), [Figura 61](#), [Figura 62](#), [Figura 63](#), [Figura 64](#) e [Figura 65](#) mostram o deslocamento radial em função do tempo e a variação angular das oscilações para os respectivos raios de Bessel: $\rho_B = 0,499$ mm, $\rho_B = 0,529$ mm, $\rho_B = 0,558$ mm, $\rho_B = 0,587$ mm, $\rho_B = 0,616$ mm, $\rho_B = 0,645$ mm e $\rho_B = 0,674$ mm. O valor da altura focal no início de cada experimento foi fixado em $h = 16 \mu\text{m}$.

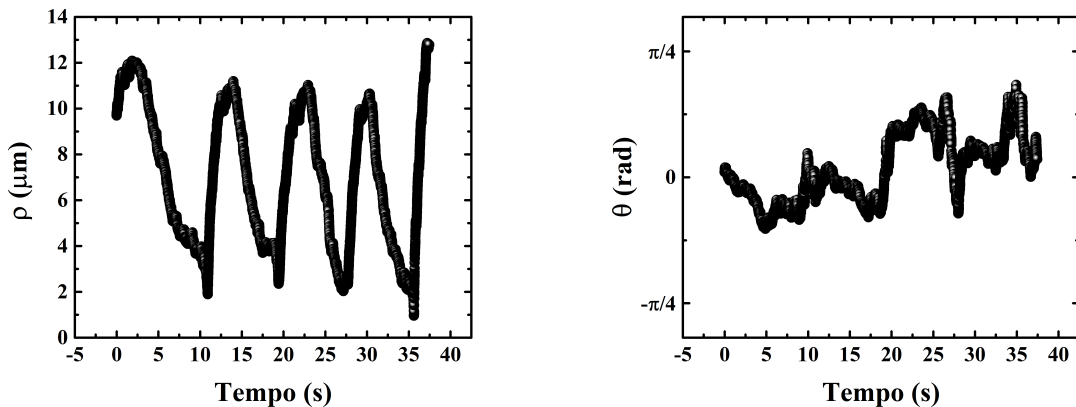
Para $\rho_B = 0,703$ mm, a partícula alternou entre as oscilações e o aprisionamento. O aprisionamento ocorreu quando a partícula estava em $\rho = (4,45 \pm 0,40) \mu\text{m}$. Quando por



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,499$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,499$ mm.

Figura 59 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,499$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.

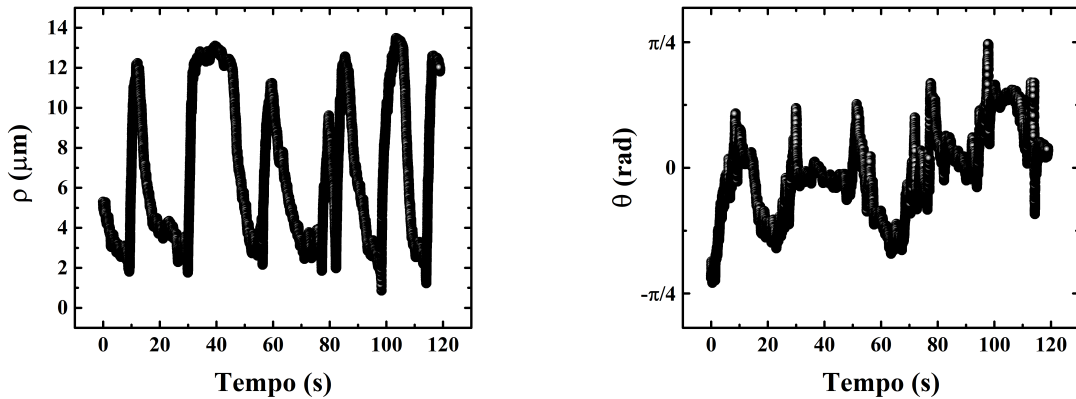


(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,529$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,529$ mm.

Figura 60 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,529$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.

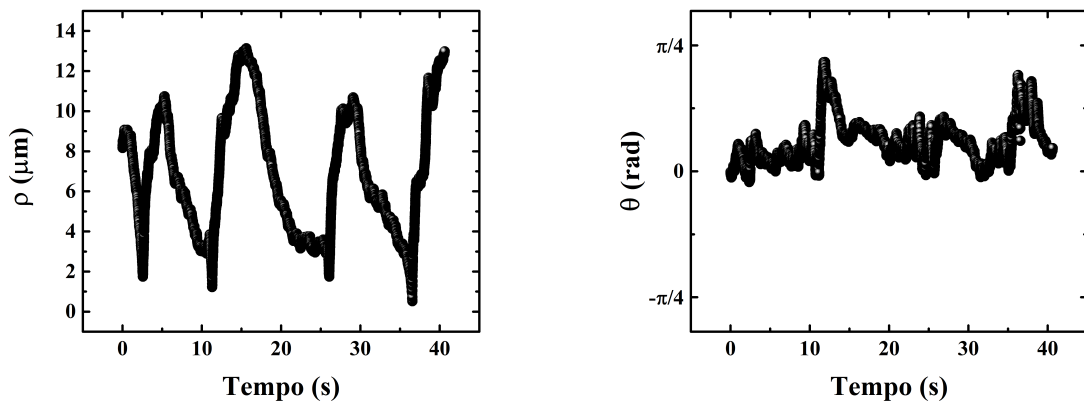
perturbação externa a partícula se aproximava do eixo óptico ocorria a oscilação (1 ciclo). A força óptica atrativa não é capaz de romper a região de equilíbrio em $\rho = (4,45 \pm 0,40)$ μm , e, portanto, as forças ópticas sozinhas não são capazes de manter a dinâmica oscilatória, sendo necessária uma perturbação externa para criar os ciclos de oscilação. A perturbação externa pode ser provocada usando o deslocador do microscópio ou pela ação de outra partícula. No caso da [Figura 66](#) a perturbação foi causada pelo deslocador posicionando a partícula próxima do eixo óptico.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,558$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,558$ mm.

Figura 61 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,558$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.

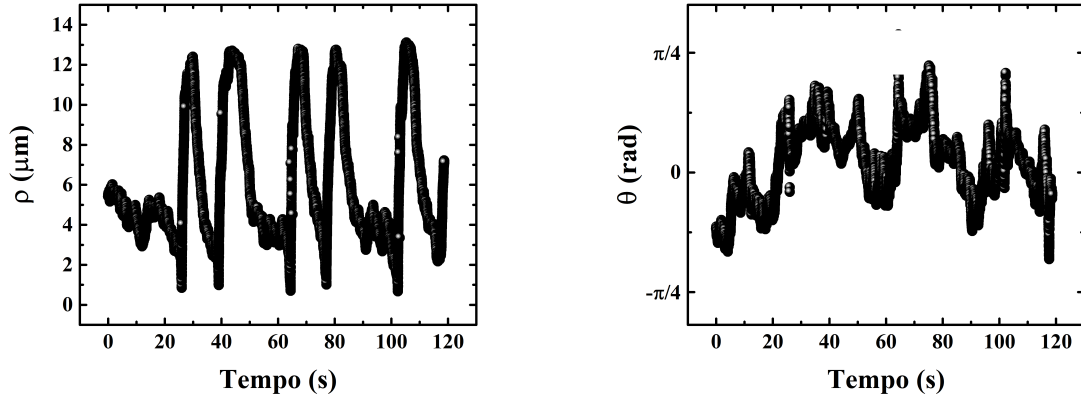


(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,587$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,587$ mm.

Figura 62 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,587$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.

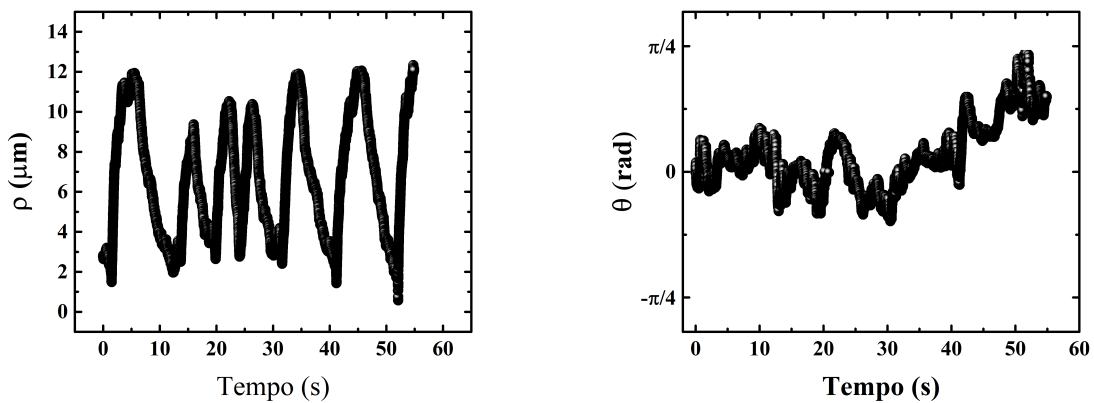
Para $\rho_B > 0,732$ mm, a mudança no perfil de intensidade do feixe de Bessel, gera uma posição de equilíbrio estável em $\rho = 4,07 \pm 0,12$ μm e mesmo com perturbações externas (aproximando a partícula ao eixo óptico) nenhuma oscilação foi observada. A Figura 67 mostra a variação radial da partícula de germânio em função do tempo para $\rho_B > 0,732$ mm.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,616$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,616$ mm.

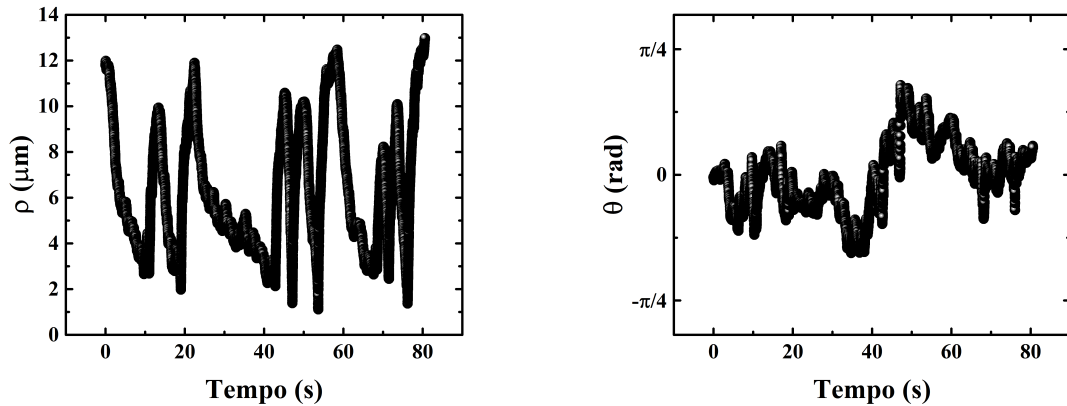
Figura 63 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,616$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,645$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,645$ mm.

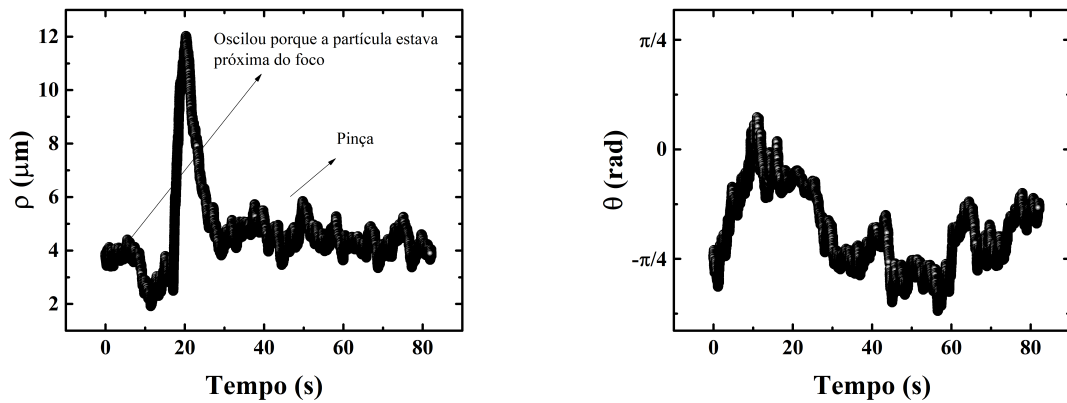
Figura 64 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,645$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,674$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,674$ mm.

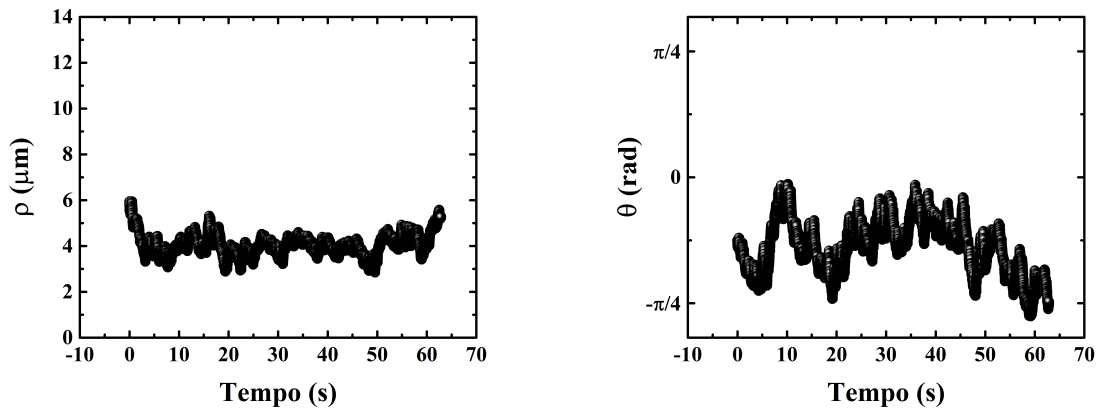
Figura 65 – Oscilação da partícula de germânio na direção paralela a direção de polarização da luz. **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,674$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,703$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,703$ mm.

Figura 66 – **a)** Deslocamento radial da partícula em função do tempo. Existe uma posição de equilíbrio, onde a partícula pode ser aprisionada, em $\rho = (4,45 \pm 0,40)$ μm . Quando a partícula é perturbada e se aproxima do eixo óptico ela pode executar a dinâmica oscilatória. Note que as forças ópticas sozinhas não conseguem manter a dinâmica oscilatória. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. *Parâmetros da oscilação:* $a = 2,4$ μm ; $\rho_b = 0,703$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16$ μm . **Fonte:** criação do autor.



(a) Deslocamento radial em função do tempo
 $\rho_B = 0,732$ mm.

(b) Ângulo de oscilação em função do tempo
 $\rho_B = 0,732$ mm.

Figura 67 – Aprisionamento das partículas de germânio. **a)** Deslocamento radial em função do tempo. **b)** Variação do ângulo azimutal em função do tempo. O aprisionamento ocorre em $\rho = (4,07 \pm 0,12) \mu$ com uma rigidez de $\kappa_x = (0,019 \pm 0,001) \text{ pN}/\mu\text{m}$ e $\kappa_y = (0,0086 \pm 0,0005) \text{ pN}/\mu\text{m}$. *Parâmetros do aprisionamento:* $a = 2,4 \mu\text{m}$; $\rho_b = 0,732$ mm; $P = 60$ mW; $h = 16 \mu\text{m}$. **Fonte:** criação do autor.

APÊNDICE D – Principais propriedades dos semicondutores germânio e silício

A [Tabela 1](#) apresenta as principais propriedades do germânio e silício à $T = 300$ K, e para $\lambda = 1064$ nm.

Grandeza	Si	Ge	Referência
Átomos ($10^{22}/cm^3$)	3,0	4,42	1
Constante dielétrica (ϵ_{opt})	12,63	18,8	2
Gap de energia indireto (eV)	1,11	0,68	2
Gap de energia direto (eV)	0,81	3,5	2
Concentração intrínseca de portadores (cm^{-3})	$1,5 \times 10^{10}$	$2,5 \times 10^{13}$	1
Coefficiente de absorção (1064 nm) (cm^{-1})	9,755	$1,7 \times 10^4$	3,4
Índice de refração n_p (1064 nm)	3,55	4,34	3,2
Coefficiente de extinção κ (1064 nm)	$8,2 \times 10^{-5}$	0,16	3,2
Reflectância (1064 nm, incidência normal)	0,31	0,39	1
Densidade de massa (Kg/m^3)	2330	5323	1
Massa elétron	$0,26.m_e$	0,12	1
Massa buraco	$0,38.m_e$	0,23	1
Calor específico ($j/(Kg.K)$)	700	320	1,5,6
Condutividade térmica ($W/(m.K)$)	148	59,9	1,5,6

Tabela 1 – Tabela das principais propriedades do germânio e do silício utilizadas nesse trabalho. Todos os dados são referentes à $T = 300$ K. Abreviação: $m_e = 9 \times 10^{-31}$ Kg corresponde a massa fundamental do elétron. **Fontes:** [1]- (REZENDE, 2004a); [2]- (MEYER; KRUER; BARTOLI, 1980); [3]- (NUNLEY et al., 2016b); [4]- (SCHINKE et al., 2015); [5]- (FOX, 2002); [6]- (KITTEL; MCEUEN, 2018).

ANEXO A – Trabalhos publicados
correlacionados com o tema da tese



Silicon microparticles as handles for optical tweezers experiments

T. A. MOURA,¹ U. M. S. ANDRADE,^{1,2} J. B. S. MENDES,¹ AND M. S. ROCHA^{1,*} 

¹Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brazil

²Departamento de Formação Geral, Centro Federal de Educação Tecnológica de Minas Gerais, Curvelo, Minas Gerais, Brazil

*Corresponding author: marcos.rocha@ufv.br

Received 14 November 2019; revised 14 January 2020; accepted 19 January 2020; posted 21 January 2020 (Doc. ID 383139); published 17 February 2020

We study the behavior of silicon microparticles in a 1064 nm Gaussian-beam optical tweezers, showing that this semiconductor can be used to perform different types of optical manipulation experiments. Depending on the focal position and the laser power used, the particles can present an oscillatory dynamics in the tweezers or can be stably 3D-trapped with a trap stiffness that allows the application of femtoNewton forces with accuracy. A new, to the best of our knowledge, interpretation based on the photoexcitation of electrons in the valence band is proposed to explain the oscillations, and the quantities associated with such dynamics (e.g., amplitude, period, etc.) were characterized as a function of relevant parameters to optical tweezers setups. © 2020 Optical Society of America

<https://doi.org/10.1364/OL.383139>

The field of optical trapping and manipulation of micrometer-sized particles has gathered the increasing interest of the scientific community in the past years, owing to the versatility of the optical tweezers technique and its applications in the investigation of soft matter microsystems, especially in biophysics [1] and in colloid and interface sciences [2]. In particular, in the most recent years there is an increasing interest in applying new materials as handles for the optical trapping and manipulation of small systems, since unusual materials can provide features very distinct from those obtained with the classic dielectric polystyrene or silica beads [3–7].

In the present work we have investigated the behavior of water-immersed silicon beads in Gaussian-beam (TEM_{00}) optical tweezers using a 1064 nm wavelength laser with a (3.3 ± 0.1) mm beam waist at the objective entrance (whose diameter is 6.0 mm) and a (0.52 ± 0.02) μm beam waist at focus, mounted in an inverted microscope with a $100\times$ N.A. 1.3 oil-immersion objective (whose setup was described in detail elsewhere [3,5]). The silicon particles were produced by the pulsed laser ablation technique previously described [5]. The quality of the particles was confirmed by scanning electron microscopy and energy dispersive x-ray analysis. We have found that those particles typically tend to perform a 3D oscillatory motion due to the competition of attractive and repulsive forces generated by the light interaction with the beads, although they can also be stably

trapped depending on the focus height (distance between the laser focus and the coverslip of the sample chamber). Recently, some studies reported a similar oscillatory motion for beads with intermediate characteristics between dielectrics and conductors, including topological insulators [3], semiconductors [5], and core-shell magnetic beads [7]. Nevertheless, this is the first work that reports and presents a robust characterization of such behavior for particles made of pure silicon. We demonstrate for the first time that this type of particle can oscillate or can be stably 3D-trapped depending on the focus height, which allows the realization of completely different types of experiments with the same bead and the same experimental setup. The oscillatory behavior of the silicon beads can be useful in optical tweezers experiments that intend to apply dynamical oscillatory forces on the systems of interest, like in rheological studies (viscoelasticity of cell membranes and other soft matter interfaces), in the investigation of the dynamical response of biopolymers to applied forces, or in the development of microscopic engines [3,5]. On the other hand, as will be demonstrated here, the stably trapped silicon beads can be employed as handles to extend the use of conventional optical tweezers for working in the femtoNewton force range, a feature important in studies concerning weak interactions such as the Casimir forces in colloids [8].

In Fig. 1(a) we show a scheme representing the oscillatory motion of the silicon beads near the optical axis of the tweezers; in Fig. 1(b) we show the coordinate frame adopted in this Letter in which the origin coincides with the laser focus; and in Fig. 1(c) we show some frames from an experiment made with a $2.50 \mu\text{m}$ radius particle. A complete movie can be found as a supplementary file (see Visualization 1). We have found that beads located in the region below the focal plane ($z < 0$) are attracted to the laser focus. This approach motion is strongly dominated by the optical gradient force, which has a transverse (xy -plane) and an axial (z -axis) component. Nevertheless, when the beads get sufficiently close to the focus they are repelled, moving away from this point in the region above the focal plane ($z > 0$), as represented in Fig. 1(a). This phenomenon occurs because a resulting repulsive force starts to dominate the dynamics. Such a repulsive force was interpreted in earlier works as composed mainly by at least two components: a thermal radiometric force, also known as photophoretic force, which arises from the asymmetric heat transfer from the bead to the

Germanium microparticles as optically induced oscillators in optical tweezers

W. H. Campos,^{1,2} T. A. Moura,¹ O. J. B. J. Marques,³ J. M. Fonseca,¹ W. A. Moura-Melo,¹
M. S. Rocha,¹ and J. B. S. Mendes^{1,*}

¹*Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, 36570-900 Viçosa, Minas Gerais, Brazil*

²*Institut für Physik, Johannes Gutenberg Universität Mainz, D-55128 Mainz, Germany*

³*Programa de Pós-Graduação em Ciência de Materiais, Universidade Federal de Pernambuco, 50740-540 Recife, Pernambuco, Brazil*



(Received 30 April 2019; published 21 November 2019)

Oscillatory dynamics is a key tool in optical tweezer applications. It is usually implemented by mechanical interventions that cannot be optically controlled. In this paper, we show that germanium semiconductor beads behave as optically induced oscillators when subjected to a highly focused laser beam. In turn, the well-defined direction of oscillations can be manipulated by the polarization of the light beam. Such unusual motion is due to the competition between the usual optical forces and the radiometric force related to thermal effects, which pushes the beads from the focal region. We characterize the behavior of the germanium beads in detail and propose a model accounting for the related forces in good agreement with the experimental data. Such kind of system can potentially revolutionize the field of optical manipulation, contributing to the design of single molecule machines and to the application of oscillatory forces in fundamental physics, cellular manipulation, fluid dynamics, and other soft-matter systems.

DOI: [10.1103/PhysRevResearch.1.033119](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.1.033119)

I. INTRODUCTION

Optical tweezers (OTs) work by shining a highly focused laser beam onto small beads. Radiation pressure and radiometric forces push the particle away from the optical axis, while gradient forces, related to refraction effects, attract the object to the laser focus [1–4]. A metallic particle is usually pushed away, once light is mostly reflected and/or absorbed by the material. On the other hand, a dielectric microparticle suspended in water is usually observed to be trapped by the laser beam, since gradient forces overcome radiation pressure and radiometric forces [5–8]. OTs have applications in areas such as biochemistry, biophysics, microfluidics, colloidal sciences, and others, allowing mechanical studies of small soft-matter systems [5,9–16]. From an electric conducting point of view, semiconductor materials interpolate between dielectrics and metals, being the main ingredients for microelectronics technology. Consider shining light onto a semiconductor microparticle. What dynamics could we expect for it? Would it be trapped, like a dielectric, or drifted away, as occurs to metallic beads? To address these questions, we have conducted an experimental study upon the optical trapping and manipulation of germanium (Ge) microspheres (diameter around a few micrometers) under the action of a highly focused Gaussian laser beam OT.

In turn, over 100 years after its discovery, Ge continues to attract tremendous attention in different areas of condensed-matter physics and materials science. Due to its suppression of spin relaxation, group IV semiconductors, such as Ge and Si, have aroused interest in timely research branches, like spintronics [17–21]. Furthermore, compared with Si, Ge possesses a much higher carrier mobility [20]. In this way, the solid-state device research community is returning to investigate the high-mobility Ge to improve the performance of transistors based on this material [21]. Nowadays, Ge has applications in optical fibers, polymerization catalysts, and Si-Ge alloys in microchip manufacturing, with feature sizes on the chips reaching 7 nm (<60 Ge atoms) [21,22]. However, to our best knowledge, the trapping of Ge microparticles in OTs has not been investigated so far.

Surprisingly, Ge beads are observed to oscillate in a plane perpendicular to the optical axis with relatively well-defined amplitude and frequency controllable by the laser power. Figure 1(a) shows our experimental setup, in which the particles are located around $z \sim -5 \mu\text{m}$ below the focal plane. The position of a $3 \mu\text{m}$ -diameter Ge particle relative to the optical axis as function of time is shown in the inset, illustrating their typical oscillatory dynamics. In addition, we show that laser polarization can be used to easily guide the oscillations to a preferential direction, an appealing feature for practical applications. Such an oscillatory motion has the potential of extending usual OT setup capabilities for investigating dynamical properties of macromolecules and small systems, like DNA molecules and biological membranes.

Our paper is structured as follows. In Sec. II, we describe the syntheses and characterization of our Ge particles, the experimental setup of our OT, the experimental procedures and the data analysis to obtain the forces involved. In Sec. III, we present our experimental results and propose an effective

*Corresponding author: joaquim.mendes@ufv.br

ANEXO B – Trabalhos publicados durante o doutorado



New antineoplastic agent based on a dibenzoylmethane derivative: Cytotoxic effect and direct interaction with DNA



Fernanda R. Nascimento^a, Tiago A. Moura^b, Jefferson V.P.B. Baeta^a, Bruno C. Publico^b, Pollyanna M.F. Ferreira^a, Anésia A. Santos^c, Andressa A.P. França^d, Marcio S. Rocha^{b,*}, Gaspar Diaz-Muñoz^e, Marisa A.N. Diaz^{a,*}

^a Department of Biochemistry and Molecular Biology, Universidade Federal de Viçosa, Minas Gerais 36570-900, Brazil

^b Department of Physics, Universidade Federal de Viçosa, Minas Gerais 36570-900, Brazil

^c Department of General Biology, Universidade Federal de Viçosa, Minas Gerais 36570-900, Brazil

^d Department of Biology, Universidade Estadual de Minas Gerais, Minas Gerais 36500-000, Brazil

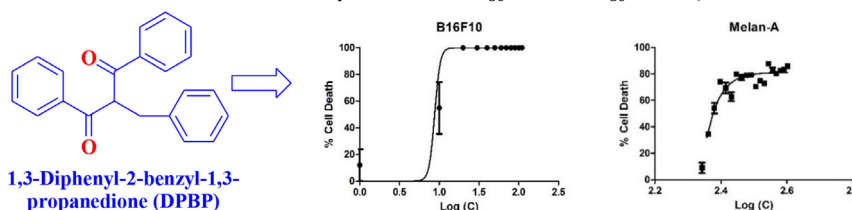
^e Department of Chemistry, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, Minas Gerais 31270-901, Brazil

HIGHLIGHTS

- 1,3-Diphenyl-2-benzyl-1,3-propanedione (DPBP), a dibenzoylmethane derivative, is a potential chemotherapeutic agent.
- DPBP had a high selectivity index (SI) of 41.94 for B16F10 melanoma cells over melan-A cells.
- Its mechanism of interaction with DNA was elucidated using optical tweezers.

GRAPHICAL ABSTRACT

Plot of the percentage of cell death obtained for DPBP compound against melan-A and B16F10 lineages in different concentrations. The selectivity indices (SI = IC₅₀ melan-A/IC₅₀ B16F10) was 41.94.



ARTICLE INFO

Keywords:

Dibenzoylmethane
Dibenzoylmethane derivative
Melanoma
Optical tweezers
DNA

ABSTRACT

Melanoma accounts for only 4% of all skin cancers but is among the most lethal cutaneous neoplasms. Dacarbazine is the drug of choice for the treatment of melanoma in Brazil through the public health system mainly because of its low cost. However, it is an alkylating agent of low specificity and elicits a therapeutic response in only 20% of cases. Other drugs available for the treatment of melanoma are expensive, and tumor cells commonly develop resistance to these drugs. The fight against melanoma demands novel, more specific drugs that are effective in killing drug-resistant tumor cells. Dibenzoylmethane (1,3-diphenylpropane-1,3-dione) derivatives are promising antitumor agents. In this study, we investigated the cytotoxic effect of 1,3-diphenyl-2-benzyl-1,3-propanedione (DPBP) on B16F10 melanoma cells as well as its direct interaction with the DNA molecule using optical tweezers. DPBP showed promising results against tumor cells and had a selectivity index of 41.94. Also, we demonstrated the ability of DPBP to interact directly with the DNA molecule. The fact that DPBP can interact with DNA *in vitro* allows us to hypothesize that such an interaction may also occur *in vivo* and, therefore, that DPBP may be an alternative to treat patients with drug-resistant melanomas. These findings can guide the development of new and more effective drugs.

1. Introduction

Melanoma is a cancer of low incidence but high lethality. It

accounts for only 4% of all cancers in Brazil. About six thousand new cases are expected for the biennium 2016–2017, of which 1500 will probably result in death. The southern region of Brazil has the highest

* Corresponding authors.

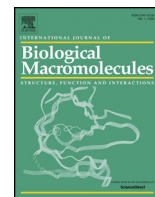
E-mail addresses: marcios.rocha@ufv.br (M.S. Rocha), marisanogueira@ufv.br (M.A.N. Diaz).

<https://doi.org/10.1016/j.bpc.2018.04.009>

Received 24 March 2018; Received in revised form 28 April 2018; Accepted 28 April 2018

Available online 03 May 2018

0301-4622/ Published by Elsevier B.V.



Biophysical characterization of the DNA interaction with the biogenic polyamine putrescine: A single molecule study

B.C. Publio, T.A. Moura, C.H.M. Lima, M.S. Rocha*

Laboratório de Física Biológica, Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brazil

ARTICLE INFO

Article history:

Received 13 November 2017
Received in revised form 19 January 2018
Accepted 20 January 2018
Available online 26 February 2018

Keywords:

Putrescine
DNA
Single molecule force spectroscopy

ABSTRACT

We have performed a biophysical characterization, at single molecule level, of the interaction between the DNA molecule and the biogenic polyamine putrescine. By using force spectroscopy, we were able to monitor the complexes formation as putrescine is added to the sample, determining the mechanical properties of such complexes and the physicochemical (binding) parameters of the interaction for three different ionic strengths. In particular, it was shown that the behavior of the equilibrium binding constant as a function of the counterion concentration deviates from the prediction of the Record-Lohman model. The measured constants were $(1.3 \pm 0.2) \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ for $[\text{Na}] = 150 \text{ mM}$, $(2.1 \pm 0.2) \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ for $[\text{Na}] = 10 \text{ mM}$, and $(2.2 \pm 0.3) \times 10^5 \text{ M}^{-1}$ for $[\text{Na}] = 1 \text{ mM}$. The cooperativity degree of the binding reaction, on the other hand, increases with the ionic strength. From these analysis, the DNA-putrescine binding mechanisms are inferred, and a comparison with results reported for ordinary bivalent ions like magnesium is performed. Such study provides new insights on the general behavior of the DNA interactions with biogenic polyamines.

© 2018 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The biogenic polyamines putrescine, spermine and spermidine play important roles in various intracellular biochemical processes, from macromolecular synthesis to cell proliferation and differentiation [1,2]. Some of these functions are mediated by the interactions of polyamines with nucleic acids (RNA and DNA) [3]. Thus, characterizing such interactions is essential to allow a robust comprehension of these biochemical processes at molecular level. Although the general aspects of such interactions were elucidated along the past years, many peculiarities remain unknown and are subject of controversy [4]. In particular, single molecule studies of the complexes formed between these polyamines and the nucleic acids are rare.

In the present work we have performed a biophysical characterization of the interaction between the DNA molecule and the polyamine putrescine, at single molecule level. To perform such a task, we use optical tweezers to perform single molecule stretching experiments of the DNA-putrescine complexes, at various different ligand concentrations. Such experiments allow one to promptly measure the changes on the mechanical properties of such complexes as the putrescine concentration increases in the sample. From these data, the binding mode can be deduced and the physicochemical

(binding) parameters of the interaction can also be determined with accuracy [5]. Although the DNA-putrescine interaction was studied in some aspects by other experimental techniques and computer simulations [4,6–12], a complete single molecule study varying the putrescine concentration and the ionic strength of the surrounding buffer is lacking. Such study is now presented here, allowing one to get new insights on both the mechanical and physicochemical behavior of the DNA-putrescine complexes.

Putrescine is a compound related to the odor of putrefying flesh and bad breath. It is a linear polyamine with $\sim 0.8 \text{ nm}$ length, having a positive charge at each end when protonated in solution. Fig. 1 shows the chemical structure of this compound. An important feature for its interaction with the DNA molecule is the fact that the $2+$ charge is linearly distributed along the molecule, and not centrally concentrated like in ordinary bivalent ions such as magnesium (Mg^{2+}) or calcium (Ca^{2+}).

2. Materials and methods

2.1. Experimental details

The optical tweezers used here to perform the experiments consist of a 1064 nm ytterbium-doped fiber laser operating in the TEM_{00} mode (IPG Photonics) mounted on a Nikon Ti-S inverted microscope with a $100\times$ NA 1.4 objective.

* Corresponding author.

E-mail address: marcios.rocha@ufv.br (M.S. Rocha).



Effects of caffeine on the structure and conformation of DNA: A force spectroscopy study

T.A. Moura, L. Oliveira, M.S. Rocha*

Laboratório de Física Biológica, Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brazil



ARTICLE INFO

Article history:

Received 28 January 2019

Received in revised form 21 February 2019

Accepted 21 February 2019

Available online 4 March 2019

Keywords:

Caffeine

DNA

Single molecule force spectroscopy

Optical tweezers

ABSTRACT

Here, we use single molecule force spectroscopy performed with optical tweezers in order to investigate the interaction between Caffeine and the DNA molecule for various different concentrations of the alkaloid and under two distinct ionic strengths of the surrounding buffer. We were able to determine the mechanical changes induced on the double-helix structure due to Caffeine binding, the binding mode and the binding parameters of the interaction. The results obtained show that Caffeine binds to DNA by outside the double-helix with a higher affinity at lower ionic strengths. On the other hand, a considerable cooperativity was found only for sufficient high ionic strengths, suggesting that Caffeine may binding forming dimers and/or trimers along the double-helix under this condition. Finally, it was also shown that Caffeine stabilizes the DNA double-helix upon binding, preventing force-induced DNA melting.

© 2019 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Caffeine (1,3,7-trimethylxanthine) is a chemical compound from the class of alkaloids widely consumed around the world. It is usually present in many types of beverages (coffee, teas, colas) and in chocolates, being thus very important to the food industry. Many of the Caffeine effects on the human body were very well studied. In particular, it is known that the molecule presents antioxidant and antiradical activity [1]. The most known property of Caffeine, however, is probably its activity as a stimulant of the central nervous system [2].

Much less studied are the effects of Caffeine on the DNA molecule [3–8]. It is reported that the alkaloid is an efficient inhibitor of the DNA repair machinery [6] and can bind to the double-helix interfering on the binding of other DNA ligands such as proteins and drugs [6–9]. In particular, there are studies which report that Caffeine can improve the efficiency of some chemotherapeutic drugs when interacting with DNA [10], which is an important motivation to investigate Caffeine–DNA interaction in detail. All these works,

however, were performed using ensemble-averaging (bulk) techniques. To the best of our knowledge, a single molecule study on the Caffeine–DNA interaction is lacking.

Single molecule force spectroscopy (SMFS) is nowadays one of the most important experimental approaches to investigate molecules, biopolymers and their associated mechanisms in various systems [11–19]. For instance, SMFS performed on DNA complexes formed with various types of ligands has become in the past years the state-of-the-art in the investigation of the DNA interactions with these ligands, giving information on the mechanical properties of the complexes formed, on the changes induced on the double-helix structure and conformation, on the binding modes and on the physical chemistry of the interaction [20–32].

In the present work, we use SMFS performed with optical tweezers in order to investigate the interaction between Caffeine and the DNA molecule for various different concentrations of the alkaloid and under two very different ionic strengths of the surrounding buffer. From these measurements, we have determined the mechanical changes induced on the double-helix structure due to Caffeine binding, the binding mode and the binding parameters of the interaction. In particular, we have found evidence that a structural transition of the double-helix from the B to the A form occurs as Caffeine binds to DNA. Such transition was characterized here at single molecule level for the first time. Finally, we have also investigated the effects of Caffeine on DNA force-induced melting, showing that the alkaloid stabilizes the double-helix and prevents DNA denaturation.

* Corresponding author.

E-mail address: marcios.rocha@ufv.br (M. Rocha).



On the use of Europium (Eu) for designing new metal-based anticancer drugs



J.A.D. Batista ^a, L. Oliveira ^b, T.A. Moura ^b, V.C. dos Anjos ^a, M.J.V. Bell ^a, M.S. Rocha ^{b,*}

^a Departamento de Física, Universidade Federal de Juiz de Fora, Juiz de Fora, Minas Gerais, Brazil

^b Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brazil

ARTICLE INFO

Article history:

Received 16 July 2020

Accepted 17 July 2020

Available online 14 August 2020

Keywords:

Europium

DNA

Single molecule force spectroscopy

Optical tweezers

Cooperative binding

ABSTRACT

Europium oxide (Eu₂O₃) was used to evaluate the affinity of this rare earth element for interacting with double-stranded (ds) DNA molecules. To perform the study, we used single molecule force spectroscopy with optical tweezers and gel electrophoresis assays. Force spectroscopy experiments show that Eu₂O₃ presents a strong interaction with dsDNA, and the binding is independent on the ionic strength used in the surrounding environment. Among the main characteristics of the interaction, Eu₂O₃ tends to bind in a cooperative way, forming bound clusters of ~ 3 molecules, and presents a high equilibrium association binding constant on the order of 10⁵ M⁻¹. In addition, gel electrophoresis confirm the weak electrostatic character of the interaction and explicit show that Eu₂O₃ does not interfere on drug intercalation into the double-helix. Such results demonstrate the potential of europium for interacting with nucleic acids and strongly suggest that this rare earth element may be considered for the design of new metal-based anticancer drugs in the future.

© 2020 Elsevier Inc. All rights reserved.

1. Introduction

The rational design of new drugs for chemotherapies and other kinds of treatments for human diseases is an important topic in pharmacology and related fields. In particular, metal-based compounds constitute a class of drugs largely employed in current chemotherapies [1,2], specially the platinum-based compound cisplatin and its derivatives [3–6]. On the other hand, advances on drug development based on metals and semimetals such as Ruthenium, Osmium, Iridium, Iron, Cooper, Gold, Vanadium, Arsenic and others were recently reported [1]. Nevertheless, studies using rare earth elements are sparse, which opens up a huge range of possibilities for the design of new promising drugs using these elements.

Europium (Eu) is the most reactive rare earth metal, and a previous study performed with a particular Eu-based compound have achieved promising results concerning the development of Eu-based anticancer drugs [7]. Such compound, designed linking various aromatic rings to the Eu atom, interacts with DNA via hydrophobic groove binding with an equilibrium association binding

constant on the order of 10⁵ M⁻¹, also exhibiting antimicrobial activity [7]. Nevertheless, since the aromatic rings alone can interact with DNA via hydrogen bonds, hydrophobic and π - π stacking interactions [8,9], it is difficult to discriminate the real effect of the Eu element in such compound. In addition, europium affinity of single-stranded DNA was also recently demonstrated [10].

In the present study, we investigate the effects of europium on double-stranded DNA using the simplest stable compound containing such element: the europium oxide Eu₂O₃. Pure europium cannot be used here because the element is very reactive and would rapidly oxidize in the sample chamber. To perform the study, we used force spectroscopy with optical tweezers and gel electrophoresis assays. Single molecule force spectroscopy is today recognized as the state-of-the-art technique for studies concerning the interactions between nucleic acids and ligands such as drugs and proteins, being able to provide information on the binding modes and on the physical chemistry of the interaction [11–13]. Gel electrophoresis, on the other hand, is a classic technique which allows one to observe the behavior of a large ensemble of nucleic acids molecules, thus complementing the single molecule analysis obtained from force spectroscopy. Our results show that Eu₂O₃ binds cooperatively to the double-helix with a high equilibrium association constant (on the order of 10⁵ M⁻¹), *i. e.*, close to that

* Corresponding author.

E-mail address: marcios.rocha@ufv.br (M.S. Rocha).

Hydroxychloroquine Exhibits a Strong Complex Interaction with DNA: Unraveling the Mechanism of Action

R. F. Bazoni, T. A. Moura, and M. S. Rocha*



Cite This: *J. Phys. Chem. Lett.* 2020, 11, 9528–9534



Read Online

ACCESS |

Metrics & More

Article Recommendations

ABSTRACT: In the past months, the use of the drug hydroxychloroquine has considerably increased in many countries, associated with a proposed treatment for the COVID-19 disease. Although there is no conclusive evidence about the efficacy of the drug for this purpose, surprisingly there are no conclusive studies in the literature concerning its mechanism of action inside cells, which is related to its interaction with nucleic acids. Here, we performed a robust characterization of the interaction between hydroxychloroquine and double-stranded DNA using single-molecule force spectroscopy and gel electrophoresis. Two different binding modes were identified, namely, minor groove binding for low drug concentrations and intercalation for high drug concentrations, and the sets of binding parameters were determined for each of these modes. Such results have unraveled in detail the molecular mechanism of action of the drug as a DNA ligand.



On March 11, 2020, the World Health Organization (WHO) declared the COVID-19 pandemic, and so far this disease has killed thousands of people worldwide.¹ COVID-19 is a disease related to the coronavirus SARS-CoV-2, a virus that causes mainly respiratory malfunctions. The first human infections were documented in a “wet market” in Wuhan, China,^{1,2} in the end of 2019. In this difficult context, scientists around the world started a race for the development of vaccines and/or therapies for the disease. As an immediate solution, several politicians and researchers suggested that the hydroxychloroquine (HCLQ) drug, already available under various brand names such as plaquenil, plaquenil sulfate, and quineprox, could be used as part of the COVID-19 treatment,^{3–5} which led to a considerable increase in the use of this drug around the world. In fact, HCLQ is already used in malarial, rheumatoid arthritis, and systemic lupus erythematosus treatments, and there are several studies that search for new applications.^{5,6} Nevertheless, its use for COVID-19 has no scientific evidence yet. On the contrary, the available results are controversial,^{7,8} besides presenting side effects such as retinopathy, ventricular arrhythmia, diarrhea, and psychosis in the elderly patients.^{9–11} Despite this deadlock, to the best of our knowledge, a conclusive study on the interaction of such drug with nucleic acids is not available in the literature. Such type of study is important since it may bring clues on the molecular mechanism of action of the drug, as well as on possible side effects related to its indiscriminate use. The analog drug chloroquine (CLQ), on the other hand, is more

studied in its interaction with nucleic acids, although many controversial results persist.^{12–14}

Hydroxychloroquine (HCLQ) differs from chloroquine (CLQ) only by a hydroxyl group, a modification that is related to a decrease in the toxicity of the compound.^{6,15} Irvin et al. and Berko et al. suggested that the antimalarial effects of chloroquine depend on its interaction with deoxyribonucleic acid (DNA).^{12,13} However, as already mentioned, although much more studied than HCLQ, the interaction between CLQ and dsDNA is still a controversial subject. While Cohen et al.¹⁶ and Berko et al.¹³ suggested an electrostatic interaction, Irvin et al. have found an intercalative behavior,¹² as discussed in the review article by Meshnick.¹⁷ Considering the divergent results presented in the literature and the use of HCLQ for COVID-19 therapy in some countries, it is urgent to comprehend in more detail the mechanism of action of this drug, its selectivity, and its interactions with biomolecules and cells. Moreover, as suggested by Irvin et al. for CLQ, the effect of HCLQ in diseases treatments can be strictly related with its interaction with DNA.¹² Thus, in the present work we focus in

Received: August 24, 2020

Accepted: October 21, 2020



Caffeine modulates the intercalation of drugs on DNA: A study at the single molecule level

T.A. Moura, R.L.R. Junior, M.S. Rocha^{*}

Departamento de Física, Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brazil

ARTICLE INFO

Keywords:

Caffeine
Intercalators
DNA
Single molecule force spectroscopy

ABSTRACT

We use optical tweezers to characterize the ability of Caffeine (Caf) to modulate the intercalation of drugs into the DNA double-helix at the single molecule level. When previously bound to the double-helix, Caf hinders ethidium bromide (EtBr) intercalation, decreasing its effective equilibrium binding constant with DNA. The dominant mechanism of such singular ability is a direct binding of Caf to the intercalating drugs in solution, which decreases the effective concentration of such compounds available to interact with DNA. When EtBr intercalation into the DNA double-helix occurs firstly, on the other hand, the measured cooperativity between Caf molecules interacting with DNA can be modulated, a feature also correlated to the Caf-EtBr interaction in solution. The results achieved here unveil many peculiarities about the details of such interactions at the molecular level and provide new insights on the use of Caf in therapeutic applications.

1. Introduction

Caffeine (Caf) is one of the most consumed alkaloids around the world, being an important component in the food industry. Although many effects of Caf inside the human body were well studied, especially its activity as a stimulant of the central nervous system [1], some aspects such as its property to change the effective affinity of DNA to other molecules are not well comprehended and deserves further investigation.

In the present work we use single molecule force spectroscopy performed with optical tweezers to investigate the molecular peculiarities of the Caf ability to hinder the intercalation of other drugs into the DNA double-helix. Previous bulk studies have proposed that Caf in fact influences the binding of intercalators to DNA. Traganos et al. have verified that the cytotoxicity of various intercalators decreases in the presence of Caf [2]. In that same article, the authors have studied spectrophotometrically the direct interaction between Caf and intercalating drugs, suggesting that the protective effect of the alkaloid against these drugs inside cells is related to a significant binding between Caf and the aromatic rings of the intercalators [2]. In an independent study that uses absorption spectroscopy and microcalorimetry to investigate the Caf interactions with drugs, Piosik et al. has also argued that the protective effect of Caf against aromatic compounds inside cells is due to the formation of stacking heterocomplexes between

the alkaloid and the drugs [3,4]. Nevertheless, all these studies were performed using bulk techniques and a single molecule investigation was lacking. We suppress this gap here, unveiling many peculiarities about the details of such interactions at the molecular level.

On the other hand, studies concerning the direct interaction of Caf with DNA have shown that the alkaloid is able to interact with the biopolymer, binding outside the double-helix both at the DNA major and minor grooves, exhibiting a relatively weak binding mediated mainly by stacking interactions and hydrogen bonds [5–9]. It was shown that Caf can promote a conformational transition on the double-helix structure upon binding, partially changing the canonical B-form of the double-helix to the more compacted A-form at high concentrations [5,7,9,10]. In principle one should expect that such a transition can influence the intercalation of aromatic compounds in the DNA molecule, since the structural parameters of the double-helix are changed. Nevertheless, such a discussion is lacking in the literature. Here we address such point, explicitly showing that the partial B-A transition is not relevant for the Caf ability in hindering EtBr intercalation. In fact, a quantitative comparison between the partial B-A transition and the Caf ability to direct bind to intercalators was performed, giving important new insights on the complete mechanism of action of Caf in protecting DNA against drug intercalation at the single molecule level. These insights provide new clues on the use of Caf in two practical applications: (a) as a protective agent against intercalating compounds that damage DNA; and (b) as a

^{*} Corresponding author.

E-mail address: marcios.rocha@ufv.br (M.S. Rocha).

Caffeine Enhances the Toxicity of Platinum-Based Drugs at the Molecular Level Even Outside of the Intracellular Environment: A Single-Molecule Force Spectroscopy Study

Rayane M. de Oliveira, Tiago A. Moura, and Márcio S. Rocha*



Cite This: *J. Phys. Chem. B* 2022, 126, 3291–3299



Read Online

ACCESS |



Metrics & More

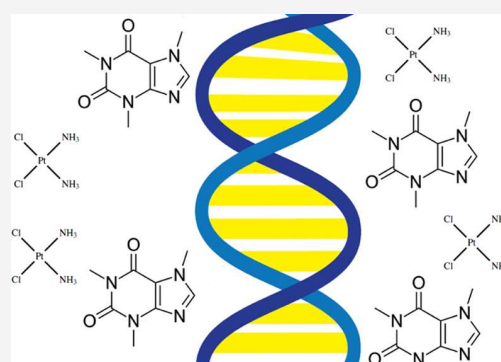


Article Recommendations



Supporting Information

ABSTRACT: It is well reported in the literature that caffeine, the most consumed alkaloid around the world, enhances the anticancer effects of the drug cisplatin by inhibiting DNA repair by the cellular machinery. Here, we perform single-molecule force spectroscopy assays with optical tweezers to show that caffeine enhances the toxicity not only of cisplatin but also of various different platinum-based drugs already at the molecular level, using samples containing only double-stranded (ds)DNA, platinum drugs, and the alkaloid in a simple phosphate buffer, that is, completely out of the complex environment found inside real living cells. In fact, our results show that caffeine acts as an allosteric catalyst which increases the effective equilibrium binding constant between DNA and the platinum drugs, also interfering in the cooperativity of the binding reactions. To the best of our knowledge, this is the first time that such a property of caffeine was demonstrated and characterized from a pure physicochemical perspective, outside the cellular environment. Thus, the present work provides new insights into the use of this alkaloid for current chemotherapeutic applications.



INTRODUCTION

Platinum-based drugs constitute one of the classes of compounds most employed in current cancer chemotherapies.^{1–7} Because of the success achieved in clinical trials using these drugs, over the past years, a number of groups have investigated the molecular mechanism of action of cisplatin and its derivatives, especially their interactions with the DNA molecule—the main target of these drugs inside living cells.^{8–24} It is known that the platinum-based compounds can form a variety of different covalent adducts with the DNA bases. Such structures are recognized as the cause of their antitumor activity, resulting in an effective hindering of many intracellular DNA-related processes.^{8,9}

Cisplatin [*cis*-diamminedichloridoplatinum(II)], the precursor of this class of compounds, was first described already in 1845 by Michele Peyrone²⁵ and today it is still one of the most important platinum drugs, despite the several side effects associated with its use and the development of drug resistance by the cells during the treatments.²⁶ Because of these limitations, derived compounds were synthesized over the past years in order to improve the efficacy of the treatments. In particular, two of these compounds have achieved relative success in some kinds of chemotherapies: carboplatin [*cis*-diammine (cyclobutane-1,1-dicarboxylate-O,O') platinum (II)]^{2–5} and oxaliplatin [(1*R*,2*R*)-diamino-cyclohexaneoxalatoplatinum(II)].^{27–29} On the other hand, the cisplatin isomer known as transplatin curiously was earlier discarded as an antitumor agent because it

was reported to present small effects in cancer treatments. This singular difference was attributed to the types of covalent adducts formed between the compounds and the DNA bases,^{30–33} with transplatin having interstrand crosslinks as the most stable covalent diadducts^{24,30,34} and the other three compounds cited above having intrastrand crosslinks playing such a role.^{9,35} Nevertheless, it is worth mentioning that some recent studies have proposed that transplatin can also be useful as an antitumor agent under certain circumstances.^{24,34}

Another important strategy to improve the efficacy of chemotherapies is to use a second molecule besides the antitumor agent to modulate the activity of the latter, by improving its effects on DNA. It is well reported for instance that caffeine, the most consumed alkaloid around the world, enhances the anticancer effects of cisplatin by inhibiting DNA repair by the cellular machinery.^{36–40} Many specific results concerning this fact were obtained from experiments performed at the cellular level. For example, it was shown that caffeine increases the antiproliferative activity and apoptosis caused by cisplatin in cultured cells.^{36,37} Thus, the alkaloid decreases the

Received: March 4, 2022

Revised: April 11, 2022

Published: April 20, 2022

