

**UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI TRIESTE**



Facoltà di Scienze Matematiche Fisiche e Naturali

Corso di Laurea in Fisica

**TESI DI LAUREA TRIENNALE**

**Studio dell'effetto Franz-Keldysh tramite tecniche  
spettroscopiche nel dominio dei tempi in GaAs**

Laureanda  
Francesca Giusti

Relatore  
Dott. Daniele Fausti

Correlatore  
Dott. Fabio Novelli

ANNO ACCADEMICO 2011-2012

# Indice

<b>Introduzione</b>	<b>2</b>
<b>1 Introduzione teorica</b>	<b>3</b>
1.1 Accoppiamento fotone materia	3
1.2 Effetto Franz-Keldysh statico	6
1.3 Introduzione all'effetto Franz-Keldysh dinamico	10
<b>2 Tecniche sperimentali</b>	<b>11</b>
2.1 Pump and Probe	11
2.2 Laser ad impulsi ultracorti	13
2.2.1 L'oscillatore	13
2.2.1a Mode Locking	13
2.2.1b Kerr Lens Mode Locking	14
2.2.2 L'amplificatore	15
2.2.3 Il sistema laser	15
2.3 L'impulso di pump	16
2.3.1 Impulsi Terahertz: generazione e detezione	16
2.3.2 Fronte d'onda tiltato	17
2.4 L'impulso di probe: generazione di luce bianca	19
<b>3 Presentazione e discussione dei dati sperimentali</b>	<b>21</b>
3.1 Caratterizzazione degli impulsi THz	21
3.2 Misure pompa-THz sonda-luce bianca in trasmissione	23
3.3 Misure della riflessione in funzione dell'energia di pompa	24
<b>Conclusioni</b>	<b>29</b>

# Introduzione

L'effetto Franz-Keldysh descrive le proprietà ottiche di un semiconduttore a seguito dell'applicazione di un campo  $\vec{E}$  uniforme e statico [1]. La teoria, formulata indipendentemente da Walter Franz [2] e Leonid Keldysh [3], prevede un coefficiente di assorbimento non nullo per energie inferiori rispetto all'energia di gap e delle oscillazioni sopra gap.

L'applicazione di un campo elettrico impulsato produce effetti qualitativamente simili [4] ma la teoria che descrive il fenomeno è più complessa e l'effetto è detto Franz-Keldysh dinamico.

In questa tesi riportiamo lo studio delle proprietà ottiche del campo elettrico variabile nel tempo tramite tecnica di pump and probe. Questa tecnica consiste nel perturbare il sistema con un impulso laser ultracorto (pump) e nello studiare le dinamiche del materiale fuori equilibrio attraverso un secondo impulso e che funge da sonda (probe). Dalla riflessione e dalla trasmissione dell'impulso di probe si possono ricavare e studiare le variazioni delle proprietà ottiche del mezzo in presenza del pump.

Nella fattispecie abbiamo studiato l'effetto Franz-Keldysh nell'arseniuro di gallio (GaAs) tramite tecniche spettroscopiche risolte in tempo. In particolare abbiamo considerato gli effetti sulle proprietà ottiche nella regione gap dovuti ad eccitazioni nel lontano infrarosso. Come pompa abbiamo utilizzato un impulso nel THz, generato per optical rectification e misurato attraverso electro optic sampling. Il probe utilizzato per misurare la variazione delle proprietà ottiche è costituito da un impulso di luce quasi-monocromatica o bianca generata tramite supercontinuo.

Questa tesi si propone di studiare la variazione delle proprietà ottiche nel GaAs a seguito di perturbazioni con impulsi THz ultracorti. In particolare abbiamo studiato la risposta ottica del GaAs sia nel largo spettro che a singolo colore e in funzione dell'intensità di pompa. In tal modo abbiamo sondato sia il limite statico che quello dinamico dell'effetto Franz-Keldysh e proposto un modello fenomenologico che descriva la regione intermedia tra i due regimi. [5]

# Capitolo 1

## Introduzione teorica

Nel primo capitolo introdurremo l'effetto Franz-Keldysh. In particolare descriverò nel dettaglio il formalismo utilizzato per descrivere l'effetto Franz Keldysh statico ed introdurrò brevemente i concetti necessari per studiare il regime dinamico.

### 1.1 Accoppiamento fotone-materia

Per ottenere la costante dielettrica di un cristallo consideriamo una Hamiltoniana che descriva l'interazione tra un campo elettrico esterno, costante e uniforme e gli elettroni del materiale [1]. Per farlo usiamo un approccio semiclassico, ovvero trattiamo il campo elettromagnetico classicamente, mentre gli elettroni saranno descritti con una trattazione quantistica.

Consideriamo l'Hamiltoniana imperturbata di un elettrone sottoposto ad un potenziale centrale

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + V(r),$$

e inseriamo la perturbazione dovuta al campo elettromagnetico con i potenziali  $\vec{A}$  e  $\phi$

$$\text{nel gauge di Coulomb } \begin{cases} \phi = 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0 \end{cases}.$$

Sostituendo il momento  $\vec{p}$  nell'Hamiltoniana con  $\vec{p} + \frac{e\vec{A}}{c}$ , si ottiene

$$H = \frac{1}{2m} \left( \vec{p} + \frac{e\vec{A}}{c} \right)^2 + V(r),$$

$$\text{dove } \left( \vec{p} + \frac{e\vec{A}}{c} \right)^2 = \vec{p}^2 + \frac{e}{c} \vec{A} \cdot \vec{p} + \frac{e}{c} \vec{p} \cdot \vec{A} + \frac{e^2 \vec{A}^2}{c^2} \text{ e}$$

$$\frac{e}{c} \vec{p} \cdot \vec{A} = \frac{e}{c} \vec{A} \cdot (-i\hbar \nabla) = \frac{e}{c} \vec{A} \cdot \vec{p},$$

poiché  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$  per la scelta del gauge.

Trascurando il termine quadratico, poiché stiamo considerando proprietà ottiche lineari, si ha che l'Hamiltoniana totale può essere scritta come  $H = H_0 + H_{ER}$  con

$$H_{ER} = \frac{e}{c} \vec{A} \cdot \vec{p}.$$

Per un semiconduttore se il potenziale vettore è abbastanza piccolo da poter applicare la teoria delle perturbazioni dipendente dal tempo, la probabilità di transizione per unità di volume di un elettrone dalla banda di valenza  $|v\rangle$  a quella di conduzione  $|c\rangle$  è data dalla Regola d'oro di Fermi:

$$|\langle c | H_{ER} | v \rangle|^2 = \left( \frac{e}{mc} \right)^2 |\langle c | \vec{A} \cdot \vec{p} | v \rangle|^2.$$

Se scriviamo il modulo del potenziale vettore come

$$A = -\frac{E}{2q} \left( e^{i(\vec{q}\cdot\vec{r}-\omega t)} + e^{-i(\vec{q}\cdot\vec{r}-\omega t)} \right),$$

l'integrale sul tempo del primo termine risulta proporzionale a una delta di Dirac  $\delta(E_c(k_c) - E_v(k_v) - \hbar\omega)$ . Questo risultato indica che l'elettrone nella banda di valenza assorbe l'energia del fotone ed è eccitato nella banda di conduzione. L'analogo integrale sul secondo termine risulta proporzionale a  $\delta(E_c(k_c) - E_v(k_v) + \hbar\omega)$ , che è diverso da zero quando un elettrone inizialmente in banda di conduzione emette un fotone e finisce nella banda di valenza (emissione stimolata). L'integrale rappresenta pertanto assorbimento ed emissione di fotoni da parte degli elettroni di un semiconduttore dovuta all'influenza di un campo elettromagnetico esterno.

Scrivendo  $|c\rangle$  e  $|v\rangle$  come funzioni di Bloch ( $|c\rangle = u_{c,\vec{k}c}(\vec{r}) \cdot e^{i(\vec{k}c\cdot\vec{r})}$ , dove  $u$  è una funzione con la periodicità del reticolo e l'esponenziale un'onda piana e consideriamo una funzione analoga per  $|v\rangle$ ) e sostituendole nel calcolo dell'elemento di matrice si ottiene

$$\int u_{c,\vec{k}c}^* \cdot e^{i(\vec{q}-\vec{k}c+\vec{k}v)\cdot\vec{r}} \vec{p} u_{v,\vec{k}v} d\vec{r}$$

Per la periodicità di  $u_{c,\vec{k}c}$  e  $u_{v,\vec{k}v}$  possiamo considerare  $\vec{r} = \vec{R}_j + \vec{r}'$ , dove  $\vec{r}'$  rappresenta la posizione all'interno della singola cella, mentre  $\vec{R}_j$  indica la cella considerata (i vettori  $\vec{R}_j$  sono quindi discreti). L'integrale precedente diventa

$$\left[ \sum_j e^{i(\vec{q}-\vec{k}c+\vec{k}v)\cdot\vec{R}_j} \right] \int_{cella} u_{c,\vec{k}c}^* \cdot e^{i(\vec{q}-\vec{k}c+\vec{k}v)\cdot\vec{r}'} \vec{p} u_{v,\vec{k}v} d\vec{r}'$$

dove  $\sum_j e^{i(\vec{q}-\vec{k}c+\vec{k}v)\cdot\vec{R}_j} = \delta(\vec{q} - \vec{k}_c + \vec{k}_v)$

che è diverso da zero solo nel caso in cui  $\vec{q} + \vec{k}_v = \vec{k}_c$  sta ad indicare che il vettore d'onda si conserva nel processo di assorbimento. L'integrale si riduce a

$$\int_{cella} u_{c, \vec{k} + \vec{q}}^* \cdot \bar{p} u_{v, \vec{k}}^* d\vec{r}$$

Se assumiamo che  $\mathbf{q}$  sia molto minore dell'estensione della prima zona di Brillouin, condizione ragionevole nel caso di fotoni nel visibile, possiamo espandere la prima funzione di Bloch in serie di Taylor rispetto a  $\mathbf{k}$  e considerare solo il primo ordine, ottenendo così

$$\langle c | \hat{e} \cdot \bar{p} | v \rangle = \int_{cella} u_{c, \vec{k}}^* \cdot \bar{p} u_{v, \vec{k}}^* d\vec{r}$$

Poiché nella maggior parte dei casi l'elemento di matrice non è fortemente dipendente da  $\mathbf{k}$  [1], possiamo rimpiazzarlo con una costante

$$\langle c | \hat{e} \cdot \bar{p} | v \rangle = (e/mc)^2 |A|^2 |P_{cv}|^2$$

Sostituendo i termini così ottenuti nell'espressione della Regola d'oro di Fermi si ha che la probabilità di transizione nell'unità di tempo vale

$$\begin{aligned} R &= (2\pi/\hbar) \sum_{\vec{k}_v, \vec{k}_c} |\langle c | H_{ER} | v \rangle|^2 \delta(E_c(\vec{k}) - E_v(\vec{k}) - \hbar\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{e}{m\omega} \right)^2 \left| \frac{E(\omega)}{2} \right|^2 \sum_{\vec{k}_v, \vec{k}_c} |P_{cv}|^2 \delta(E_c(\vec{k}) - E_v(\vec{k}) - \hbar\omega) \end{aligned}$$

Se consideriamo solo i  $\mathbf{k}$  permessi per unità di volume nel cristallo allora  $R$  è il "tasso" della transizione di assorbimento (percentuale) per unità di volume. Da questo possiamo ricavare la potenza  $P$  dissipata dal campo a causa dell'assorbimento come la probabilità di transizione  $R$  per unità di volume moltiplicata per l'energia del fotone  $\hbar\omega$ . La stessa quantità può essere espressa in funzione del coefficiente di assorbimento  $\alpha$  o della parte immaginaria della funzione dielettrica. Infatti la diminuzione di energia del fascio incidente è  $-\frac{dI}{dt} = \frac{dI}{dx} \frac{dx}{dt} = \frac{c}{n} \alpha I = \frac{\epsilon_i \omega I}{n^2}$ , dove  $I$  è l'intensità del fascio, che può essere

$$\text{espressa come } I = \frac{n^2}{8\pi} |E(\omega)|^2$$

Uguagliando le due espressioni è possibile ottenere la parte immaginaria della funzione dielettrica

$$\epsilon_i = \left( \frac{2\pi e}{m\omega} \right)^2 \sum_{\vec{k}_v, \vec{k}_c} |P_{cv}|^2 \delta(E_c(\vec{k}) - E_v(\vec{k}) - \hbar\omega),$$

mentre la parte reale è data dalla trasformata di Kramers-Kronig della parte immaginaria

## 1.2 Effetto Franz-Keldysh statico

L'effetto Franz-Keldysh, scoperto indipendentemente da W. Franz [2] e L. Keldysh [3], descrive l'effetto di un campo elettrico sull'assorbimento ottico di un semiconduttore. Supponiamo di applicare su un semiconduttore un campo elettrico  $E$  uniforme lungo  $z$ . L'equazione di Schrödinger per una coppia elettrone lacuna è

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\vec{r}}^2 - eEz \right) \varphi(\vec{r}) = E_r \varphi(\vec{r}),$$

con  $e$  carica elettrica,  $\mu$  massa ridotta e  $\vec{r}$  coordinata relativa della coppia elettrone-lacuna [1]. L'equazione può essere risolta per separazione delle variabili. Lungo le direzioni  $\vec{x}$  e  $\vec{y}$  l'equazione è equivalente a quella di particella libera e quindi si ottiene immediatamente la funzione d'onda  $\varphi(x, y) \propto \exp(-i(k_x x + k_y y))$ .

Lungo  $z$  l'equazione da risolvere è invece

$$\frac{d^2 \varphi(z)}{dz^2} = -\frac{2\mu}{\hbar^2} \cdot (|e|Ez + E_z) \varphi(z)$$

Definendo  $\xi = \left( \frac{2\mu}{\hbar} |e|E \right)^{1/3} \left( z + \frac{E_z}{eE} \right)$  ed osservando che  $\frac{d^2}{dz^2} = \left( \frac{2\mu}{\hbar^2} |e|E \right)^{2/3} \frac{d^2}{d\xi^2}$  si ottiene l'espressione  $\frac{d^2 \varphi_z(\xi)}{d\xi^2} = \xi \varphi_z(\xi)$ .

La soluzione di questa equazione differenziale è data dalla funzione di Airy,  $Ai(x)$ , che può essere espressa come

$$Ai(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \cos\left(\frac{1}{3}t^3 + xt\right) dt.$$

Il risultato normalizzato è quindi

$$\varphi_z(\xi) = \frac{(|e|E)^{1/2}}{\sigma} Ai(\xi),$$

dove  $\sigma = \left( \frac{e^2 E^2 \hbar^2}{2\mu} \right)^{1/3}$  è chiamata energia elettroottica.

Per calcolare la parte immaginaria della costante dielettrica abbiamo ancora bisogno dell'elemento di matrice di dipolo  $|P_{vc}|_z^2$ . Per transizioni dirette l'elemento di matrice

può essere scritto come  $P_{vc} = \varphi(0) \cdot C_0$  con  $C_0$  costante e  $\varphi$  soluzione dell'equazione di Schrödinger per una coppia elettrone-lacuna [6]. Intuitivamente  $|\varphi(0)|^2$  rappresenta la probabilità di trovare la coppia elettrone-lacuna nella cella unitaria: la probabilità di fotoeccitare tale coppia è proporzionale alla sovrapposizione delle funzioni d'onda dell'elettrone e della lacuna [1].

L'equazione per  $\varepsilon_i$  ottenuta nel paragrafo 1.1 deve essere integrata su  $E_z$  e sommata su tutti i possibili valori di  $k_x$  e  $k_y$ . Per quanto riguarda la somma possiamo introdurre una

$$\text{densità degli stati bidimensionale del tipo } D(E_{x,y} - E_G) = \begin{cases} \frac{\mu}{\pi\hbar^2} & \text{se } E_{x,y} > E_G \\ 0 & \text{se } E_{x,y} < E_G \end{cases},$$

ottenendo

$$\varepsilon_i = \frac{2\pi e^2 (2\mu)^{3/2} P^2 \sigma^{1/2}}{m^2 \hbar E^2} \int_{\xi_0}^{\infty} Ai^2(\xi) d\xi$$

$$\text{con } \xi_0 = \frac{E_G - E}{\sigma}$$

e, per la definizione

$$\int_{\xi_0}^{\infty} Ai^2(\xi) d\xi = \xi_0 Ai^2(\xi_0) - Ai'^2(\xi_0),$$

la variazione della funzione dielettrica dovuta all'applicazione del campo  $\vec{E}$  risulta

$$\Delta\varepsilon_i(\omega, \zeta) = \frac{2e^2 (2\mu)^{3/2} P^2 \sigma^{1/2}}{m^2 \hbar E^2} F\left(\frac{E_G - E}{\sigma(\zeta)}\right),$$

$$\text{con } F(\xi_0) = \pi[Ai'^2(\xi_0) - \xi_0 Ai^2(\xi_0)] - \sqrt{-\xi_0} H(-\xi_0)$$

e  $H(x)$  è unitaria per  $x$  positivi e nulla per  $x$  negativi.

La parte reale della costante dielettrica si ottiene sostituendo alla funzione  $F$  la sua trasformata di Kramers-Kronig

$$G(\xi_0) = \pi[Ai'(\xi_0)Bi'(\xi_0) - \xi_0 Ai(\xi_0)Bi(\xi_0)] + \sqrt{\xi_0} H(\xi_0),$$

dove  $Bi$  è la funzione di Airy del secondo tipo, che può essere scritta nel seguente modo:

$$Bi(\xi) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \left[ \exp\left(-\frac{1}{3}t^3 + \xi t\right) + \sin\left(\frac{1}{3}t^3 + \xi t\right) \right] dt$$

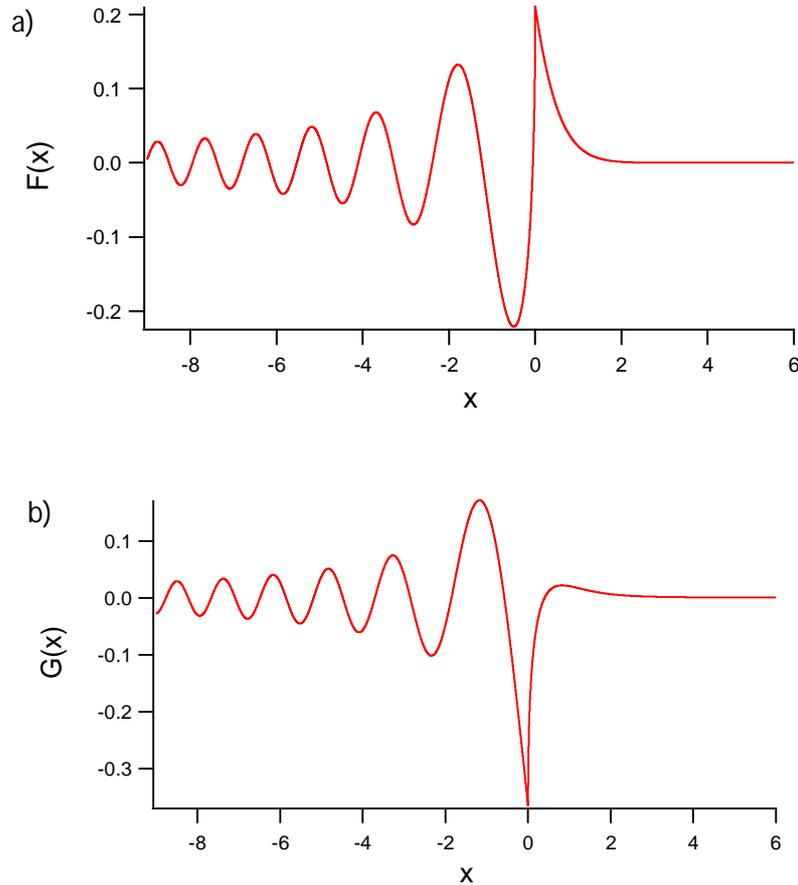


Figura 1.1: F (a) e G (b) in funzione della variabile adimensionale  $x = \frac{E_G - E}{\sigma}$ .

Questa descrizione permette di calcolare analiticamente le variazioni di parte reale ed immaginaria della costante dielettrica a seguito dell'applicazione di un campo statico ed uniforme. Poiché le proprietà ottiche del GaAs imperturbato sono ben note [7], possiamo simulare la variazione delle proprietà ottiche del semiconduttore in esame. In particolare, dall'indice di rifrazione in funzione dell'energia e dalla parte immaginaria della funzione dielettrica, è possibile ricavare il coefficiente di assorbimento secondo la relazione

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega \varepsilon_i(\omega)}{n(\omega)c}.$$

Come si osserva in figura 1.2 (a), questo formalismo permette di descrivere le caratteristiche dell'effetto Franz-Keldysh (già anticipato nell'introduzione):

l'applicazione di un campo elettrico ad un semiconduttore risulta in assorbimento ad energie inferiori a quelle della gap ed oscillazioni ad energie maggiori.

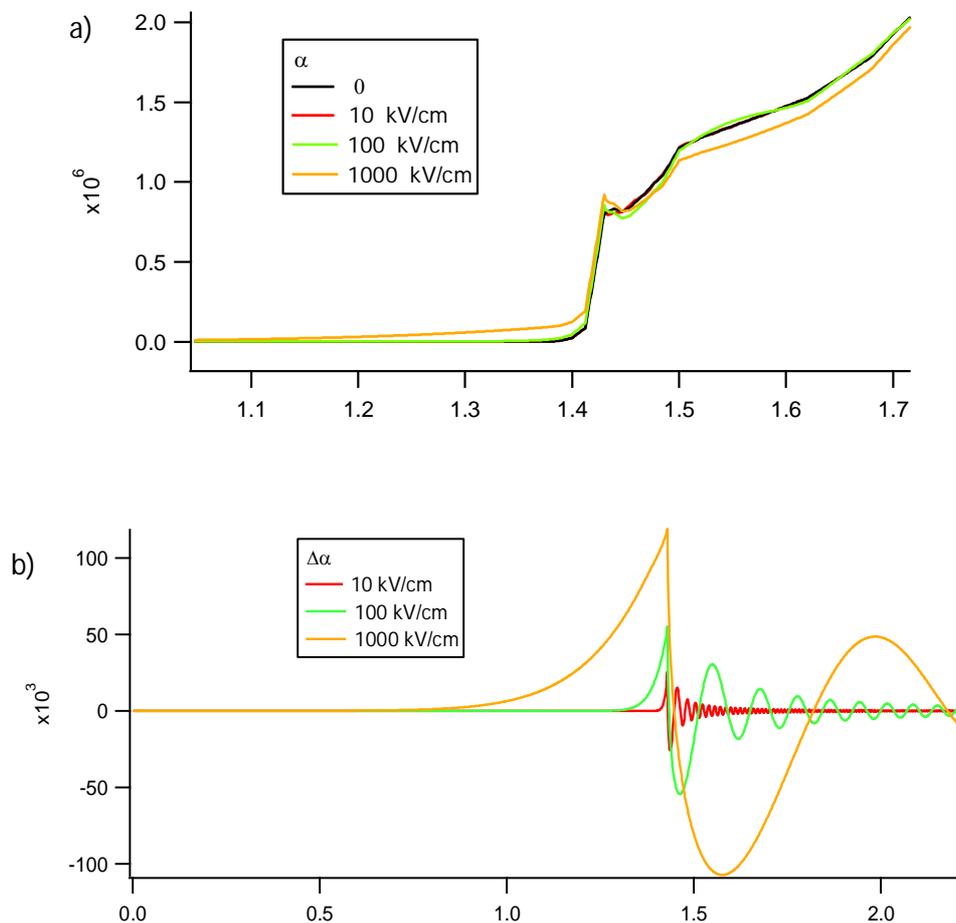


Figura 1.2: Simulazione dell'effetto Franz-Keldysh statico a) Coefficiente di assorbimento in funzione dell'energia per tre valori di  $\vec{E}$ . Si osserva l'assorbimento sotto gap e le oscillazioni sopra gap. b) differenza tra il coefficiente di assorbimento in presenza e in assenza di campo elettrico.

### 1.3 Introduzione all'effetto Franz-Keldysh dinamico

Dal momento che la trattazione esaustiva dell'effetto FK dinamico non è scopo di questa tesi, ne diamo di seguito una descrizione qualitativa.

L'effetto Franz-Keldysh dinamico (DFKE) descrive la risposta del sistema ad un campo elettrico non costante nel tempo. Gli effetti sono qualitativamente simili al caso statico: si nota la presenza di un assorbimento sotto gap e di oscillazioni al di sopra, sebbene queste ultime siano meno evidenti e molto più strutturate nel dominio dei tempi [8]. Si verifica inoltre un blue-shift della soglia di assorbimento di una quantità pari all'energia ponderomotrice  $U_p$

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\Omega^2} = \hbar\Omega\gamma,$$

che corrisponde all'energia cinetica media di una particella di massa  $m$  quando un campo elettrico  $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos(\Omega t)$  viene applicato [4].  $\gamma$  è il cosiddetto parametro adimensionale di Keldysh.

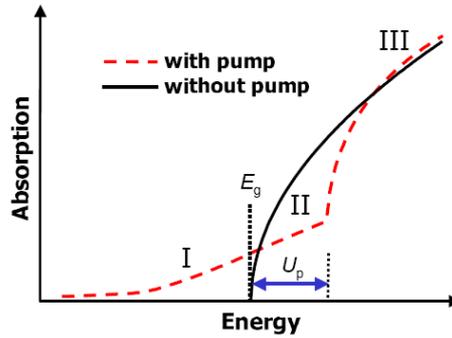


Figura 1.3: Coefficiente di assorbimento di un semiconduttore di energia di gap  $E_g$  in presenza (linea tratteggiata) e in assenza (linea continua) di campo elettrico impulsato applicato: si notano la regione di assorbimento sotto gap (I), il blue-shift della soglia di assorbimento (II) e le oscillazioni sopra gap (III) [4].

Quando  $U_p$  è dello stesso ordine di grandezza dell'energia caratteristica del sistema, o quando  $\gamma \approx 1$ , l'opacità indotta dal campo THz è descritta dall'effetto Franz-Keldysh dinamico. D'altro canto, quando  $\gamma \gg 1$  il regime è statico [5]

Per descrivere l'effetto Franz-Keldysh dinamico è possibile seguire la stessa procedura utilizzata per lo statico, considerando la dipendenza temporale del potenziale. In questo caso la soluzione dipende dall'integrale del campo rispetto al tempo [9].

Data la complessità della modellizzazione di questo fenomeno [10], nel seguito di questa tesi adotteremo un approccio fenomenologico. Come descritto nell'ultimo capitolo, il lavoro di questa tesi si concluderà con la formulazione di una descrizione fenomenologica dell'effetto FK in grado di descrivere il regime quasi-dinamico esplorato sperimentalmente.

# Capitolo 2

## Tecniche sperimentali

In questo capitolo descriveremo le tecniche sperimentali utilizzate per la misura dell'effetto FK dinamico. In particolare introdurrò la tecnica di pump and probe, il sistema laser utilizzato ed i concetti su cui si basa la generazione di impulsi ultracorti (mode locking). Nella seconda parte introdurrò le tecniche di ottica non lineare che ci hanno permesso di generare impulsi THz intensi (utilizzati come pompa) e quelli di luce bianca (utilizzati come probe).

### 2.1 Pump and Probe

Lo scopo dell'esperimento è quello di misurare variazioni della risposta ottica dell'arseniuro di gallio (GaAs) in seguito a perturbazioni dovute alla presenza di un campo elettrico impulsato e vedere se tale risposta può essere descritta con l'effetto Franz-Keldysh.

La tecnica sperimentale che permette di effettuare questo tipo di misure è chiamata di pump and probe. Pump (pompa) è il nome dato all'impulso di luce che costituisce la perturbazione, mentre l'impulso di probe (sonda) permette di misurare la risposta ottica del materiale in funzione del ritardo temporale tra impulso pompa e impulso sonda. In pratica viene misurata l'intensità del fascio di probe trasmesso o riflesso dal campione variando il ritardo dal fascio di pompa tramite un delay meccanico (una variazione del percorso ottico di  $1\mu\text{m}$  equivale ad un ritardo di 3.3 fs). In tal modo è possibile ottenere una scansione temporale della diseccitazione del campione. Gli impulsi di luce, necessariamente ultracorti per ottenere una buona risoluzione temporale, sono generati da un sistema laser amplificato.

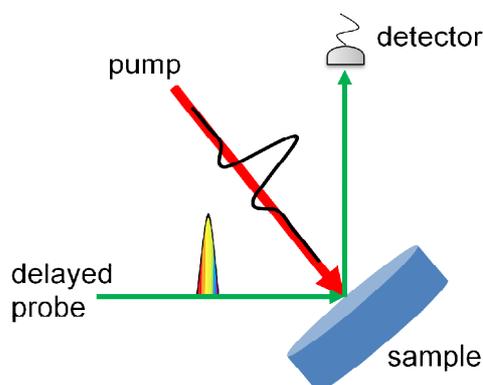


Figura 2.1: Rappresentazione schematica dell'esperimento di pump and probe

In questa tesi utilizziamo come pompa un impulso di luce terahertz. La regione spettrale del THz si estende da  $5 \text{ cm}^{-1}$  a  $200 \text{ cm}^{-1}$  ed è significativa per lo studio di materia condensata.

I probe usati negli esperimenti sono due: luce monocromatica a 900 nm per le misure in riflessione, e luce bianca per le misure in trasmissione.

In figura 2.1 è rappresentato schematicamente il setup sperimentale, i cui elementi verranno meglio descritti nel dettaglio nei paragrafi seguenti.

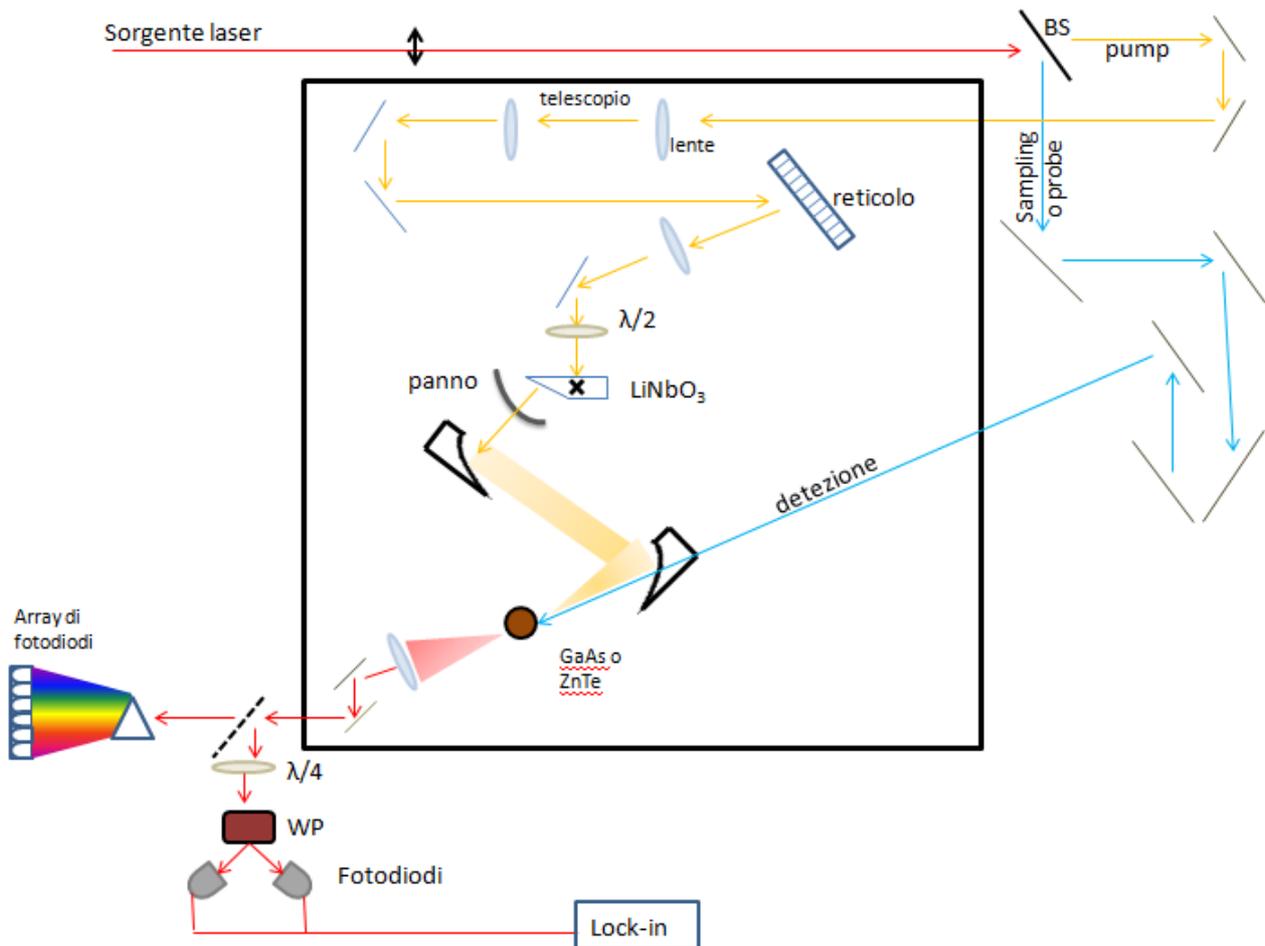


Figura 2.1: Rappresentazione schematica del setup sperimentale. Il fascio proveniente dal laser ad impulsi ultracorti viene diviso in due da un beam splitter (BS): uno dei due fasci (azzurro) viene utilizzato come il probe, o come sampling per la caratterizzazione dell'impulso THz. Il fascio di probe segue un percorso ottico la cui lunghezza può essere modificata tramite una slitta meccanica. Il secondo fascio (arancio) serve per la generazione degli impulsi THz che svolgono la funzione di pompa. La detezione della luce THz avviene per mezzo del prisma di Wollaston (WP) e dei due fotodiodi che si possono vedere nella parte bassa a sinistra della figura. Nel caso di misure di pump and probe, in trasmissione, viene riportato il setup sperimentale che utilizza impulsi di luce a banda larga (luce bianca), che vengono dispersi da un prisma e acquisiti da un array di fotodiodi.

## 2.2 Laser ad impulsi ultracorti

Introduciamo ora il sistema laser che è stato utilizzato negli esperimenti. Il laser utilizzato è composto da un oscillatore che produce impulsi di luce ultracorti a bassa intensità e da un sistema di amplificazione che ne aumenta l'energia.

### 2.2.1 L'oscillatore

#### 2.2.1a Mode-Locking

L'oscillatore è il componente che produce effettivamente gli impulsi ultracorti tramite la tecnica di mode-locking, che si basa sulle proprietà di un mezzo attivo (in questo caso  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ) e sulle caratteristiche geometriche della cavità. Il mode-locking si ottiene inducendo una differenza di fase costante tra i modi della cavità risonante. Il seguente modello fornisce una spiegazione semplificata. [12]

Consideriamo il campo elettrico all'interno della cavità laser come la somma dei campi di tutti i modi sostenuti nella stessa. In particolare una cavità lunga  $l$  sostiene modi a lunghezze d'onda  $\lambda = \frac{2l}{m}$  con  $m$  intero. Notiamo che la differenza di frequenze tra due modi successivi è

$$\Delta\nu = \frac{\Delta\lambda}{c} = \frac{2l}{c} \left( \frac{1}{m} - \frac{1}{m+1} \right).$$

Assumendo che tutti i modi oscillino con la stessa ampiezza e che non abbiano correlazione di fase, il campo elettrico totale può essere espresso come

$$E(t) = \sum_{n=-N}^N E_0 \exp[i(\omega_0 + n\Delta\omega)t + in\varphi] = e^{i\omega_0 t} A(N, t),$$

dove  $n$  è la differenza tra l'indice del modo considerato e quello ( $n_0$ ) con frequenza angolare  $\omega_0$ .

La frequenza  $\Delta\omega = 2\pi\Delta\nu$  angolare è considerata indipendente da  $n$ : se  $n_0 \gg N$  vale

$$\Delta\omega = \frac{4\pi l}{c} \left( \frac{1}{n_0 + n} - \frac{1}{n_0 + n + 1} \right) = \frac{4\pi l}{c} \frac{1}{(n_0 + n)(n_0 + n + 1)} \approx \frac{4\pi l}{c} \frac{1}{n_0^2}.$$

Cerchiamo ora di determinare l'espressione di

$$A(N, \tau) = \sum_{n=-N}^N E_0 e^{in\tau},$$

dove  $\tau = \Delta\omega t + \varphi$ .

La sommatoria può essere scomposta nei tre termini

$$\sum_{n=-N}^N E_0 e^{in\tau} = E_0 \left\{ \sum_{n=0}^N e^{in\tau} + \sum_{n=0}^N e^{-in\tau} - 1 \right\},$$

Nei primi due riconosciamo la serie geometrica, la cui somma è nota, ed otteniamo

$$\sum_{n=-N}^N E_0 e^{in\tau} = E_0 \left\{ \frac{1 - e^{iN\tau}}{1 - e^{i\tau}} + \frac{1 - e^{-iN\tau}}{1 - e^{-i\tau}} - 1 \right\}.$$

Infine eseguendo la somma e sfruttando alcune proprietà trigonometriche si ottiene

$$A(N, \tau) = E_0 \frac{\sin\left(\frac{2N-1}{2}\tau\right)}{\sin\left(\frac{\tau}{2}\right)}.$$

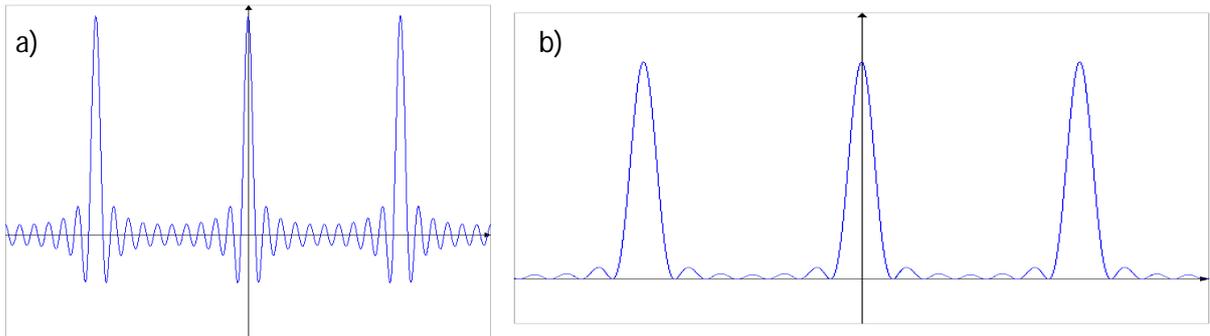


Figura 2.2: a) rappresenta  $A(\tau)$ , mentre in b) è riportato  $A^2(\tau)$

### 2.2.1b Kerr Lens Mode-Locking

Finora abbiamo considerato le proprietà della cavità, ora discuteremo le proprietà del  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  ed in particolare introdurremo l'effetto Kerr Lens Mode-Locking. Materiali come il  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$  hanno indice di rifrazione che dipende dall'intensità  $I$  della luce incidente secondo la relazione  $n = n_0 + n_2 I$ , dove  $n_2$  è positivo [12]. Per intensità piccole l'indice di rifrazione sarà praticamente costante, uguale a  $n_0$ , ed inferiore rispetto al caso di intensità elevata. Se consideriamo radiazione luminosa proveniente da una sorgente laser, il suo profilo di intensità trasversale  $I(x)$  sarà gaussiano

$$I(x) = I_0 \exp(-x^2/\sigma^2),$$

e quindi maggiore al centro del fascio rispetto agli estremi. Per l'effetto Kerr Lens il materiale avrà indice di rifrazione maggiore all'interno e minore nella parte più esterna del fascio: il mezzo funge da lente e focalizza il fascio. Introducendo infine una fenditura alla fine della cavità si può ottimizzare la focalizzazione del fascio. In questo modo la radiazione laser risulta compressa in impulsi ultracorti (da 1 a 100 fs).

## 2.2.2 L'amplificatore

L'amplificatore sfrutta la tecnica chirped-pulse amplification, che prevede l'utilizzo di reticoli per allungare gli impulsi, prima di amplificarli, in modo che non venga danneggiato il cristallo dell'amplificatore. Per questo motivo il sistema di amplificazione è diviso in tre parti: stretcher, amplificatore e compressore.

Il passaggio nello stretcher determina l'allungamento temporale dell'impulso grazie a quattro riflessioni su reticolo intervallate da uno specchio invertente: in questo modo le componenti spettrali dell'impulso vengono disperse spettralmente e l'impulso viene dilatato temporalmente.

L'amplificatore è una cavità con un mezzo attivo (nel nostro caso Ti:Sa), il cui indice di rifrazione varia linearmente in funzione del campo elettrico per effetto Pockels.

L'impulso amplificato viene ricompresso nel compressore con un processo inverso rispetto a quello dello stretcher, ad esclusione dello specchio invertente.

## 2.2.3 Il sistema laser

Il sistema laser usato è costituito da un oscillatore al  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ , Coherent-Mira (che produce impulsi di 20 fs, lunghezza d'onda 798 nm, potenza 350mW e repetition rate 76 MHz), pompato da un laser a vanadato di neodimio (Nd:YVO4), Coherent Verdi (lunghezza d'onda 532 nm e potenza media 5W), e da un amplificatore, Coherent Legend, che produce impulsi di 50 fs, lunghezza d'onda 800 nm e repetition rate 1kHz, pompato da un laser a Nd:YLF (lunghezza d'onda 527 nm, impulsi di 300 ns, potenza media 20 W e repetition rate 1 kHz)

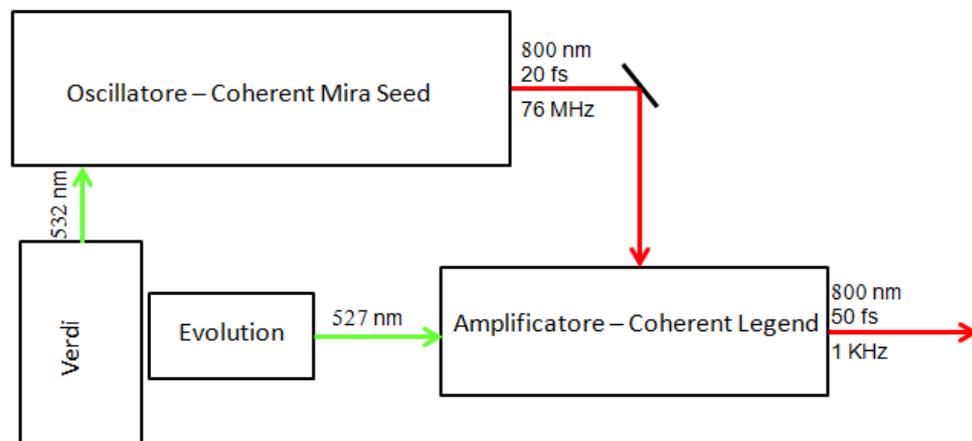


Figura 2.3: Descrizione a blocchi del sistema laser

## 2.3 L'impulso di pump

### 2.3.1 Impulsi Terahertz: generazione e detezione

Uno dei metodi più comuni per la generazione e la detezione di impulsi THz è l'“optical rectification”, che consiste nel passaggio di un impulso laser di durata dell'ordine delle decine o centinaia di femtosecondi in un mezzo elettroottico non lineare. L'impulso laser incidente induce una variazione non lineare della polarizzazione nel mezzo, che agisce come una sorgente di radiazione elettromagnetica con uno spettro energetico che va da “zero” a diversi THz.

Un processo analogo è l'EOS (electro-optic sampling), che rappresenta essenzialmente l'inverso di quanto descritto in precedenza: in questo caso un impulso THz viene “unito” a un impulso ottico in un mezzo non lineare.

La polarizzazione indotta in un mezzo elettro-ottico non lineare (generalmente, come nel nostro caso, ZnTe) sarà

$$P_i(\omega) = 2 \sum_{jk} \chi_{ijk}(\omega = \omega + 0) E_j(\omega) E_k(0). \quad [11]$$

Un campo statico induce quindi una birifrangenza nel mezzo che è proporzionale all'ampiezza del campo applicato: l'EOS permette di ricavare il valore del campo da una misura della birifrangenza.

L'impulso THz (~1 ps) e l'impulso ottico (~50 fs) si propagano nel mezzo: l'impulso ottico vede un campo elettrico costante e la sua polarizzazione viene ruotata a causa della birifrangenza indotta dal campo. Il grado di rotazione sarà proporzionale all'ampiezza del campo THz nell'istante in cui i due impulsi si sovrappongono. Per misurare l'effetto della birifrangenza si posiziona una  $\lambda/4$  (lamina quarto d'onda) dopo il materiale elettroottico, che converte la polarizzazione da lineare a ellittica, seguita da un prisma di Wollaston che consente di ottenere da un'onda con polarizzazione arbitraria due onde divergenti con polarizzazione lineare ortogonale, le cui intensità verranno infine misurate da due fotodiodi. In assenza di campo THz si ruota la  $\lambda/4$  in modo che la polarizzazione sia circolare e quindi la differenza tra le tensioni misurate dai diodi sia zero. A questo punto, in presenza del campo THz la polarizzazione diventerà ellittica, le componenti separate dal prisma di Wollaston avranno diversa intensità e i fotodiodi non saranno più bilanciati.

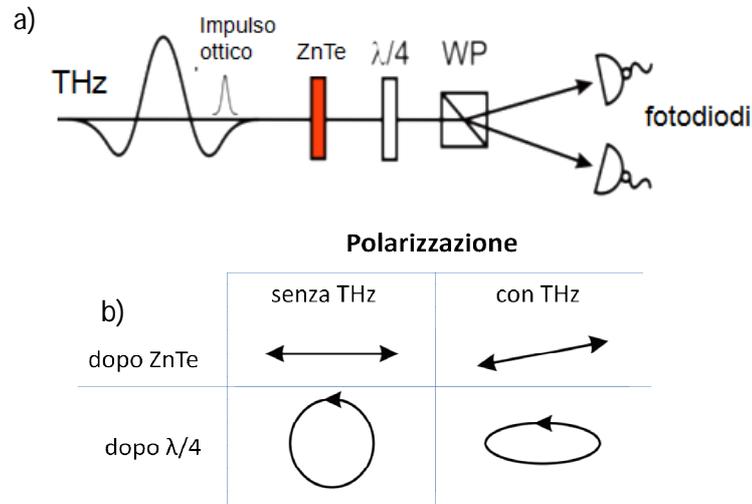


Figura 2.4: a) Rappresentazione schematica dell'EOS. b) Effetto del cristallo di rivelazione ZnTe e  $\lambda/4$  sulla polarizzazione dell'impulso. [11]

Variando il ritardo relativo tra l'impulso ottico e quello THz è possibile ottenere l'ampiezza dell'impulso THz in funzione del tempo.

## 2.3.2 Fronte d'onda tiltato

La generazione di impulsi di luce THz intensi a sufficienza da essere utilizzato come pompa in esperimenti di pump and probe si basa su una tecnica chiamata tilted wave front.

Affinché l'optical rectification sia efficiente la velocità di gruppo degli impulsi laser ultracorti deve essere uguale alla velocità di fase dell'impulso THz generato. In questo modo i nuovi fotoni THz emessi saranno in fase con quelli prodotti negli istanti precedenti. Si nota che in alcuni cristalli ad alto coefficiente elettroottico la velocità di fase dell'impulso THz è più piccola rispetto alla velocità di gruppo dell'impulso laser infrarosso. Una soluzione a questo problema è quella di inclinare il fronte d'onda della radiazione laser. La radiazione THz prodotta dall'impulso tiltato, infatti, si propaga con velocità perpendicolare al fronte d'onda stesso, con una certa velocità  $v_{THz}$ . L'angolo tra la direzione di propagazione del THz e della pompa sarà uguale all'angolo di inclinazione del fronte d'onda del laser infrarosso.

Se la velocità di propagazione dell'impulso infrarosso è maggiore di quella dell'impulso THz la condizione sulle velocità può essere soddisfatta da una scelta opportuna dell'angolo di inclinazione del fronte d'onda,  $\gamma$ , in modo che si verifichi la relazione

$$v \cos \gamma = v_{THz} .$$

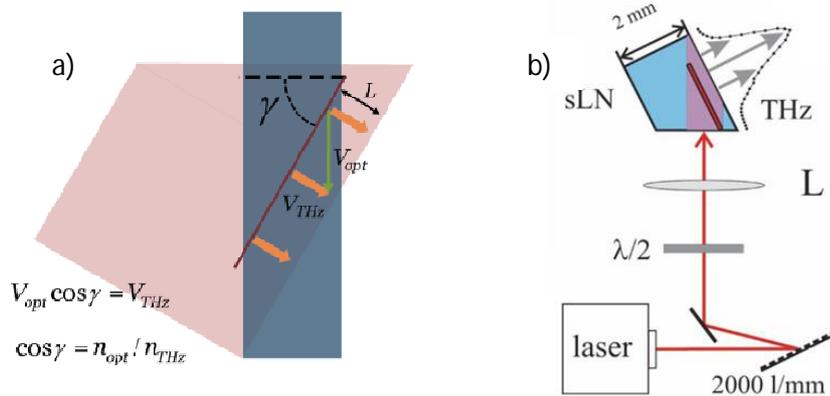


Figura 2.6: Fronte d'onda tiltato e generazione dell'impulso THz all'interno del mezzo elettroottico non lineare (LiNbO<sub>3</sub>) [13, 14].

Per inclinare il fronte d'onda viene usato un reticolo come riportato in figura 2.6. La polarizzazione del fascio incidente prima del reticolo è orizzontale, per avere la massima efficienza, mentre una  $\lambda/2$  posta in seguito ruoterà la polarizzazione da orizzontale a verticale affinché quest'ultima sia allineata con l'asse ottico del cristallo di LiNbO<sub>3</sub>, perpendicolare al piano del foglio.

Bisogna tener conto del fatto che l'angolo cambiava nel cristallo a causa della variazione dell'indice di rifrazione. Come si può notare in figura 2.7 la proiezione del fronte d'onda sul piano perpendicolare alla direzione di propagazione della radiazione è la stessa, indipendentemente dall'indice di rifrazione. Si ottiene quindi l'uguaglianza

$$\frac{\tan \gamma}{a} = \frac{\tan \gamma^*}{a^*}.$$

Sapendo che la velocità di propagazione è inversamente proporzionale all'indice di rifrazione e che quest'ultimo al di fuori del cristallo può essere considerato pari a 1 (aria), si ottiene la relazione

$$\tan \gamma = (1/n) \tan \gamma^*,$$

dove  $\gamma^*$  è l'angolo di tilting all'esterno del cristallo e  $n$  l'indice di rifrazione del cristallo stesso.

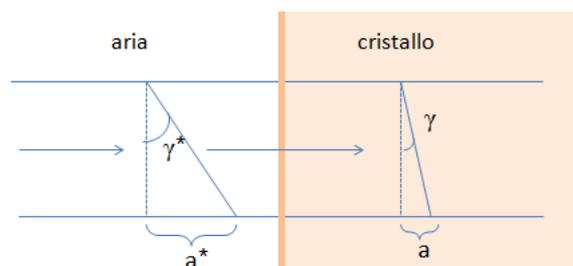


Figura 2.7: Fronte d'onda inclinato all'esterno e all'interno del cristallo.

## 2.4 L'impulso di probe: generazione di luce bianca

Descriviamo ora il meccanismo non lineare che ci permette di produrre impulsi di luce bianca supercontinua utilizzati come probes.

La generazione di luce bianca sfrutta cristalli con proprietà ottiche non lineari e quindi fasci con intensità elevate. In pratica durante l'attraversamento del cristallo da parte degli impulsi laser intensi ed ultracorti, il fascio viene disperso in una banda sufficientemente larga da apparire come luce bianca.

Il fenomeno della generazione di luce bianca supercontinua si basa prevalentemente su due processi: Self Focusing (auto focalizzazione) e Self Phase Modulation (auto modulazione di fase), entrambi dovuti principalmente all'effetto Kerr ottico, ossia la dipendenza, in alcuni materiali, dell'indice di rifrazione dall'intensità della luce incidente  $I$ :  $n = n_0 + n_2 I$  con  $n_0$  indice di rifrazione per  $I \rightarrow 0$ .

Il Self Focusing dipende essenzialmente dal fatto che l'intensità di un fascio non è solitamente uniforme nella sua sezione. Supponiamo che il profilo trasverso di intensità sia del tipo

$$I(r) = I_0 \exp(-r^2/\sigma^2),$$

dove  $r$  è la distanza dal centro dell'impulso.

Se  $n_2$  è maggiore di zero, condizione solitamente verificata, l'indice di rifrazione decresce dal centro della sezione verso l'esterno e il cristallo agisce come una lente.

Considerando anche la diffrazione si dimostra che il self-focusing avviene solo se la potenza dell'impulso è maggiore di una potenza critica, indipendentemente dall'intensità [15].

Nel caso dell'automodulazione di fase l'effetto Kerr non è determinato dal profilo trasversale d'intensità, ma dalla dipendenza di quest'ultima dal tempo. Il fenomeno della self phase modulation si verifica quindi per segnali intensi e modulati nel dominio dei tempi. Consideriamo una dipendenza temporale dell'intensità di tipo gaussiano,

$$I(t) = I_0 \exp(-t^2/\tau^2),$$

e supponiamo che  $I(t)$  non cambi attraversando il materiale.

Per effetto Kerr l'indice di rifrazione sarà anch'esso dipendente dal tempo secondo la relazione

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t)$$

Se  $d$  è lo spessore del mezzo in cui la luce si propaga, il cammino ottico, ossia la distanza percorsa dalla luce nel vuoto nello stesso tempo impiegato per percorrere la distanza  $d$  nel mezzo, vale  $L = ct = nd$ . Quindi la variazione di cammino ottico tra il caso di indice di rifrazione dipendente dal tempo e quello indipendente è

$$\Delta L = n_2 d I(t) = n_2 d I_0 \exp(-t^2/\tau^2)$$

Questa variazione comporta uno sfasamento pari a

$$\Delta\phi = -\frac{2\pi}{\lambda_0} \Delta L = -\frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 d I_0 \exp(-t^2/\tau^2),$$

dove  $\lambda_0$  è la lunghezza d'onda dell'impulso.

La variazione di frequenza angolare sarà uguale alla derivata temporale della variazione dello sfasamento, ovvero

$$\Delta\omega = \frac{\partial\Delta\phi}{\partial t} = \frac{4\pi}{\lambda_0} n_2 d I_0 \frac{t}{\tau^2} \exp(-t^2/\tau^2)$$

Dallo studio di funzione di questa quantità in funzione del tempo si osserva che l'impulso è disperso temporalmente e che lunghezze d'onda maggiori precedono le minori.

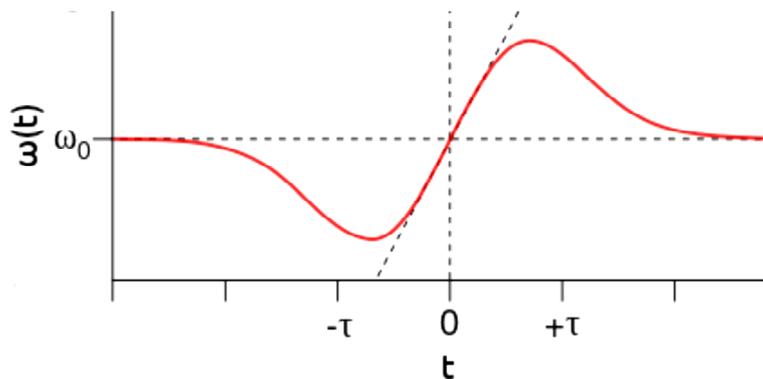


Figura 2.7: La funzione  $\Delta\omega(t)$  in funzione del tempo [15].

# Capitolo 3

## Presentazione e discussione dei risultati sperimentali

In questo capitolo presenteremo e discuteremo gli esperimenti effettuati. La prima parte sarà dedicata alla presentazione e discussione delle misure per la caratterizzazione degli impulsi THz. Nella seconda parte discuteremo gli esperimenti di pump and probe effettuati con impulsi di pompa nel THz e probe nel visibile e vicino infrarosso.

### 3.1 Caratterizzazione degli impulsi THz

Prima di effettuare la misura risolta in tempo delle proprietà ottiche dell'arseniuro di gallio è necessario caratterizzare l'impulso di pompa. In particolare stimiamo il valore del campo elettrico  $\vec{E}(t)$  in funzione del tempo tramite un confronto tra le misure di Electro-optical sampling, che caratterizzano la forma temporale del campo (paragrafo 2.3.1) ed una misura di intensità integrata ottenuta con un rivelatore piroelettrico.

Infatti in una misura di electro optic sample la differenza in tensione tra i due fotodiodi è direttamente proporzionale all'ampiezza del campo elettrico applicato.

La potenza del fascio di pompa è stata misurata con un bolometro sensibile alla radiazione elettromagnetica con frequenze comprese tra 0.1 THz e 30 THz (lunghezze d'onda fra 10  $\mu\text{m}$  e 300  $\mu\text{m}$ ). La responsività del bolometro è pari a  $6.55 \cdot 10^4 \text{ V/W}^1$  chopando il fascio THz a 5 Hz. Pertanto, dato che il tipico valore di tensione registrata tramite oscilloscopio è dell'ordine di 9 V e sapendo che la potenza della sorgente laser utilizzata per la generazione è di circa 1 W, possiamo calcolare l'efficienza di generazione degli impulsi di pompa:

$$\eta = \frac{9\text{V}}{6.55 \cdot 10^4 \text{ V/W}} \cdot \frac{1}{1\text{W}} \approx 0.014\% ,$$

in accordo con i valori riportati in letteratura [12].

L'energia di un impulso THz, singolo ciclo ottico che si estende temporalmente per circa 1 ps, è quindi pari a circa 0.14  $\mu\text{J}$  e consente di calcolare la costante di proporzionalità,  $\alpha$ , fra rivelazione EOS e ampiezza effettiva del campo elettrico generato:

---

<sup>1</sup> Calibrazione effettuata da Gentec-eo per luce laser a 632.8 nm

$$0.14\mu\text{J} = \frac{A\varepsilon_0}{2} \int (\alpha\zeta(x))^2 dx = \frac{A\varepsilon_0}{2} \int (\alpha\zeta(t))^2 dt$$

e dove  $A$  è la sezione del fascio,  $\varepsilon_0$  è la costante dielettrica nel vuoto,  $\alpha$  è la costante di proporzionalità,  $E$  è il campo elettrico, mentre  $\zeta$  è il valore fornito delle misure di EOS ( $E(t) = \alpha\zeta(t)$ ).

$\alpha$  risulta pari a circa 100 kV/(cm·mV), pertanto il massimo valore del campo  $E(t)$  (la cui forma temporale è raffigurata in Fig.3.1a) generato tramite schema di generazione tilted front (paragrafo 2.3.2) è di 100 kV/cm.

Dalla trasformata di Fourier, infine, si possono ottenere le componenti spettrali presenti nell'impulso. Fig.3.1(b) mostra l'ampiezza della trasformata di Fourier dell'impulso di campo elettrico riportato in fig. 3.1(a).

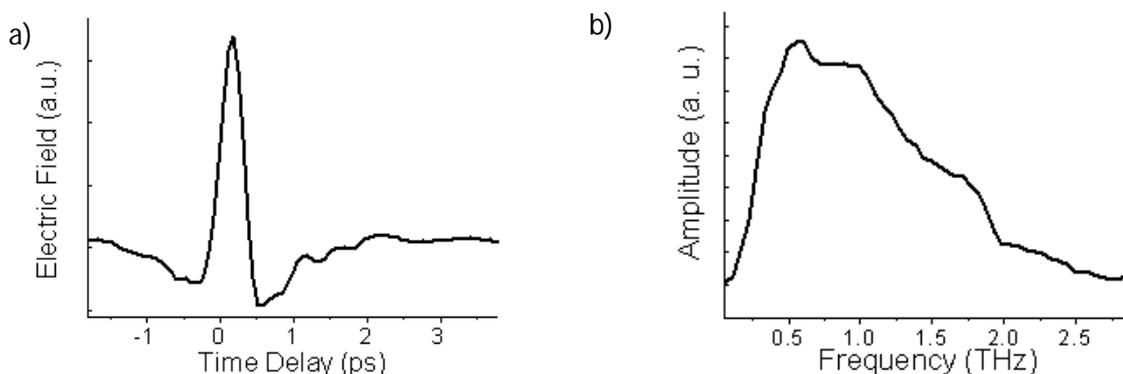


Figura 3.1: a) Valori del campo THz in funzione del ritardo tra impulso di pompa e si sonda. b) spettro dell'impulso THz

## 3.2 Misure pompa-THz sonda-luce bianca in trasmissione

Abbiamo effettuato una serie di misure risolte in tempo della variazione della trasmissione di un campione di GaAs spesso 400  $\mu\text{m}$  e leggermente drogato ( $8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ), a seguito di perturbazione con impulsi di luce THz. In particolare per le misure in trasmissione, abbiamo utilizzato come probe impulsi di luce bianca con un contenuto spettrale tra 400 e 1300 nm [15]. Una volta attraversato il campione, tale luce è stata dispersa da un prisma su un array di rivelatori, per misurare la variazione delle proprietà ottiche del semiconduttore su un ampio spettro (da 1 a 3 eV). Le misure hanno mostrato che a seguito della fotoeccitazione con impulsi corti a frequenze THz si ha un crollo quasi istantaneo della trasmissione  $\Delta T = T(t)_{pumped} - T(t)_{statico}$ , per energie inferiori al gap [Fig. 3.2], qualitativamente in accordo con l'aumento dell'assorbimento indotto da un campo elettrico per effetto Franz-Keldysh. Si fa notare che non è possibile descrivere in modo appropriato la dipendenza del transiente dal ritardo tra fra pompa e probe: il Franz-Keldysh statico prevede infatti che la variazione delle proprietà ottiche sia lineare nell'andamento del campo applicato [16]. Al contrario, un confronto diretto tra i valori della trasmittanza (figura 3.2 b) e la forma dell'impulso di campo elettrico applicata (figura 3.2 a) mostra che il crollo di trasmissione non è direttamente proporzionale al valore istantaneo del campo elettrico. Ciononostante mostreremo di seguito che è possibile riprodurre la variazione della trasmissione ad ogni tempo fissato  $\bar{t}$  tramite il modello Franz-Keldysh statico, utilizzando un valore efficace per il campo elettrico  $\vec{E}_{eff}(t)$  ed un solo parametro fenomenologico. Ciò suggerisce che è possibile definire per ogni ritardo,  $t$ , fra impulso pompa e impulso sonda un campo efficace  $\vec{E}_{eff}(t)$  che sia funzione del campo THz misurato tramite EOS ( $\vec{E}(t)$ ).

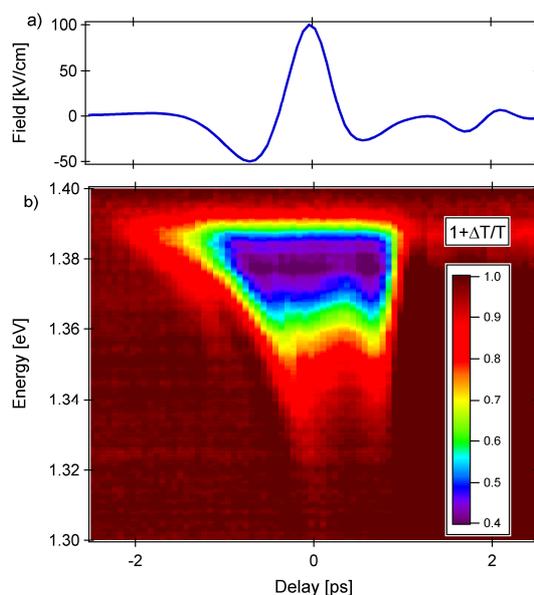


Figura 3.2: a) Valori del campo elettrico misurato tramite misure di electro-optical sample. (b) Variazione della trasmissione di GaAs in funzione del ritardo tra pump e probe e della lunghezza d'onda di probe. Sull'asse x è riportato il ritardo temporale fra impulso di pompa ed impulso di probe, sulle ordinate l'energia della radiazione di probe, i colori indicano la variazione della trasmissione.

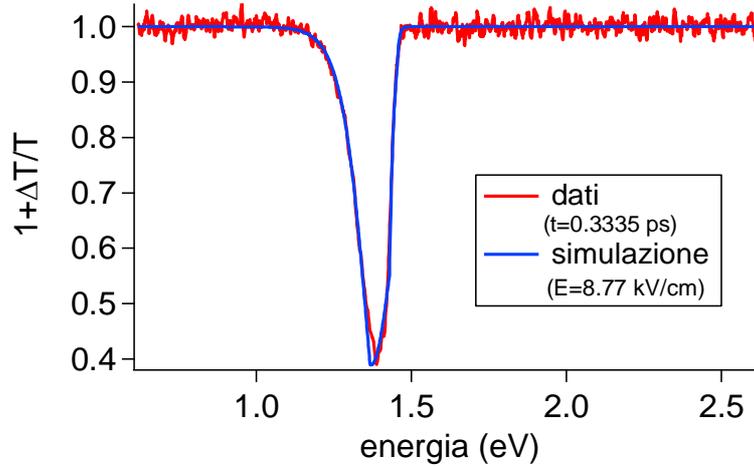


Figura 3.3: Misure in trasmissione in funzione dell'energia del probe. La curva rossa rappresenta un taglio verticale della figura 3.2 a  $t=0.3335$  ps mentre la blu rappresenta la simulazione basata sulla teoria del Franz-Keldysh statico con campo elettrico pari a  $8.772$  kV/cm

### 3.3 Misure della riflessione in funzione dell'energia di pompa

Per studiare la regione di transizione tra il regime dinamico e quello statico dell'effetto Franz-Keldysh abbiamo effettuato una serie di misure risolte in tempo regolando l'intensità della luce THz e sondando la variazione relativa della riflettività sotto gap (a

$$900 \text{ nm}) \quad \Delta R(t)/R = \frac{R_{statica} - R(t)_{pompa}}{R_{statica}}$$

Per regolare la potenza della pompa sono stati posizionati due polarizzatori lungo il ramo di generazione. Il primo è ruotato di un angolo  $\theta$ , mentre il secondo è fissato e orientato in modo da avere la massima trasmissione dell'impulso THz se il primo è rimosso: l'utilizzo dei polarizzatori permette, pertanto, di variare l'intensità del pump in modo proporzionale a  $\cos^2\theta$ .

Sono state effettuate otto misure diverse, con angoli di polarizzazione variabili tra  $0$  e  $45^\circ$ , ovvero per valori di campo massimo compresi tra  $47.5$  e  $95$  kV/cm e intensità tra  $25\%$  e  $100\%$  dell'intensità massima prodotta. I risultati sono riportati in figura 3.4.

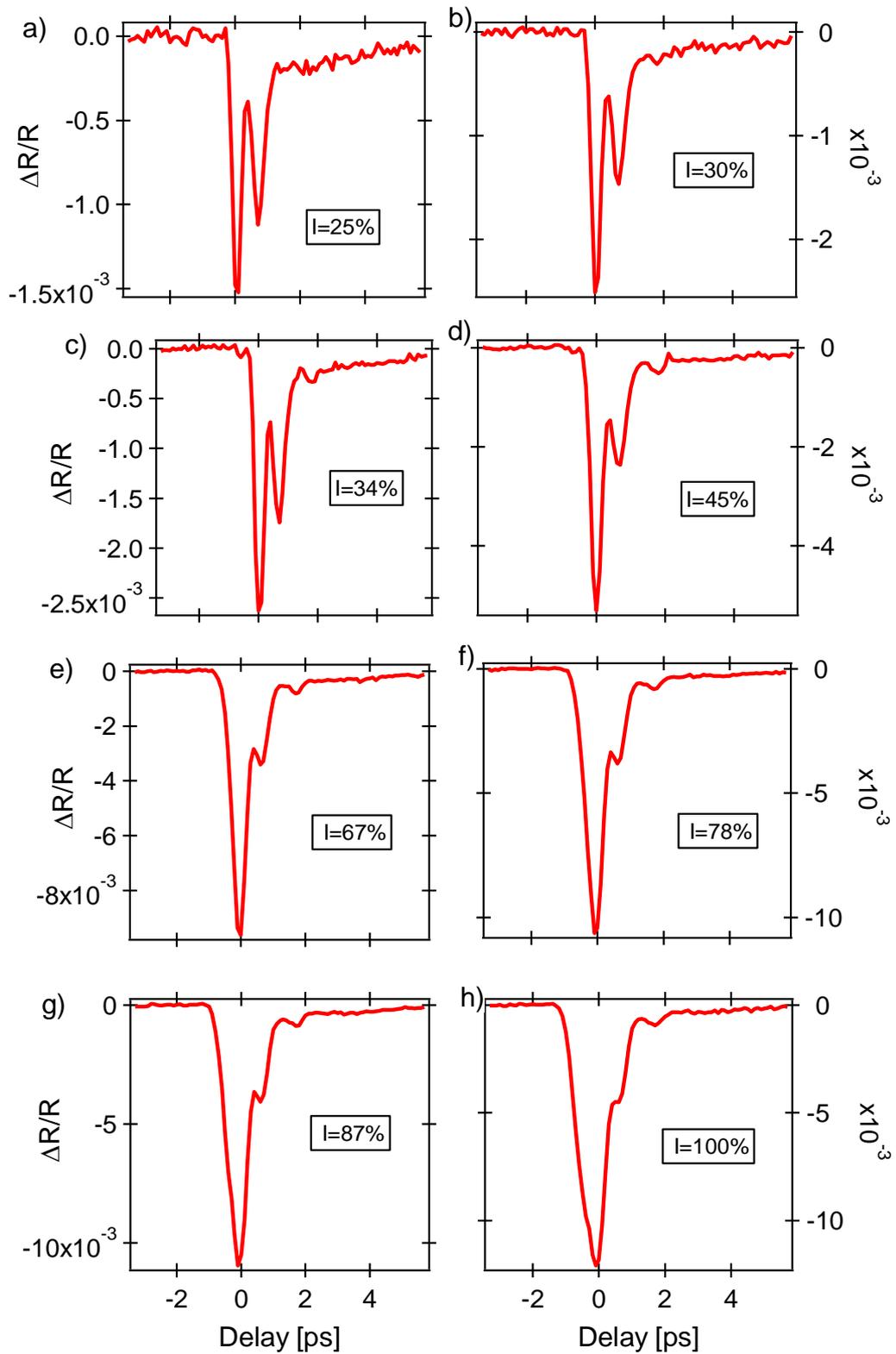


Figura 3.4: Variazione relativa della riflettività  $\Delta R(t)/R = \frac{R_{statica} - R(t)_{pompa}}{R_{statica}}$  in funzione del ritardo temporale tra pump e probe per diverse intensità.

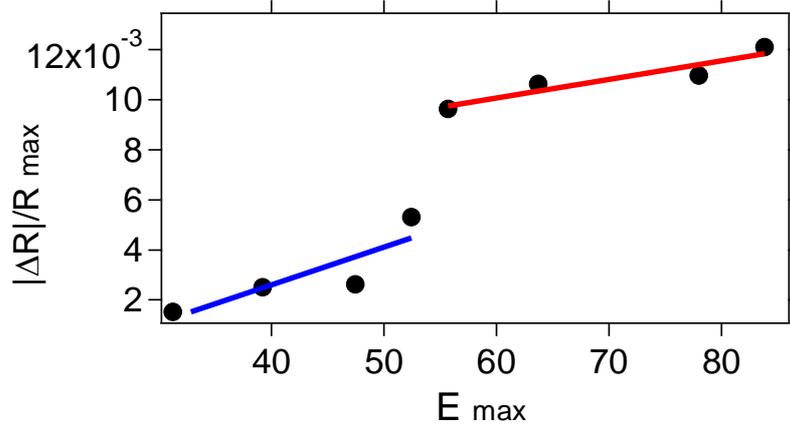


Figura 3.5: Valori massimi di  $\Delta R(t)/R$  in funzione dell'ampiezza massima dell'impulso di pompa THz. Le linee di tendenza (blu e rossa) evidenziano i due regimi.

In figura 3.5 sono riportati i valori massimi della variazione relativa di riflettività in funzione del valore di picco del campo THz applicato come pompa. Si notano in maniera evidente due andamenti diversi: uno per campi più bassi, ovvero per grandi angoli di polarizzazione, e uno per valori di campo maggiori. Queste differenze confermano il cambiamento di regime fra Franz-Keldysh statico per intensi campi elettrici ( $\gamma \gg 1$ ) e Franz-Keldysh dinamico per campi impulsati meno intensi ( $\gamma \approx 1$ ). Un'espressione fenomenologica per il campo efficace che sembra descrivere la variazione relativa di riflettività è

$$E_{\text{eff}}(t, I) = A(I^4) \int \left( |E(t'')| \frac{\frac{1}{t''} \int_0^{t''} |I(t')|^2 dt'}{1 + B(I^4) \frac{1}{t''} \int_0^{t''} |I(t')|^4 dt'} \right) e^{-(t-t'')/(1+3I^2)} dt'',$$

dove  $E$  è il campo THz e  $I = E(t)^2$ , mentre  $A$  e  $B$  sono due funzioni che dipendono dalla quarta potenza dell'intensità massima normalizzata a 1.

Le figure 3.6 e 3.7 riportano, rispettivamente, le simulazioni insieme ai dati ed i valori dei picchi della riflettività transiente calcolati e misurati. Tale equazione, oltre a descrivere con un buon grado di approssimazione la variazione delle proprietà ottiche sotto gap del GaAs, è giustificata dalle seguenti considerazioni:

- Per basse intensità di campo,  $E_{\text{eff}}(t)$  è dominato dal termine integrale dell'intensità in accordo con la soluzione dell'equazione di Schrödinger con un potenziale time-dependent [9];
- All'aumentare dell'intensità, il termine al denominatore sopprime la componente dell'integrale dell'intensità, lasciando la dipendenza del modulo del campo come predetto dal modello Franz-Keldysh statico [16]. La convoluzione con una funzione esponenziale, d'altro canto, è puramente fenomenologica e tiene conto dell'apparente perdita di risoluzione temporale per piccoli angoli  $\theta$  del polarizzatore.

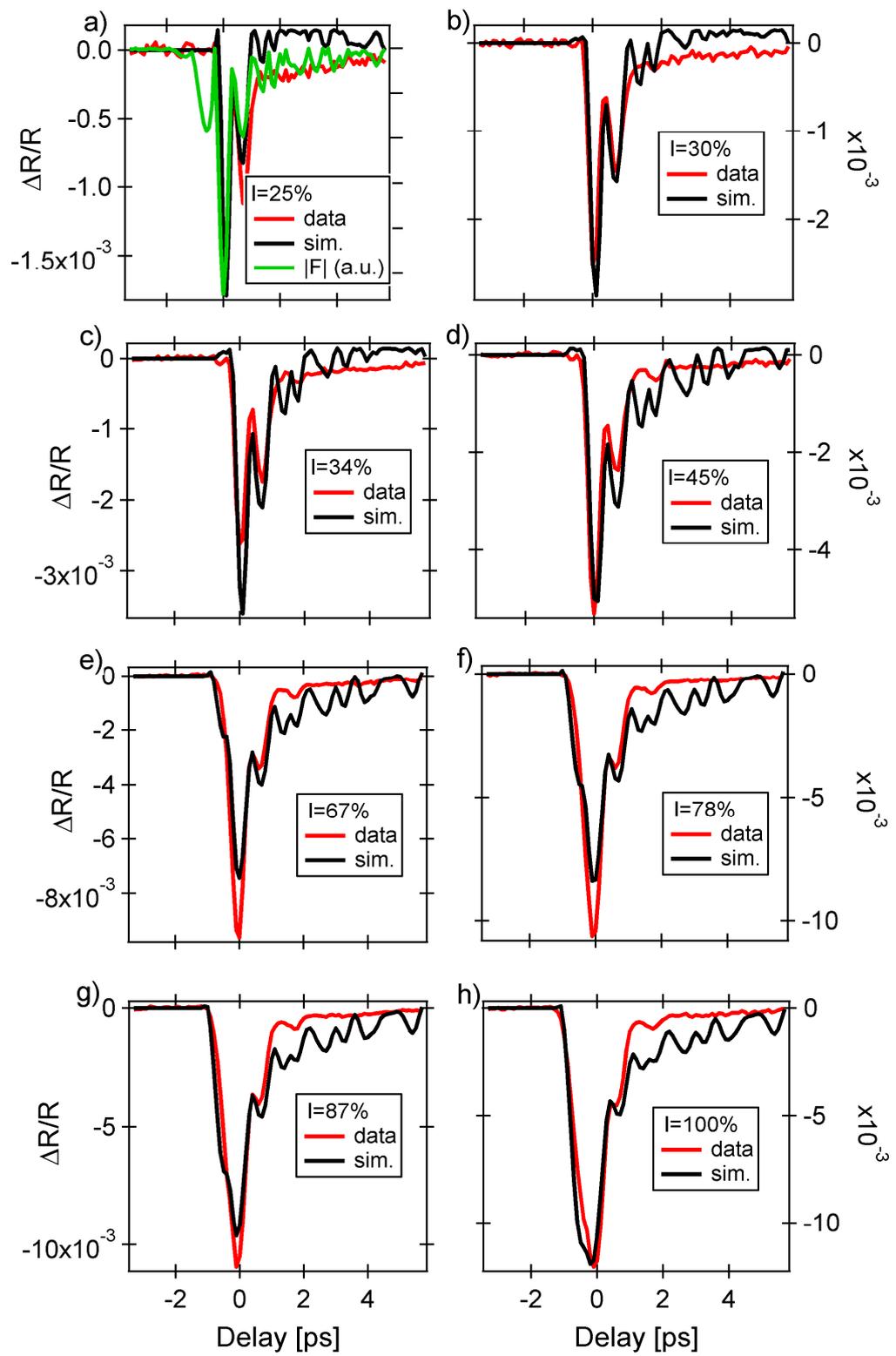


Figura 3.6 Variazione della riflettività ( $\Delta R(t)/R$ ) in funzione del ritardo (in ps) tra pump e probe: confronto tra dati sperimentali (rosso) e simulazione con il campo efficace  $F_{eff}$  (nero) riportato nel testo.

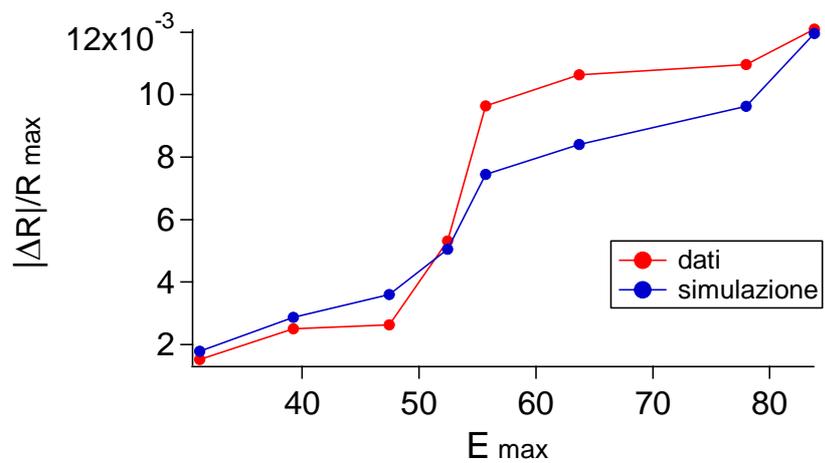


Figura 3.7: Differenza tra i valori di picco di  $|\Delta R(t)|/R$  dei dati sperimentali (rosso) e della simulazione (blu)

# Conclusioni

In questa tesi abbiamo studiato tramite tecnica di pump and probe la variazione delle proprietà ottiche dell'arseniuro di gallio per effetto Franz-Keldysh. Gli impulsi di pompa erano impulsi THz intensi generati per optical rectification e tilted wave front generation. Gli effetti del pump sulle proprietà ottiche del semiconduttore sono stati sondati da impulsi di luce bianca, generata tramite supercontinuo, o monocromatica, filtrata a 900 nm.

In particolare abbiamo misurato la trasmittanza con probe di luce bianca in modo da acquisire valori della grandezza in funzione dell'energia del probe, oltre che del ritardo tra impulso di pompa e sonda. Dall'osservazione dei dati si nota che i valori della trasmittanza possono essere riprodotti con la teoria del Franz-Keldysh statico, ma sostituendo ai valori del campo di pompa quelli di un campo elettrico efficace.

Successivamente sono state effettuate misure della riflettività sullo stesso campione ad una sola lunghezza d'onda, ma per intensità variabili del campo THz. Si è così risaliti ad un'espressione fenomenologica del campo efficace dipendente dall'intensità massima dell'impulso di pompa e dal tempo. Non solo questo campo permette di ottenere risultati in accordo con le misure, ma si nota anche che nei limiti per intensità molto elevate e molto piccole questo assume l'andamento previsto dalle due teorie già note (rispettivamente per  $\gamma \gg 1$  e  $\gamma \approx 1$ ).

# Bibliografia

- [1] P. Y. Yu, M. Cadorna, *Foundamentals of Semiconductors – Physics and Materials Properties* pp. 254-261, 322-325
- [2] W. Franz, *Z. Naturforsch* 13a, 484 (1958)
- [3] W.L. Keldysh, *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.* 34, 1138 (1958)
- [4] A. Srivastava, R. Srivastava, J. Wang and J. Kono, *Phys. Rev. Lett.* 93, 157401 (2004)
- [5] K.B. Nordstrom et al., *Phys. Rev. Lett.* 81, 457 (1998)
- [6] K. Tharmalingam, *Phys. Rev.* 130, 2204 (1963)
- [7] E. D. Palik, *Handbook of optical constants of solids*
- [8] A. P. Jauho and K. Johnsen, *Phys. Rev. Lett.* 76, 4576 (1996)
- [9] M.V. Berry, N.L. Balazs, *Am. J. Phys.* 47, 264 (1979)
- [10] Y. Yacoby, *Phys. Rev.* 169, 610 (1968)
- [11] N. Dean, *Electronic and Structural Dynamics of Complex Material*, PhD Thesis, Jesus College, Oxford (2011)
- [12] D. Fausti, *Dinamiche elettroniche di superficie*, Tesi di laurea, Università Cattolica, Brescia (2002)
- [13] J. Hebling et al., *J. Opt. Soc. Am. B* 25, B6 (2008)
- [14] <http://thz.yale.edu/technique/tilted-wavefront-thz-generation>
- [15] F. Randi, *Generazione e caratterizzazione di un impulso supercontinuo di luce bianca*, Tesi di laurea triennale, Università degli studi di Trieste (2011)
- [16] B.O. Seraphin and N. Bottka, *Phys. Rev.* 139, A560 (1965)