### UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI TRIESTE DIPARTIMENTO DI FISICA Corso di Laurea in Fisica



## Progettazione e realizzazione sperimentale di un amplificatore ottico parametrico

Relatore: Dott. Daniele FAUSTI Correlatore: Dott. Fabio NOVELLI

Candidato: Andrea MATTIONI

Anno Accademico 2012/2013

## Introduzione

L'interazione tra radiazione e materia sta alla base della nostra conoscenza della Natura. La riflessione, l'assorbimento o la diffusione di un segnale luminoso da parte di un sistema fisico, chimico o biologico, ne influenza le proprietà, inducendo gli effetti più disparati: transizioni di fase, trasferimenti di carica, formazione o rottura di legami ecc. Questi fenomeni, pur avendo energie caratteristiche anche molto diverse tra loro, spesso sono accomunati dalla scala temporale su cui si verificano, che tipicamente è quella dei femtosecondi.

La tecnica principe impiegata per studiare la dinamica di questi fenomeni è quella del *pump-probe*. Essa è basata sulla seguente idea: il sistema viene perturbato da un impulso di luce molto intenso, detto di pompa o *pump*; in un secondo momento un impulso meno intenso, detto di sonda o *probe*, viene fatto interagire con il sistema e successivamente rilevato. Dopo l'interazione con il campione il *probe* porta informazioni sullo stato del sistema, quindi, ripetendo la misura per diversi valori del ritardo tra i due impulsi, è possibile ricostruire la dinamica dell'interazione tra la pompa e il sistema indagato. Il ritardo viene spesso variato allungando o accorciando il cammino ottico di uno dei due impulsi, per esempio tramite l'inserimento di una *delay-line* controllabile con precisione micrometrica: un allungamento del percorso ottico di 1 µm, infatti, corrisponde a un ritardo temporale di circa 3 fs.

Il grande numero di dinamiche indagabili con esperimenti di *pump-probe* e gli enormi progressi della tecnica si traducono in un ampio ventaglio di possibilità per la scelta degli impulsi di pompa e di sonda. Un possibile approccio consiste nell'avere fotoni di *pump* con contenuto energetico paragonabile a quello dei parametri fisici che regolano le proprietà del sistema. Lo scopo di questo lavoro di tesi, svolto all'interno del gruppo T-ReX presso i laboratori laser di Elettra Sincrotrone Trieste S.C.p.A., è quello di realizzare e caratterizzare un amplificatore ottico parametrico (OPA) in grado di produrre impulsi ultracorti di luce infrarossa regolabili in lunghezza d'onda in un intervallo tra circa 1.1 µm e 1.5 µm (fotoni di energia tra 0.8 eV e 1.1 eV). Questo progetto si inserisce nell'ambito più ampio dello studio delle dinamiche associate alla *gap* superconduttiva nei cuprati. L'obiettivo finale è infatti di realizzare due OPA gemelli, con *seed* a banda larga e condiviso, disegnati per ottenere impulsi infrarossi ( $\approx 20 \ \mu$ m) stabili in fase. L'energia dei fotoni contenuti negli impulsi generati tramite DFG (*difference frequency generation*) è infatti dell'ordine di

 $\approx 100$  meV, paragonabile all'energia della gapnei sistemi superconduttivi ad alta temperatura critica [1].

# Indice

In	trod	uzione	i					
1	Elei	menti teorici	1					
	1.1	Prinicipi di ottica non lineare	1					
	1.2	Interazione a tre onde	2					
	1.3	Amplificazione ottica parametrica	3					
	1.4	Phase matching	4					
		1.4.1 Birifrangenza	5					
	1.5	Amplificazione di impulsi di luce ultracorti	6					
	1.6	Generazione di supercontinuo	8					
		1.6.1 Effetto Kerr ottico	8					
		$1.6.2$ Self-focusing $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	8					
		1.6.3 Self-phase modulation	9					
<b>2</b>	Stato dell'arte 10							
	2.1	Caratteristiche generali degli OPA	10					
		2.1.1 Seeding	10					
		2.1.2 Amplificazione	12					
	2.2	OPA nel vicino infrarosso	13					
	2.3	OPA non collineari	14					
3	Set-up sperimentale 16							
	3.1	Il sistema laser	16					
	3.2	Realizzazione dell'OPA	18					
		3.2.1 Seed	19					
		3.2.2 Primo stage	19					
		3.2.3 Secondo stage	20					
	3.3	Caratterizzazione dell'OPA	20					
		3.3.1 Seed	20					
		3.3.2 Primo stage	21					
		3.3.3 Secondo <i>stage</i>	24					
		3.3.4 Discussione	27					
4	Cor	nclusioni	28					

Bibliografia

### Capitolo 1

### Elementi teorici

#### 1.1 Prinicipi di ottica non lineare

Finché consideriamo campi elettrici di bassa intensità, la relazione che lega la polarizzazione  $\mathbf{P}$  di un materiale al campo elettrico applicato  $\mathbf{E}$  è lineare:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E},\tag{1.1}$$

dove  $\chi^{(1)}$  è la suscettività elettrica del mezzo. Tuttavia quando l'intensità del campo considerato cresce, è necessario includere anche termini di ordine superiore:

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots$$
(1.2)

Ci si può aspettare che gli effetti non lineari siano importanti quando il campo elettrico applicato al materiale ha intensità paragonabile al campo atomico caratteristico  $E_{at} = e/(4\pi\epsilon_0 a_0^2)$ , dove e è la carica dell'elettrone, m la massa dell'elettrone e  $a_0 = 4\pi\hbar^2/(me^2)$  è il raggio di Bohr dell'atomo di idrogeno. Fenomeni non lineari si osservano pertanto quando il materiale è sottoposto a campi elettrici dell'ordine di  $10^{11}$  V/m.

In base all'equazione (1.2) è possibile in generale scomporre la polarizzazione in un termine lineare e in uno non lineare:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL}. \tag{1.3}$$

Inserendo questa espressione per  $\mathbf{P}$  in quella per il campo di spostamento elettrico  $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$  e manipolando le equazioni di Maxwell per un materiale non magnetico, otteniamo [2]

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}, \qquad (1.4)$$

che ha la forma di un'equazione d'onda stimolata, in cui la sorgente è data dalla derivata seconda del termine non lineare di polarizzazione. Pertanto la

presenza di non-linearità nella risposta del materiale al campo applicato implica la generazione di ulteriori campi elettrici.

Prendiamo per esempio il caso di un materiale su cui incidono due campi rappresentati da onde piane che si propagano lungo l'asse z:

$$\begin{split} \tilde{E_1}(z,t) &= E_1 e^{-i\omega_1 t} + c.c. = A_1 e^{i(k_1 z - \omega_1 t)} + c.c. \\ \tilde{E_2}(z,t) &= E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c. = A_2 e^{i(k_2 z - \omega_2 t)} + c.c. \end{split}$$

La polarizzazione risultante al secondo ordine nel campo elettrico è

$$\tilde{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} (\tilde{E}_1 + \tilde{E}_2)^2 
= \epsilon_0 \chi^{(2)} (E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.)^2 
= \epsilon_0 \chi^{(2)} (E_1^2 e^{-i2\omega_1 t} + E_2^2 e^{-i2\omega_2 t} + E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 - \omega_2) t} + c.c.) + 
E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2) t} + E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2) t} + c.c.) + 
2\epsilon_0 \chi^{(2)} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*).$$
(1.5)

Un materiale con una suscettività elettrica del secondo ordine  $\chi^{(2)}$  non nulla risponde pertanto a due campi elettrici oscillanti di frequenza  $\omega_1 \in \omega_2$  con la generazione di altri campi a frequenze  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$  (detta generazione di seconda armonica o SHG),  $\omega_1 + \omega_2$  (detta generazione della frequenza somma o SFG),  $\omega_1 - \omega_2$  (detta generazione della frequenza differenza o DFG) e con un campo statico di intensità proporzionale a  $E_1E_1^* + E_2E_2^*$  (detta rettificazione ottica o OR).

#### 1.2 Interazione a tre onde

Poiché l'equazione (1.4) ammette soluzioni nella forma di onde piane per  $P_{NL} \rightarrow 0$ , è ragionevole supporre che se il termine non lineare è piccolo rispetto a quello lineare le soluzioni non siano troppo diverse da onde piane. Cerchiamo quindi soluzioni oscillanti con ampiezza variabile lungo z:

$$\tilde{E}_3(z,t) = E_3 e^{-i\omega_3 t} + c.c. = A_3(z) e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} + c.c.$$
(1.6)

Concentriamoci sull'interazione di tre onde a frequenza  $\omega_1$ ,  $\omega_2 \in \omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ che si propagano lungo z. Inserendo in (1.4) il termine a frequenza  $\omega_1 + \omega_2$  che compare nella (1.5) e proiettando lungo x, otteniamo

$$\frac{dA_3}{dz} = \frac{i\omega_3}{cn_3} \chi^{(2)} e^{-i\Delta kz} A_1 A_2, \qquad (1.7)$$

dove è stato introdotto il wavevector mismatch  $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$ , e dove è stata fatta l'approssimazione

$$\left|\frac{d^2A_3}{dz^2}\right| \ll \left|k_3\frac{dA_3}{dz}\right|,\tag{1.8}$$

verificata nel caso in cui le variazioni dell'inviluppo lungo l'asse di propagazione siano molto più lente delle variazioni dovute all'andamento oscillatorio introdotto dal termine  $e^{ik_3z}$ .

Finora abbiamo considerato solamente l'interazione non lineare a frequenza  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  tra i campi  $\tilde{E}_1, \tilde{E}_2$ . Allo stesso modo possiamo andare a considerare l'interazione a frequenza  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$  tra i campi  $\tilde{E}_1, \tilde{E}_3$  e quella a frequenza  $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$  tra  $\tilde{E}_2, \tilde{E}_3$ . Otteniamo le seguenti equazioni

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{i\omega_1}{cn_1} \chi^{(2)} e^{i\Delta kz} A_3 A_2^*$$
(1.9a)

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega_2}{cn_2} \chi^{(2)} e^{i\Delta kz} A_3 A_1^*.$$
 (1.9b)

Le equazioni (1.7), (1.9a) e (1.9b), a seconda delle approssimazioni e delle condizioni iniziali sotto cui vengono risolte, descrivono una grande varietà di fenomeni non lineari del secondo ordine, quali la generazione di seconda armonica (SHG), generazione della frequenza somma (SFG) e differenza (DFG), e il loro evolvere lungo la direzione di propagazione z. Processi di interazione tra onde elettromagnetiche generate in un mezzo non lineare come quelli descritti fin'ora sono anche noti come processi parametrici [2].

#### 1.3 Amplificazione ottica parametrica

Vediamo ora nel dettaglio come sia possibile descrivere un processo di amplificazione di un campo tramite le equazioni accoppiate per le ampiezze ricavate nella sezione precedente. Consideriamo l'interazione di tre onde elettromagnetiche collineari di frequenza  $\omega_s$ ,  $\omega_i \in \omega_p = \omega_s + \omega_i$  all'interno di un cristallo non lineare del secondo ordine, ovvero con  $\chi^{(2)} \neq 0$ . La variazione di ampiezza lungo l'asse z è descritta dalle equazioni (1.7), (1.9a) e (1.9b). Supponiamo che inizialmente non sia presente il campo a frequenza  $\omega_i$  ( $A_i(0) = 0$ ) e che l'ampiezza del campo a frequenza  $\omega_p$  vari molto lentamente lungo z ( $A_p \approx \text{const}$ ). Assumiamo inoltre  $\Delta k = 0$ , riservandoci di discutere in seguito il significato di questa richiesta (vedi sezione 1.4). Sotto queste ipotesi le equazioni (1.9a) e (1.9b) sono di facile soluzione; le ampiezze  $A_s$  e  $A_i$  che ne risultano sono date da

$$A_s(z) = A_s(0) \cosh \kappa z \tag{1.10a}$$

$$A_i(z) = i \left(\frac{n_s \omega_i}{n_i \omega_s}\right)^{1/2} \frac{A_p}{|A_p|} A_s^*(0) \sinh \kappa z, \qquad (1.10b)$$

in cui è stata introdotta la costante real<br/>e $\kappa$  definita come

$$\kappa^{2} = \frac{\omega_{i}\omega_{s}\chi^{(2)^{2}}|A_{p}|^{2}}{n_{i}n_{s}c^{2}}.$$
(1.11)

Le equazioni (1.10a) e (1.10b) mostrano come i campi a frequenza  $\omega_s \in \omega_i$ vengano amplificati dall'interazione con il campo a frequenza  $\omega_p$  durante l'attraversamento del mezzo non lineare. Nel limite di grandi lunghezze del cristallo, data la forma funzionale di  $A_s \in A_i$ , l'amplificazione risulta esponenziale. Il campo intenso a frequenza  $\omega_p$  che fornisce l'energia necessaria all'amplificazione viene detto di pompa o di pump<sup>1</sup>, quello da amplificare a frequenza  $\omega_s$  di segnale o di *signal* mentre il campo generato dall'interazione parametrica a frequenza  $\omega_i$  prende il nome di *idler*. Un'interazione di questo tipo fra le





Figura 1.1: Evoluzione spaziale di signal  $(A_1)$ e *idler*  $(A_2)$  per  $\Delta k = 0$ , nell'approssimazione di pompa costante [2].

Figura 1.2: Diagramma a livelli per DFG [2].

tre onde elettromagnetiche è nota come amplificazione ottica parametrica e gli strumenti che la realizzano sperimentalmente prendono il nome di amplificatori ottici parametrici (OPA).

Al processo di interazione parametrica può essere data anche un'intuitiva interpretazione in termini di fotoni. Sappiamo che l'energia associata a un fotone di frequenza  $\omega \doteq \hbar \omega$ . La relazione tra le frequenze delle tre onde interagenti deve soddisfare la conservazione dell'energia

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i. \tag{1.12}$$

Se  $\omega_p$  è molto intenso e  $\omega_s$  poco intenso, l'equazione (1.12) richiede che per ogni fotone creato alla frequenza differenza  $\omega_i$  ne venga distrutto uno di frequenza  $\omega_p$  e creato uno di frequenza  $\omega_s$ . Il risultato netto è che il campo  $\omega_s$  viene amplificato dalla presenza della frequenza differenza  $\omega_i$  mentre il campo  $\omega_p$ perde energia.

#### 1.4 Phase matching

Torniamo ora sulla condizione  $\Delta k = 0$  posta in precedenza per ottenere le equazioni (1.10a) e (1.10b). Essendo il momento di un fotone con numero d'onda k dato da  $\hbar k$ , la conservazione del momento per i tre fotoni di *pump*, *signal* e *idler* lungo l'asse di propagazione è data da

$$\hbar k_p = \hbar k_s + \hbar k_i. \tag{1.13}$$

Questa evidentemente coincide con la richiesta che  $\Delta k = k_p - k_s - k_i = 0$ . Più in generale la (1.13) può essere scritta come

$$\hbar \mathbf{k}_p = \hbar \mathbf{k}_s + \hbar \mathbf{k}_i \tag{1.14}$$

 $<sup>^1\</sup>mathrm{Da}$  non confondere con il termine pumputilizzato in precedenza nell'espressione pumpprobe.

nel caso di fotoni non collineari. La (1.14) prende il nome di condizione di *phase* matching. Da un punto di vista ondulatorio essa corrisponde alla richiesta che pump, signal e *idler* mantengano una relazione di fase costante tra loro durante l'attraversamento del cristallo.

Per capire la rilevanza della richiesta di *phase matching* nel processo di amplificazione parametrica, consideriamo le soluzioni delle equazioni (1.7), (1.9a) e (1.9b) per un  $\Delta k$  generico, nelle stesse condizioni iniziali. Trascurando l'attenuazione della pompa ( $A_p \approx \text{const}$ ) otteniamo

$$A_s(z) = A_1(0) \left(\cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gz\right) e^{i\Delta kz/2}$$
(1.15a)

$$A_{i}(z) = \frac{A_{s}^{*}(0)}{g} \frac{i\omega_{i}\chi^{(2)}A_{p}}{cn_{i}} \sinh gz \ e^{i\Delta kz/2}$$
(1.15b)

dove,

$$g = \left[\kappa^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2\right]^{1/2},\qquad(1.16)$$

con il  $\kappa$  definito nella (1.11). La scala spaziale caratteristica su cui avviene l'amplificazione è 1/g, parametro che risulta minimo quando  $\Delta k = 0$ . Pertanto se la condizione di *phase matching* è soddisfatta, l'efficienza del processo di interazione parametrica è massima.

Occupiamoci ora di come il *phase matching* può essere ottenuto sperimentalmente. La relazione (1.13) può essere espressa come

$$n_p = \frac{n_i \omega_i + n_s \omega_s}{\omega_p},\tag{1.17}$$

dove  $n_j$  è l'indice di rifrazione del mezzo non lineare a frequenza  $\omega_j$ . Risulta facile vedere come questa condizione non possa essere soddisfatta in un materiale isotropo nella regione di dispersione normale  $(n_i < n_s < n_p \text{ per } \omega_i < \omega_s < \omega_p)$ . In generale questo è il motivo per cui non si osservano comunemente in natura fenomeni ottici non lineari, anche quando i campi elettrici sono di intensità sufficientemente alta. È necessario pertanto disegnare configurazioni appropriate per realizzare il *phase matching*. Nelle configurazioni più comuni la (1.17) può essere verificata sfruttando la birifrangenza di alcuni cristalli non lineari (*angular phase matching*). La dipendenza dell'indice di rifrazione dalla polarizzazione permette infatti di compensare gli effetti dispersivi.

#### 1.4.1 Birifrangenza

Un cristallo birifrangente uniassiale è caratterizzato da una particolare direzione nota come asse ottico **c**. L'indice di rifrazione per un'onda elettromagnetica polarizzata perpendicolarmente al piano contenente il vettore d'onda **k** e **c** viene indicato con  $n_o$  (detto indice di rifrazione ordinario); l'indice di rifrazione per un raggio di luce con polarizzazione contenuta nel piano individuato da **k** e **c** viene invece indicato con  $n_e(\theta)$  (detto indice di rifrazione straordinario). Quest'ultimo mostra una dipendenza dall'angolo  $\theta$  tra direzione di propagazione e asse ottico secondo la relazione

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_0^2},\tag{1.18}$$

dove  $n_e$  è il valore che assume l'indice di rifrazione straordinario per  $\theta = 90^{\circ}$ . È possibile dunque ottenere condizioni di *phase matching* sfruttando la birifrangenza, ad esempio se l'onda a frequenza maggiore  $\omega_p$  è polarizzata lungo la direzione che ha l'indice di rifrazione minore. Nel caso di un cristallo uniassiale negativo ( $n_e < n_o$ ) questa scelta corrisponde all'asse straordinario.

Fissata la polarizzazione della pompa, abbiamo due possibilità per la polarizzazione di *signal* e *idler*, che possono avere entrambi polarizzazione straordinaria o avere uno polarizzazione straordinaria e l'altro ordinaria. A seconda del caso si parla rispettivamente di *phase matching* di tipo I  $(e_p \rightarrow o_s + o_i)$  o di tipo II  $(e_p \rightarrow o_s + e_i \text{ oppure } e_p \rightarrow e_s + o_i)$ .

Concludiamo notando che la possibilità di soddisfare la condizione di *phase* matching non è assicurata dall'utilizzo di un cristallo birifrangente. Date le tre frequenze  $\omega_p$ ,  $\omega_s \omega_i$ , nota la relazione di dispersione  $n(\omega)$  del materiale e scelto il tipo di *phase matching*, non è detto che il sistema dato dalla (1.17) e dalla (1.18) sia risolvibile per uno  $\theta$  reale. Esistono infatti cristalli in cui la dispersione è troppo forte o la birifrangenza è troppo piccola per poter raggiungere il *phase* matching.

#### 1.5 Amplificazione di impulsi di luce ultracorti

Fin'ora abbiamo studiato l'interazione di tre onde monocromatiche continue. Spostiamo ora la nostra attenzione al caso in cui nel mezzo non lineare si propaghino tre impulsi di luce provenienti da un laser impulsato. In molti esperimenti di ottica non lineare questo è il caso tipico: è difficile, infatti, osservare fenomeni non lineari con laser funzionanti in onda continua (CW) a causa delle alte intensità del campo richieste, dell'ordine di 10<sup>11</sup> V/m.

In primo luogo notiamo che è necessaria la sovrapposizione spaziale e temporale degli impulsi di *pump*, *signal* e *idler* ai fini del processo di amplificazione: la condizione che sta alla base della possibilità che i tre modi del campo elettromagnetico possano scambiarsi fotoni è che siano tutti presenti in una regione dello spazio-tempo. I cristalli non lineari impiegati in processi di amplificazione parametrica, tuttavia, sono mezzi dispersivi, ciascuno dei tre impulsi quindi si propaga con una propria velocità di gruppo  $v_g = \frac{d\omega}{dk}$ . Pertanto se gli impulsi sono inizialmente sovrapposti, essi tendono a separarsi durante la propagazione interrompendo l'amplificazione.

Possiamo quantificare questo effetto introducendo il group velocity mismatch (GVM) tra signal e pump o tra idler e pump come  $\delta_{jp} = 1/v_{gj} - 1/v_{gp}$  con j = s, i. Se stiamo considerando impulsi con la stessa durata temporale  $\tau$ , possiamo definire la pulse splitting length (PSL) come la lunghezza dopo la quale l'impulso j ha perso totalmente la sovrapposizione con l'impulso di pompa:

$$\ell_{jp} = \frac{\tau}{\delta_{jp}}, \qquad j = s, i. \tag{1.19}$$

La lunghezza utile per l'interazione parametrica diminuisce al diminuire della durata dell'impulso e all'aumentare del GVM.

Se il cristallo è più corto della PSL, che tipicamente è dell'ordine di qualche millimetro, gli effetti dispersivi possono essere trascurati in prima approssimazione, ma nel caso di cristalli più lunghi il GVM gioca un ruolo cruciale.



(a) Phase matching di tipo I, con  $\lambda_p = 0.4$ µm e  $\lambda_s = 0.7$  µm.

(b) Phase matching di tipo II, con  $\lambda_p = 0.8 \ \mu\text{m} \ \text{e} \ \lambda_s = 1.5 \ \mu\text{m}.$ 

Figura 1.3: Evoluzione dell'impulso di *signal* per diverse lunghezze L del BBO, con intensità di pompa di 20 GW/cm<sup>2</sup>. I tempi sono normalizzati alla durata dell'impulso di pompa  $\tau_p$  e le lunghezze alla PSL  $\ell_{sp}$  [3].

Qualitativamente diversi, inoltre, sono i casi in cui  $\delta_{sp}$  e  $\delta_{ip}$  hanno lo stesso segno o no. Se  $\delta_{sp}\delta_{ip} > 0$ , sia signal che idler si allontanano dall'impulso di pompa; ciò porta a una rapida saturazione del guadagno del processo di amplificazione in funzione della lunghezza del cristallo (figura 1.3(a)). Se, invece,  $\delta_{sp}\delta_{ip} < 0$ , signal e idler si muovono in direzione opposta rispetto all'impulso di pompa, i due impulsi a frequenza minore tendono a rimanere localizzati sotto l'impulso di pompa, rendendo possibile l'aumento esponenziale del guadagno anche per cristalli più lunghi della PSL (figura 1.3(b)). Per spiegare questo effetto, immaginiamo che l'impulso di signal si sia spostato leggermente "avanti" rispetto alla pompa; l'interazione parametrica porta alla generazione di fotoni *idler*, che si muovono in direzione opposta, verso il picco della pompa, portando alla generazione di altri fotoni signal. D'altro canto anche l'impulso di idler, spostato leggermente "indietro" rispetto alla pompa, genera dei fotoni signal, che a loro volta si muovono in avanti verso il picco della pompa. Questa alta concentrazione di fotoni sotto il picco della pompa spiega la crescita esponenziale.

#### **1.6** Generazione di supercontinuo

Un altro fenomeno non lineare fondamentale e largamente utilizzato durante questo lavoro di tesi è il considerevole allargamento spettrale a cui è sottoposto un impulso laser molto intenso, noto come generazione di supercontinuo o generazione di luce bianca.

#### 1.6.1 Effetto Kerr ottico

Una suscettività elettrica del terzo ordine  $\chi^{(3)}$  non nulla implica la dipendenza dell'indice di rifrazione dall'intensità. Consideriamo il contributo di terzo ordine alla polarizzazione del materiale

$$\tilde{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} (Ee^{-i\omega t} + c.c.)^3$$
  
=  $\epsilon_0 \chi^{(3)} (E^3 e^{-i3\omega t} + 3E|E|^2 e^{-i\omega t} + c.c.),$  (1.20)

e concentriamoci sul termine alla stessa frequenza del campo incidente  $\omega$ , di ampiezza  $3\epsilon_0\chi^{(3)}E|E|^2$ . Definendo una suscettività efficace  $\chi_{eff}$  per il campo a frequenza  $\omega$  come

$$\chi_{eff} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|E|^2, \qquad (1.21)$$

possiamo scrivere l'indice di rifrazione

$$n = \sqrt{1 + \chi_{eff}}.$$
(1.22)

Se sviluppiamo questa espressione fermandoci al termine di primo ordine in  $|E|^2$ e ricordiamo che l'intensità I di un campo è proporzionale al modulo quadro della sua ampiezza, possiamo introdurre una costante  $n_2$  in modo che

$$n(I) = n_0 + n_2 I, \tag{1.23}$$

dove  $n_0$  è l'indice di rifrazione dovuto solamente a effetti di polarizzazione del primo ordine. Questa dipendenza dell'indice di rifrazione dall'intensità va sotto il nome di effetto Kerr ottico. L'effetto Kerr permette di spiegare due fenomeni che stanno alla base della generazione di supercontinuo: l'autofocalizzazione (self-focusing o SF) e l'automodulazione di fase (self-phase modulation o SPM).

#### 1.6.2 Self-focusing

Il SF ha luogo quando un fascio laser con un profilo trasverso di intensità non uniforme attraversa un materiale con  $n_2 > 0$ . Se l'intensità trasversa del fascio è maggiore sull'asse e diminuisce allontanandosi da esso, la radiazione che si propaga lontano dall'asse incontra un indice di rifrazione minore e curva verso il centro del fascio. Il mezzo non lineare agisce pertanto come una lente convergente, focalizzando fasci con profili trasversi di intensità non uniforme ed aumentando la densità di energia all'interno del mezzo stesso. Questo processo ha luogo finché l'eccessiva focalizzazione non porta al danneggiamento del materiale.

#### 1.6.3 Self-phase modulation

La SPM si osserva quando un impulso las<br/>er molto intenso attraversa un mezzo con  $n_2 \neq 0$ . Assumendo che il mezzo risponda istanta<br/>neamente agli stimoli, in un certo punto l'indice di rifrazione è

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t). (1.24)$$

Se la fase del campo nel punto  $L \ge \phi(t) = \omega_0 t - kL$ , per  $n_2 \neq 0$  otteniamo lo shift di fase

$$\Delta\phi(t) = -\frac{n_2 L}{c} I(t), \qquad (1.25)$$

per cui la frequenza istantanea è

$$\omega(t) = \frac{d\phi(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{n_2 L}{c} \frac{dI(t)}{dt} = \omega_0 + \delta\omega(t).$$
(1.26)

La conseguenza immediata della SPM è l'introduzione di componenti spettrali aggiuntive, rappresentate dal termine  $\delta \omega$  presente nell'equazione (1.26). Otteniamo un considerevole allargamento spettrale, detto generazione di supercontinuo, quando  $\delta \omega_{max}$  è significativamente maggiore della larghezza spettrale dell'impulso. Per un impulso *Fourier-limited* con profilo temporale gaussiano di durata  $\tau_0$  questa è  $1/\tau_0$ , quindi la condizione per osservare generazione di luce bianca è

$$\delta\omega_{max}\tau_0 \gg 1. \tag{1.27}$$

Concludiamo osservando un'altra importante caratteristica di un impulso che ha subìto un processo di SPM. Dalla (1.26) vediamo che la frequenza di un impulso è funzione del tempo. Nel caso in cui  $n_2 > 0$ , le frequenze che arrivano per prime in un certo punto sono quelle minori della fondamentale  $\omega_0$  (finché l'intensità cresce, dI/dt > 0), mentre quelle maggiori arrivano in un secondo momento (quando l'intensità comincia a decrescere, dI/dt < 0). Le frequenze "rosse", pertanto, occupano temporalmente la parte iniziale dell'impulso di luce bianca, quelle "blu" ne occupano la coda. Questa dispersione delle componenti spettrali prende il nome di *chirp* temporale.



Figura 1.4: Self-phase modulation [2].

### Capitolo 2

## Stato dell'arte

#### 2.1 Caratteristiche generali degli OPA

Quello dell'ottica ultraveloce è un settore di ricerca interdisciplinare, data la vastità delle ricadute applicative in altri campi [4]. Nonostante questa trasversalità si traduca in una moltitudine di design e di implementazioni, possiamo isolare uno schema generale comune a tutti gli OPA.

Abbiamo visto che i processi non lineari richiedono grandi ampiezze di campo, dell'ordine di  $10^{11}$  V/m (vedi sezione 1.1), corrispondenti a intensità dell'ordine di  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Vedremo in seguito (sezione 3.1) come l'utilizzo di laser impulsati permetta di raggiungere intensità di picco significativamente maggiori di quelle tipiche per laser operanti in onda continua, specialmente se la larghezza di banda di guadagno (o *qain-bandwidth*) è grande ( $\approx 10^{14}$  Hz). Sistemi operanti ne vicino infrarosso che soddisfano queste caratteristiche sono laser amplificati che sfruttano un cristallo di Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> come mezzo attivo [5] (vedi anche capitolo 3). Sistemi commerciali tipicamente impiegati per alimentare OPA lavorano a una repetition rate di 1 kHz e generano impulsi a una lunghezza d'onda  $\lambda \approx 800$  nm, con energia da 0.5 mJ a 1 mJ e durata di circa 100 fs. Altri sistemi lavorano a una repetition rate molto maggiore (fino a 250 kHz) ma con un'energia per impulso molto più bassa (dai 5 µJ ai 10 µJ). Inoltre il "pompaggio" può avvenire alla frequenza fondamentale o alla seconda armonica (400 nm). In figura 2.1 è riportato uno schema generico che costituisce lo scheletro di molti OPA. Nel seguito passiamo in rassegna le sue varie componenti.

#### 2.1.1 Seeding

Il primo passo nella costruzione di un sistema OPA è la generazione del segnale da amplificare, detto *seed*. Dato che il *seed* è a una frequenza diversa dalla pompa, è necessario produrlo attraverso un processo parametrico. OPA con *seeding* a luce bianca sono i più comuni, in quanto impulsi supercontinui sono di facile produzione ed assicurano la tunabilità dell'output su un range di frequenze esteso (figura 2.2(a)).



Figura 2.1: Schema di un OPA ultraveloce. SEED: *stage* di generazione del *seed*; SHG: *stage* di generazione di seconda armonica; OPA1, OPA2: *stage* di amplificazione parametrica; DL1, DL2: *delay-line*; COMP: compressore [3].



Figura 2.2: Caratterizzazione spettrale e dinamica di un impulso supercontinuo generato da un impulso con  $\lambda \approx 800$  nm su zaffiro e assorbimento a due fotoni su ZnSe [6].

La generazione di luce bianca avviene grazie a una combinazione dei fenomeni di autofocalizzazione e automodulazione di fase dell'impulso laser ultra-corto (vedi sezione 1.6), ma tali processi possono essere realizzati in una grande varietà di mezzi non lineari, a seconda delle cartteristiche del supercontinuo che si vuole ottenere. I materiali comunemente usati sono monocristalli di zaffiro (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) e fluorite (CaF<sub>2</sub>), che generano spettri che coprono tutta la regione visibile e si estendono fino a lunghezze d'onda di 1.6  $\mu$ m. La generazione di luce bianca supercontinua in tali cristalli richiede impulsi di pompa in ingresso con energie dell'ordine dei microjoule. Recenti studi [7] propongono nuovi materiali quali granato di ittrio e alluminio (YAG), ortovanadiato di ittrio (YVO<sub>4</sub>), ortovanadiato di gadolinio (GdVO<sub>4</sub>), tungstato di potassio e gadolinio (KGW). Cristalli di questo tipo spessi qualche millimetro generano luce supercontinua con spettro esteso e regolare, alta coerenza spaziale e temporale e alta stabilità, rendendoli indicati per applicazioni di spettroscopia e tecnologia laser, in particolare nella regione del vicino infrarosso. Le energie di pompa richieste sono inoltre significativamente inferiori rispetto a quelle impiegate per materiali tradizionali.

#### 2.1.2 Amplificazione

Dopo la generazione del *seed*, questo deve essere combinato con la pompa all'interno di un mezzo con suscettività elettrica del secondo ordine non nulla. I cammini ottici di *seed* e pompa, pertanto, devono essere bilanciati in maniera tale che i due impulsi si trovino in coincidenza temporale nel mezzo non lineare. Per ottenere la massima efficienza la focalizzazione dei due fasci dovrà essere tale che essi abbiano le stesse dimensioni trasversali, cosicché la sovrapposizione spaziale sia massima. La selezione in frequenza è effettuata sfruttando il *chirp* dell'impulso di luce bianca. Dalla figura 2.2(b) si vede che le componenti spettrali di un impulso supercontinuo sono distribuite su un un intervallo temporale di alcuni picosecondi <sup>1</sup>; ciò significa che, variando il ritardo dell'impulso di pompa lungo 50-100 fs, è possibile amplificare selettivamente solo la parte di spettro del *seed* che si trova in coincidenza temporale con il *pump*. In figura 2.3 è possibile vedere alcuni spettri ottenuti per diversi valori del ritardo tra pompa e supercontinuo.



Figura 2.3: Spettri di *idler* provenienti da un OPA a due *stage*, ottenuti per amplificazione di luce supercontinua generata da un impulsi di 3  $\mu$ J su un cristallo di zaffiro. L'amplificazione avviene in un cristallo di LiIO<sub>3</sub> [8].

L'amplificazione avviene solitamente in due stadi distinti: uno di preamplificazione, che ha lo scopo principale di generare un segnale "pulito" in frequenza, ed uno di amplificazione di potenza. Il vantaggio di impiegare uno schema di amplificazione a due *stage* è duplice: da un lato è possibile compensare il GVM

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Riguardo alla figura 2.2(b), il *chirp* temporale introdotto dalla SPM interessa solo la regione nei pressi degli 800 nm; la coda che si estende per diversi picosecondi è dovuta all'aumento dell'indice di rifrazione del ZnSe per lunghezze d'onda che si avvicinano ai 500 nm [6]. Tipicamente le componenti spettrali di un impulso "chirpato" temporalmente a causa della SPM si estendono su intervalli che non superano il picosecondo.

tra gli impulsi di *pump* e di *signal* accumulati nel primo cristallo con una *delayline*, dall'altro è possibile ottimizzare separatamente i due *stage*. I mezzi non lineari impiegati dipendono dal range spettrale di funzionamento dell'OPA. Per OPA con output nel vicino infrarosso o nel visibile, cristalli di  $\beta$ -borato di bario (BBO) lunghi qualche millimetro rappresentano lo standard. Oltre ad essere trasparenti in questo range di frequenze, essi sono anche birifrangenti, quindi permettono di ottenere il *phase matching* semplicemente cambiando l'angolo di incidenza di *signal* e *pump* sul cristallo. Nel caso di OPA funzionanti nella regione intermedia dell'infrarosso (da 3 µm a 8 µm) vengono utilizzati cristalli di KTiOPO<sub>4</sub> (KTP) o isomorfi. In figura 2.4 sono riportate curve di GVM per vari cristalli trasparenti nel mid-IR, tipicamente impiegati in sistemi OPA.



Figura 2.4: Curve di GVM per diversi cristalli non lineari trasparenti nel mid-IR, per *phase matching* di tipo I [8].

#### 2.2 OPA nel vicino infrarosso

Gli OPA con output nel vicino infrarosso (near infrared o NIR), alimentati dalla fondamentale di un laser Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $\lambda = 800 \pm 40$  nm), sono i più comuni e facili da realizzare, tant'è vero che costituiscono la base per molti sistemi di amplificazione parametrica in altre regioni spettrali [3]. Gli OPA nel NIR hanno il vantaggio di poter disporre di alte energie in ingresso (fino all'ordine del millijoule) e di presentare bassi valori di GVM, fatto che permette di utilizzare cristalli lunghi e ottenere così un guadagno elevato. La tunabilità è limitata dalle perdite dovute all'assorbimento delle lunghezze d'onda maggiori di 3 µm da parte del BBO. Pertanto l'*idler* può assumere lunghezze d'onda tra 1.6 µm e 3 µm; corrispondentemente il *signal* è regolabile tra 1.1 µm e 1.6 µm, lasciando scoperta la regione tra 0.8 µm e 1.1 µm.

La maggior parte dei sistemi descritti in letteratura utilizza cristalli di BBO per la loro alto coefficiente non lineare  $\chi^{(2)}$  e per le loro proprietà dispersive, ma altre scelte sono possibili (figura 2.4).

Come si può vedere in figura 2.5, per *phase matching* di tipo I, il GVM tra pompa e *idler* e tra pompa e *signal* presenta valori minori in valore assolu-



Figura 2.5: GVM pump-signal  $(\delta_{sp})$  e pump-idler  $(\delta_{ip})$  per un OPA basato su BBO, con lunghezza d'onda di pompa di 0.8 µm, per phase matching di tipo I (linea continua) e tipo II  $o_s + e_i \rightarrow e_p$  (linea tratteggiata) [3].

to rispetto ai GVM per phase matching di tipo II:  $\delta_{sp} \in \delta_{ip}$  si stabilizzano su un valore di circa -25 fs/mm per lunghezze d'onda appartenenti alla regione di tunabilità dell'OPA; se consideriamo impulsi della durata di 100 fs, in base all'equazione (1.19), ciò corrisponde a PSL dell'ordine dei 5 mm. Il phase matching di tipo II, invece, pur presentando valori di GVM maggiori, e quindi minori PSL, realizza su gran parte della regione di tunabilità la condizione  $\delta_{ip}\delta_{sp} < 0$ che, come discusso in sezione 1.5, assicura una crescita del guadagno esponenziale con la lunghezza del cristallo anche per spessori maggiori della PSL, come mostrato in figura 1.3(b). Il vantaggio di utilizzare phase matching di tipo II risiede anche nella possibilità di separare signal e idler sfruttando la loro diversa polarizzazione. Questo fatto risulta particolarmente importante quando l'OPA opera vicino a degenerazione ( $\omega_s \approx \omega_i$ ) e quindi non è possibile separare i due impulsi sfruttando effetti dispersivi.

#### 2.3 OPA non collineari

Fin'ora abbiamo implicitamente assunto che le direzioni di propagazione di signal, pump e idler coincidessero. Questa scelta, tuttavia, non è l'unica possibile: spesso si preferisce costruire OPA non collineari (NOPA), in cui pump e signal vengono fatti incidere sul cristallo non lineare a un angolo  $\alpha \neq 0$ , con idler generato a un angolo  $\Omega$ , dipendente dalla frequenza, rispetto al segnale (figura 2.6). In questo caso la condizione (1.14), proiettata su direzioni parallela e perpendicolare all'asse di propagazione del segnale, diventa

$$\Delta k_{\parallel} = k_p \cos \alpha - k_s - k_i \cos \Omega \tag{2.1a}$$

$$\Delta k_{\perp} = k_p \sin \alpha - k_i \sin \Omega. \tag{2.1b}$$

Non è difficile dimostrare che se tale condizione è soddisfatta per una particolare frequenza di signal  $\omega_s$  allora è soddisfatta anche a una frequenza prossima  $\omega_s +$ 



Figura 2.6: (a) Geometria di interazione non collineare; (b) rappresentazione degli impulsi di *signal* e *idler* nel caso di interazione collineare e (c) non collineare [3].

 $\Delta\omega$ , a patto che

$$v_{qs} = v_{qi} \cos \Omega. \tag{2.2}$$

L'equazione (2.2) mostra che il phase matching può essere esteso anche a frequenze prossime a quella centrale dell'impulso di signal se l'angolo  $\Omega$  tra  $\mathbf{k}_s$ e  $\mathbf{k}_i$  è scelto in maniera che la velocità di gruppo del segnale sia uguale alla proiezione della velocità di gruppo dell'*idler* lungo la direzione di propagazione del signal. L'effetto è mostrato schematicamente in figura 2.6(c): la condizione (2.2) fa sì che gli impulsi restino effettivamente sovrapposti.

In sintesi, il principale vantaggio di una geometria non collineare risiede nell'introduzione di un grado di libertà in più, l'angolo  $\alpha$ , attraverso cui raggiungere il phase matching su una banda continua di frequenze (broadband phase matching). Inoltre un NOPA realizza automaticamente la separazione spaziale dei tre impulsi che interagiscono all'interno del cristallo, facilitando la procedura di allineamento.

### Capitolo 3

## Set-up sperimentale

#### 3.1 Il sistema laser

Abbiamo visto che un OPA deve ricevere in ingresso un impulso laser ad alta intensità (vedi sezione 1.1) da cui poi vengono ricavati gli impulsi di *pump* e *seed*. Nel nostro caso la sorgente laser è schematizzata in figura 3.1. Le caratteristiche



Figura 3.1: Schema a blocchi del sistema laser [9].

del sistema laser sono riportate in tabella 3.1. Il sistema è composto da un oscillatore (Mira) e da un amplificatore rigenerativo (Legend); i due laser a stato solido (Verdi e Evolution) fungono da pompa per oscillatore e amplificatore. Vediamo ora brevemente il funzionamento di ciascun componente.

La produzione di impulsi avviene nella cavità dell'oscillatore tramite la tecnica del *Kerr lens mode locking* (KLML). La nostra cavità laser è disegnata in modo da sostenere tutti i modi stazionari del campo elettromagnetico con frequenze comprese nella riga spettrale del mezzo attivo. Tipicamente questi modi "laserano" con una relazione di fase casuale tra loro. Fluttuazioni di fase all'interno della cavità possono far sì che si instauri una relazione di fase precisa tra i modi. Si può dimostrare che una relazione di fase costante tra i modi del

	MEZZO ATTIVO	$\lambda \ (nm)$	$P(\mathbf{W})$	$\tau$ (fs)	RR (kHz)
Coherent Verdi	$Nd:YVO_4$	532	5	-	-
Coherent Mira	$\mathrm{Ti:}\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$	$800\pm40$	0.350	20	$76 \ 10^3$
Coherent Evolution	Nd:YLF	527	20	-	-
Coherent Legend	$\mathrm{Ti:}\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$	$800\pm40$	2	50	1

Tabella 3.1: Lunghezze d'onda  $(\lambda)$ , potenze (P), durate degli impulsi  $(\tau)$  e repetition rate (RR) operative per i componenti del sistema laser. L'incertezza sulla lunghezza d'onda dei due laser impulsati rappresenta approssimativamente la semilarghezza dello spettro.

campo fa sì che il campo risultante abbia la forma di un impulso con ampiezza proporzionale al numero di modi presenti. È possibile disegnare cavità laser che abbiano efficienza più alta per modi impulsati, in modo che questi vengano sostenuti dal processo di emissione stimolata a scapito di quelli continui. Il processo può essere facilitato sfruttando l'effetto Kerr (vedi sezione 1.6). A causa delle maggiori intensità di picco gli impulsi generati in seguito alla perturbazione risultano più focalizzati rispetto all'onda continua; quindi se introduciamo una fenditura all'interno della cavità è possibile permettere il transito solamente del modo impulsato.

L'impulso in uscita dall'oscillatore viene amplificato sfruttando la chirped pulse amplification (CPA). Le componenti spettrali dell'impulso vengono disperse temporalmente da un reticolo, ovvero viene introdotto un chirp temporale. Dal momento che le componenti arrivano a tempi diversi sul mezzo attivo dell'amplificatore, non c'è il rischio che questo si danneggi. Il numero di passaggi dell'impulso attraverso il mezzo attivo è regolato sfruttando l'effetto Pockels. Tale effetto consiste nella variazione dell'indice di rifrazione di un cristallo in seguito all'applicazione di un campo elettrostatico. Nel caso in cui si utilizzi un cristallo birifrangente è quindi possibile controllare la polarizzazione di fascio incidente tramite campi statici. Dispositivi di questo tipo prendono il nome di Pockels cell. Accoppiando una Pockels cell con un polarizzatore in grado di riflettere gli impulsi polarizzati in una direzione e di trasmettere quelli con polarizzazione ortogonale, è quindi possibile controllare la permanenza dell'impulso nella cavità dell'amplificatore. Quando si è raggiunto il livello di amplificazione ottimale questo viene quindi espulso dalla cavità. A questo punto l'impulso viene ricompresso temporalmente, percorrendo un percorso ottico inverso rispetto a quello utilizzato per introdurre il chirp. Utilizzando KLML in Mira e CPA in Legend, otteniamo un'amplificazione dell'impulso da 350 mW a 2 W. Gli impulsi prodotti hanno polarizzazione lineare orizzontale, ovvero contenuta nel piano del banco ottico.

#### 3.2 Realizzazione dell'OPA

Lo strumento realizzato ricalca la struttura generale di molti OPA, discussa nel capitolo precedente. In figura 3.2 ne possiamo vedere uno schema.



Figura 3.2: Schema dell'OPA realizzato.  $\lambda/2$ : half wave plate; SC: supercontinuo; DL: delay line; BS1: beam splitter con coefficiente di riflessione 0.5% e di trasmissione 99.5%; BS2: beam splitter con coefficiente di riflessione 10% e di trasmissione 90%; DM: specchio dicroico. Per brevità sono state omesse le lenti.

La struttura è quella di un OPA a due *stage*, il primo in geometria non collineare, il secondo collineare, con *seed* di luce bianca supercontinua prodotta in un cristallo di zaffiro. La polarizzazione del *seed* è ortogonale a quella della pompa, pertanto il *phase matching* realizzato è di tipo II.

#### 3.2.1 Seed

L'impulso a  $\approx 800$  nm proveniente dal sistema laser è diviso da un beam splitter che riflette lo 0.5% della potenza e ne trasmette il 99.5% (BS1 in figura 3.2). La piccola parte riflessa è utilizzata per generare il seed. Per prima cosa l'asse di polarizzazione del seed viene ruotato di 90° tramite un half wave plate ( $\lambda/2$ ), poiché i cristalli utilizzati per l'amplificazione parametrica sono tagliati per realizzare phase matching di tipo II. In seguito l'impulso viene focalizzato su un cristallo di zaffiro spesso 3 mm, all'interno del quale avviene la generazione di luce bianca. Il chirp del supercontinuo introdotto dalla SPM (vedi sezione 1.6) permette di selezionare la componente spettrale da amplificare variando il ritardo tra seed e pompa (DL1 in figura 3.2).

Supercontinui generati utilizzando impulsi di 900 nJ provenienti da sistemi laser con *repetition rate* di 1 kHz, operanti a  $\approx$  775 nm con impulsi di durata di 150 fs ed energia di 1 mJ tipicamente mostrano una densità spettrale di energia media di 1 pJ/nm nella regione tra 1100 nm e 1500 nm [7]. Il contenuto energetico degli impulsi nella regione spettrale di interesse per un OPA infrarosso (da 1300 nm a 1400 nm) è di  $\approx$  100 pJ. Ciò corrisponde ad un'efficienza dell'ordine di  $10^{-4}$  nella generazione di supercontinuo.

#### 3.2.2 Primo stage

Il 99.5% della potenza proveniente dall'impulso laser a  $\approx 800$  nm viene utilizzata come pompa per il primo e il secondo *stage*. Questa potenza è divisa da un secondo *beam splitter* che ne indirizza il 4% verso il primo *stage* e il restante 96% verso il secondo <sup>1</sup> (BS2 in figura 3.2). La scelta di una divisione così asimmetrica tra le potenze della pompa in ingresso nei due *stage* è giustificata dal fatto che lo scopo principale del primo stadio è quello di "pulire" il segnale, selezionando dal supercontinuo la componente spettrale desiderata, mentre l'amplificazione di potenza vera e propria è realizzata al secondo stadio.

Il cammino ottico della pompa del primo stage è regolato accuratamente tramite una delay-line (DL1 in figura 3.2) controllata meccanicamente da una vite micrometrica. Ciò permette di trovare la sovrapposizione temporale tra pompa e seed all'interno di un cristallo di BBO (BBO1 in figura3.2) spesso 3 mm tagliato per realizzare phase matching di tipo II, con angolo tra asse ottico e superficie pari a 28°. I due impulsi arrivano sul BBO non collinearmente: la scelta di una geometria non collineare al primo stage concorre alla pulizia del segnale che, in uscita dal cristallo, si ritrova separato spazialmente da pompa, idler e da eventuali campi generati ad altre frequenze nell'interazione non lineare. Il phase matching viene realizzato definendo l'angolo  $\alpha$  tra seed e pump (nel nostro caso  $\alpha = 7^{\circ}$ ) e ottimizzando l'angolo del BBO rispetto al signal fino ad ottenere la massima intensità in uscita per la lunghezza d'onda desiderata.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Il *beam splitter* BS2 è ha coefficienti di riflessione R e trasmissione T rispettivamente di 10% e 90% per luce non polarizzata. In generale R e T dipendono dalla polarizzazione; per questo motivo nel nostro caso essi differiscono dai valori nominali per luce non polarizzata.

A questo punto possiamo introdurre due grandezze che definiscono le prestazioni di un OPA: l'efficienza ed il gain (o guadagno). L'efficienza è data dal rapporto tra l'energia "utile", ad esempio quella degli impulsi infrarossi generati, e quella totale utilizzata. In quanto tale è ovviamente minore o uguale ad uno, e viene espressa in percentuale. Il gain è invece il rapporto tra l'energia dell'impulso amplificato dal processo parametrico e l'energia dell'impulso in ingresso, non amplificato. Quindi il guadagno assume valori anche molto maggiori di uno, e tipicamente è di qualche ordine di grandezza maggiore dell'unità in un processo ottico parametrico.

Per quanto riguarda un singolo *stage* di amplificazione non collineare in sistemi analoghi al nostro, in letteratura sono riportate efficienze dell'ordine del 20% e *gain* di  $10^3 - 10^4$  [3].

#### 3.2.3 Secondo stage

L'impulso di *pump* per il secondo *stage* è ricavato dallo stesso *beam splitter* 10:90 da cui proviene anche l'impulso di *pump* per il primo *stage*. Anche in questo caso sul percorso ottico della pompa è presente una *delay-line* (DL2 in figura 3.2) che permette di regolare finemente la sovrapposizione temporale tra *pump* e *signal*, che questa volta è costituito dall'output del primo *stage*. In questo stadio di amplificazione pompa e segnale arrivano collinearmente su un cristallo di BBO (BBO2 in figura3.2) spesso 5 mm, tagliato per realizzare *phase matching* di tipo II, con angolo tra asse ottico e superficie pari a 28°. La geometria collineare permette in linea di principio di mantenere la sovrapposizione tra i due impulsi lungo tutto il cristallo invece che in solo punto, come invece avverrebbe nel caso non collineare; inoltre l'impiego di un cristallo di lunghezza maggiore rispetto a quello utilizzato nel primo *stage* permette di raggiungere un più alto guadagno nell'amplificazione.

Per sovrapporre le direzioni di propagazione di *signal* e *pump* viene impiegato uno specchio dicroico (DM in figura 3.2) che risulta riflettente per la radiazione a 800 nm e trasparente nel NIR: esso viene quindi attraversato dall'output del primo *stage* mentre riflette l'impulso di pompa.

Tipicamente OPA collineari alimentati da laser Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> con repetition rate di 1 kHz raggiungono al secondo stage di amplificazione efficienze superiori al 30% e guadagni maggiori di 10. In particolare, impulsi di 6  $\mu$ J provenienti dal primo stage possono interagire con impulsi di pompa di 450  $\mu$ J, venendo amplificati fino a 200  $\mu$ J: il processo ha un efficienza del 45% e il fattore di guadagno è circa 33 [3].

#### 3.3 Caratterizzazione dell'OPA

#### 3.3.1 Seed

Lo spettro del supercontinuo prodotto sullo zaffiro, rilevato tramite uno spettrometro funzionante nel range di lunghezze d'onda tra 900 nm e 1700 nm, presenta un picco di massima intensità verso gli 800 nm, con una coda che si estende nel vicino infrarosso. Per evitare l'insorgere di effetti non lineari indesiderati dovuti al residuo della radiazione a  $\approx 800$  nm nel supercontinuo, è stato introdotto un filtro passabasso in frequenza con lunghezza d'onda di taglio a 950 nm dopo il cristallo di zaffiro. Lo spettro risultante è riportato in figura 3.3.



Figura 3.3: Spettro del supercontinuo (SC) generato nel cristallo di zaffiro da un impulso laser a  $\approx 800$  nm filtrato con un filtro passabasso in frequenza con lunghezza d'onda di taglio a 950 nm (scala logaritmica) (linea rossa) e trasmittanza del filtro (linea blu).

La potenza utilizzata per generare il *seed*, riflessa dal BS1, è dell'ordine di 10 mW (10  $\mu$ J/impulso) ed è distribuita su un profilo trasverso di circa 7 mm. Tale potenza viene ulteriormente filtrata da un diaframma con un diametro di circa 1 mm che permette il passaggio della sola regione centrale del fascio. Possiamo quindi stimare che la potenza che investe il cristallo di zaffiro sia dell'ordine di 1 mW (1  $\mu$ J/impulso). In base alle considerazioni fatte in precedenza stimiamo che un impulso supercontinuo prodotto dal nostro sistema abbia un contenuto energetico di 100 pJ nella regione spettrale di interesse, ovvero quella compresa tra 1300 nm e 1400 nm.

#### 3.3.2 Primo stage

In base a quanto detto fin'ora è evidente che il segnale in output dal primo stage presenti uno spettro dipendente dal ritardo della pompa rispetto al seed supercontinuo, dall'angolo tra i due fasci e dall'angolo del BBO rispetto alla direzione di propagazione del seed. Essendo l'angolo tra i fasci definito dalla geometria del sistema ottico, il primo stage è stato caratterizzato misurando gli spettri in uscita dal cristallo al variare del ritardo tra pompa e seed e dell'angolo del BBO. Questo modo di agire costituisce la procedura standard di regolazione della frequenza dell'output di un generico OPA operante nel vicino infrarosso [3].



Figura 3.4: (a) Spettri degli output del primo *stage* di amplificazione ottenuti per diversi valori del ritardo tra *seed* e *pump* (scala logaritmica); per tutti gli spettri è stato mantenuto lo stesso angolo del BBO, ovvero quello che ottimizza l'amplificazione a 1350 nm; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del primo *stage* e della sua intensità dal ritardo tra *seed* e *pump*.

In figura 3.4(a) sono riportati gli spettri degli impulsi amplificati, ottenuti per diversi valori del ritardo tra *seed* e pompa, mantenendo fisso l'angolo del BBO rispetto alla direzione di propagazione della pompa. Dall'immagine risulta evidente l'esistenza del *chirp* dell'impulso. Cambiando il ritardo, cambiamo la lunghezza d'onda su cui è centrato l'impulso amplificato; ciò dimostra che le varie componenti spettrali del supercontinuo generato nel cristallo di zaffiro sono disperse temporalmente. Inoltre il *chirp* osservato è compatibile con quello previsto dalla SPM: le frequenze minori (lunghezze d'onda maggiori nel grafico) precedono quelle maggiori (lunghezze d'onda minori nel grafico). La dipendenza della frequenza centrale dell'impulso dal ritardo è considerata esplicitamente in figura 3.4(b), in cui è riportata anche l'intensità di picco dello spettro in funzione del ritardo. Lunghezza d'onda centrale, larghezza (presa come deviazione standard) e intensità di picco sono state estratte tramite un fit gaussiano sugli spettri riportati in figura 3.4(a).

Riguardo alla dipendenza dell'ampiezza dello spettro dal ritardo è possibile fare qualche considerazione. Osserviamo che essa va a zero sia per valori negativi del ritardo (corrispondenti a lunghezze d'onda maggiori) che per valori positivi (corrispondenti a lunghezze d'onda minori). Al contrario, ci si potrebbe aspettare semplicisticamente di avere intensità sempre maggiori avvicinandoci alla lunghezza d'onda del segnale NIR ( $\lambda \approx 800$  nm) con cui abbiamo generato il *seed*, ovvero per lunghezze d'onda decrescenti. L'andamento osservato trova spiegazione nel fatto che in amplificatori basati su BBO la tunabilità in frequenza del *signal* è limitata dalle perdite dovute all'assorbimento nel cristallo non lineare di *idler* con lunghezza d'onda maggiore di circa 3 µm. Ciò fa sì che il *signal* non possa avere lunghezze d'onda inferiori a circa 1.1 µm [3].

Le stesse osservazioni possono essere fatte a proposito delle figure 3.5(a) e 3.5(b). L'unica nota da aggiungere riguarda la procedura con cui sono state



Figura 3.5: (a) Spettri degli output del primo *stage* di amplificazione ottenuti per diversi valori del ritardo tra *seed* e *pump* (scala logaritmica); ciascuno spettro è ottimizzato variando l'angolo del BBO; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del primo *stage* e della sua intensità dal ritardo tra *seed* e *pump*.

ottenute. Una volta selezionata la lunghezza d'onda da amplificare regolando il ritardo tra *pump* e *seed*, l'angolo del BBO rispetto alla direzione di propagazione della pompa è stato di volta in volta modificato per ottimizzare l'intensità dell'impulso amplificato. Così facendo, otteniamo segnali amplificati con spettri di forma regolare centrati su lunghezze d'onda variabili tra 1.2 µm e 1.4 µm.



Figura 3.6: (a) Spettri degli output del primo *stage* di amplificazione ottenuti per diversi valori dell'angolo del BBO; lo zero rappresenta l'angolo che ottimizza lo spettro centrato a 1350 nm; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del primo *stage* e della sua intensità dall'angolo del BBO. Il ritardo temporale tra *seed* e *pump* è mantenuto costante.

Osserviamo infine che l'ottimizzazione della forma dello spettro attraverso la regolazione dell'angolo del BBO non comporta significative variazioni della lunghezza d'onda del segnale. Una volta fissato il ritardo, cambiamenti dell'angolo del cristallo influenzano l'intensità del segnale amplificato ma non la sua lunghezza d'onda. Ciò si può osservare dalle figure 3.6(a) e 3.6(b).

L'efficienza del primo *stage* di amplificazione può essere calcolata in base alle considerazioni fatte in precedenza. Il *seed* ha un energia di  $\approx 100 \text{ pJ/impulso}$ , mentre il segnale amplificato ha una potenza di 1 mW (1  $\mu$ J/impulso). La potenza misurata sul braccio della pompa del primo *stage* è di  $\approx 70 \text{ mW}$  ( $\approx 70 \mu$ J/impulso). Il primo *stage* realizza dunque un'amplificazione parametrica con un fattore di guadagno dell'ordine di 10<sup>4</sup> e con un'efficienza di circa 1.4%.

#### 3.3.3 Secondo stage

La caratterizzazione del secondo stage è stata svolta secondo la stessa procedura impiegata per il primo: sono stati misurati gli spettri degli impulsi amplificati in funzione del ritardo tra signal e pump e in funzione dell'angolo tra BBO e direzione di propagazione dell'impulso di pompa. Tramite un fit gaussiano sono state estratte per ciascuno spettro lunghezza d'onda centrale, larghezza e intensità di picco. La caratterizzazione del secondo stage è stata effettuata utilizzando un segnale a  $\approx 1350$  nm proveniente dal primo stage. Poiché la configurazione utilizzata per questo stadio è collineare, la misura dello spettro del signal all'uscita del cristallo richiede che la pompa residua venga filtrata. È stato quindi posto un filtro passabasso in frequenza con lunghezza d'onda di taglio a 950 nm prima dello spettrometro, per bloccare l'impulso di pompa a  $\approx 800$  nm. La caratterizzazione dell'output riguarda solo il signal in uscita dal secondo stage: con  $\lambda_{pump} = 0.8 \ \mu m \ \lambda_{signal} = 1.3 \ \mu m$  abbiamo  $\lambda_{idler} = 2.1 \ \mu m$ , che non è rilevabile dal nostro spettrometro.



Figura 3.7: (a) Spettri degli output del secondo *stage* di amplificazione ottenuti per diversi valori del ritardo tra *seed* e *pump*; per tutti gli spettri è stato mantenuto lo stesso angolo del BBO, ovvero quello che ottimizza l'amplificazione a 1350 nm; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del secondo *stage* e della sua intensità dal ritardo tra *seed* e *pump*.

In figura 3.7(a) sono riportati gli spettri ottenuti al variare del ritardo tra i due impulsi. La prima cosa che si nota è il fatto che la lunghezza d'onda centrale dello spettro risulta largamente indipendente dal ritardo tra pump e signal. Ciò risulta ancora più evidente dalla figura 3.7(b): la lunghezza d'onda centrale si mantiene a 1350 nm, con fluttuazioni che sono molto minori della larghezza degli spettri. Ciò dimostra che l'impulso proveniente dal primo stage è ben definito sia temporalmente che energeticamente. Una seconda osservazione che possiamo fare riguarda l'intensità di picco dello spettro. Dalla figura 3.7(b) si osserva che l'intensità degli impulsi in uscita dal secondo stage va a zero sia per valori negativi che positivi del ritardo e presenta un massimo nei pressi dello zero. Questa struttura contiene informazioni sulla durata degli impulsi di siqnal e di pump. L'intensità del segnale in output dal secondo stage, vista come funzione del ritardo, può essere espressa come il modulo quadro della correlazione incrociata (o cross correlation) tra l'impulso di signal in ingresso e quello di *pump* [10]. Nell'ipotesi in cui tali impulsi abbiano un profilo temporale gaussiano, anche la loro cross correlation è gaussiana e la sua larghezza è data dalla somma in quadratura delle larghezze degli impulsi di signal e pump. Dalla figura 3.7(b) vediamo che la larghezza a metà altezza della correlazione è approssimativamente di 150 fs; supponiamo inoltre che gli impulsi di pompa siano lunghi circa 100 fs. Possiamo dunque stimare la durata dell'impulso amplificato in uscita dal primo stage in circa 110 fs. Tale valore è ragionevole in quanto l'amplificazione al primo stage avviene fintanto che seed e pump sono sovrapposti: se il seed è temporalmente più esteso del pump, la durata dell'impulso amplificato è paragonabile a quella dell'impulso di pompa.



Figura 3.8: (a) Spettri degli output del secondo *stage* di amplificazione ottenuti per diversi valori dell'angolo del BBO; lo zero rappresenta l'angolo che ottimizza lo spettro centrato a 1350 nm; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del secondo *stage* e della sua intensità dall'angolo del BBO. Il ritardo temporale tra *seed* e *pump* è mantenuto costante.

Consideriamo ora la dipendenza dello spettro dell'output del secondo *stage* dall'angolo del BBO rispetto alla direzione di propagazione di *signal* e *pump* per un valore fissato del ritardo. In figura 3.8(a) sono riportati gli spettri misurati a diversi angoli del BBO; valori crescenti dell'angolo misurato corrispondono a valori decrescenti dell'angolo tra asse ottico del cristallo e direzione dei fasci incidenti. In questo caso la dipendenza dello spettro da questo parametro è evidente sia per quanto riguarda la lunghezza d'onda centrale sia per l'intensità di picco. La figura 3.8(b) mostra chiaramente che al diminuire dell'angolo del BBO (ovvero all'aumentare dell'angolo tra asse ottico e direzione del fascio) la lunghezza d'onda dell'impulso amplificato aumenta. L'andamento osservato si accorda qualitativamente con le curve di *phase matching* note per OPA basati su BBO [3].

Per quanto riguarda l'intensità di picco dello spettro notiamo invece un andamento inaspettato. Ci aspetteremmo che l'intensità vada a zero allontanandosi dall'angolo che ottimizza il segnale a 1350 nm. È così per angoli maggiori dello zero ma per angoli minori l'intensità, dopo un iniziale calo, riprende a crescere. Tale aumento dell'intensità di picco dello spettro si osserva bene in figura 3.9(b).



Figura 3.9: (a) Spettro dell'output del secondo stage di amplificazione ottenuto con il BBO posto a  $-4.50^{\circ}$  rispetto all'angolo che ottimizza lo spettro centrato a 1350 nm; la linea tratteggiata rossa mostra l'output del secondo stage in assenza del *seed* supercontinuo del primo stage, quella viola indica la differenza tra lo spettro osservato del segnale e lo spettro ottenuto in assenza del supercontinuo (SC) prodotto al primo stage; (b) dipendenza della lunghezza d'onda centrale dell'output del secondo stage e della sua intensità dall'angolo del BBO.

Misurando gli spettri ad angoli del BBO per cui si riscontra questo andamento, si osserva che l'effetto è dovuto a un'interazione parametrica nel cristallo non lineare tra un residuo dell'impulso di pompa del primo *stage* e l'impulso di pompa del secondo. Bloccando infatti il *seed* supercontinuo prima del BBO del primo *stage*, osserviamo comunque uno spettro che occupa la stessa regione di lunghezze d'onda, come riportato in figura 3.9(a). Questo spettro residuo scompare se blocchiamo separatamente la pompa del primo *stage* o quella del secondo. Ciò è indice del fatto che l'effetto è causato da un'interazione non lineare tra i due impulsi di *pump* e quindi non riguarda il processo di amplificazione a cui siamo interessati.

L'efficienza del secondo *stage* è stata calcolata misurando la potenza complessiva di *signal* e *idler* in uscita dal BBO. Con una potenza di 1.1 W della pompa (1.1 mJ/impulso) signal e idler hanno in totale una potenza di 150 mW (150  $\mu$ J/impulso). Il fattore di guadagno per il secondo stage è dunque di 150, mentre l'efficienza è del 14%.

#### 3.3.4 Discussione

Concludiamo con alcune considerazioni sull'efficienza. Sia per il primo che per il secondo *stage* il guadagno è comparabile ai valori tipicamente riportati in letteratura [3] mentre l'efficienza risulta particolarmente bassa.

L'efficienza totale risultante è del 13%, con un gain totale di  $\approx 10^5$ . Si è ritenuto più corretto calcolare l'efficienza totale utilizzando una potenza "utile" di 1.18 W piuttosto che la potenza totale in ingresso di 1.92 W, a causa della presenza di un filtro neutro di densità ottica 0.2 sul percorso della pompa del secondo stage. L'energia "utile" dell'impulso di pump in ingresso è calcolata come somma delle energie utilizzate come pompa per i due stage e per produrre il seed supercontinuo; essa vale 1.18 mJ. Il filtro neutro non è pensato per rimanere nella configurazione definitiva dell'OPA, tuttavia il suo utilizzo è stato necessario durante la fase di caratterizzazione. Il motivo risiede nel fatto, a cui abbiamo già accennato nell'introduzione, che l'OPA realizzato costituisce solo la prima parte di un progetto più ampio che prevede la costruzione di un altro OPA del tutto speculare al primo, con seed comune. La potenza che verrà utilizzata per alimentare il sistema di due OPA ora è tutta indirizzata verso un singolo amplificatore parametrico, ed è quindi necessario un filtraggio per mettere il sistema in condizioni di funzionamento comparabili a quelle in cui si troverà nella configurazione definitiva.

Supponiamo che il motivo della bassa efficienza vada ricercato nella regolazione dei fuochi dei fasci di *signal* e *pump*. Nell'attuale configurazione il segnale in uscita dal primo *stage* viene messo a fuoco da una lente convergente con distanza focale di 5 cm posta a circa 6 cm di distanza dal primo BBO; il fascio di pompa del secondo *stage* viene invece collimato con un telescopio con magnificazione 0.5. I due fasci hanno sulla superficie anteriore del secondo BBO dimensioni trasverse simili ma queste cambiano all'interno del cristallo. Per ottimizzare l'interazione parametrica tra *pump* e *seed* è necessario che la sovrapposizione spaziale tra i due impulsi sia massima lungo tutto il cristallo: questa condizione si ottiene se le dimensioni trasversali dei fasci sono uguali e costanti lungo la direzione di propagazione.

### Capitolo 4

## Conclusioni

Lo svolgimento di questo lavoro ha portato alla costruzione di un amplificatore ottico parametrico (OPA) funzionante nel vicino infrarosso. Il sistema è alimentato da impulsi laser a  $\approx 800$  nm con energia di 1.92 mJ e produce impulsi regolabili in lunghezza d'onda tra 1200 nm e 1400 nm con energia di 150  $\mu$ J. L'efficienza totale è del 13%, con un *gain* totale di  $\approx 10^5$ .

La tunabilità degli impulsi prodotti è limitata dallo scarso contenuto spettrale del supercontinuo per lunghezze d'onda superiori a 1400 nm e da effetti di assorbimento nel cristallo non lineare di BBO in cui avviene l'amplificazione. Questo suggerisce due direzioni in cui è possibile lavorare per aumentare la banda di tunabilità dell'OPA: da un lato utilizzare *seed* generati in cristalli con più alta efficienza di generazione di supercontinuo nell'infrarosso, dall'altro sperimentare l'amplificazione in cristalli non lineari con range di trasperenza più estesi. Anche sul versante dell'efficienza lo strumento può essere ancora migliorato. L'impiego di cristalli non lineari più lunghi e, soprattutto, un'attenta calibrazione dei fuochi dei fasci di *pump* e *signal* risultano cruciali per il raggiungimento di efficienze di conversione alte, che possono arrivare al 50% [3].

## Bibliografia

- R. A. Kaindl, M. Woerner, T. Elsaesser, D. C. Smith, J. F. Ryan, G. A. Farnan, M. P. McCurry, D. G. Walmsley, Science 287, 470-473 (2000).
- [2] Robert W. Boyd, Nonlinear Optics, AP, terza edizione (2007)
- [3] G. Cerullo, S. De Silvestri, Rev. Sci. Instrum. 74, 1 (2003)
- [4] T. Elsaesser, S. Mukamel, M. M. Murnane, N. F. Scherer, Ultrafast Phenomena XII, Springer Verlag series in Chemical Physics Vol. 66 (2001)
- [5] K. F. Wall, A. Sanchez, The Lincoln Laboratory Journal 3, 3 (1990)
- [6] R. Francesco, Generazione e caratterizzazione di un impulso supercontinuo di luce bianca, Tesi di laurea triennale, Università degli Studi di Trieste (2011)
- [7] M. Bradler, P. Baum, E. Riedle, Appl. Phys. B, 97:561-574 (2009)
- [8] D. Brida, C. Manzoni, G. Cirmi, M. Marangoni, S. De Silvestri, G. Cerullo, Opt. Express 15, 15035 (2007)
- [9] F. Giusti, Studio dell'effetto Franz-Keldysh tramite tecniche spettroscopiche nel dominio dei tempi in GaAs, Tesi di laurea triennale, Università degli Studi di Trieste (2012)
- [10] J. Zhang, A. P. Shreenath, M. Kimmel, E. Zeek, R. Trebino, S. Link, Opt. Express 11, 6 (2003)