

#### Università degli Studi di Trieste

# FACOLTÀ DI SCIENZE MATEMATICHE, FISICHE E NATURALI Corso di Laurea in Fisica

Tesi di laurea triennale

## Generazione e caratterizzazione di un impulso supercontinuo di luce bianca

Candidato: Francesco Randi Matricola SM2000008 Relatore: Dott. Daniele Fausti Correlatore: Prof. Fulvio Parmigiani

# Indice

In	troduzione	ii
1	Ottica non lineare: introduzione formale         1.1       Termine lineare della polarizzazione         1.2       Termine del second'ordine         1.2.1       Classificazione degli effetti dovuti a $\chi^{(2)}$ 1.3       Terz'ordine ed effetto Kerr ottico	<b>1</b> 1 2 2 3
2	Generazione di luce bianca         2.1       Self focusing	$     \begin{array}{c}       4 \\       4 \\       5 \\       6 \\       7     \end{array} $
3	Assorbimento a 2 fotoni         3.1       Assorbimento tra livelli discreti         3.2       Assorbimento tra bande         3.3       Utilizzo di un impulso ultracorto come gate ottico         3.4       Assorbimento a due fotoni e automodulazione di fase	8 8 9 9 10
4	Set up sperimentale       1         4.1 Esperimenti pump-probe       4         4.2 Generazione e misura della luce bianca       4         4.2.1 Acquisizione con array di fotodiodi       4         4.2 Riferimento       4         4.3 Misura di transienti di riflettività o trasmittività       4         4.4 Elettronica di controllo dell'acquisizione dati       4         4.5 Il campione e la caratterizzazione dinamica del SC       4         4.6 Pump e probe sul campione: procedure impiegate       4         4.7 Due diverse configurazioni       4         4.8 Misura statica dello spettro       4	<ol> <li>11</li> <li>12</li> <li>12</li> <li>14</li> <li>14</li> <li>15</li> <li>16</li> <li>16</li> <li>16</li> <li>17</li> </ol>
5	Misure       5.1       Caratterizzazione del SC generato con impulsi a 800nm       5.1.1         S.1.1       Misura statica: spettro integrato       5.1.2         S.1.2       Misura dinamica: struttura temporale dello spettro       5.1.3         S.1.3       Problematiche nell'utilizzo di questo impulso       5.2         Caratterizzazione del SC generato con impulsi a 1300nm       5.2.1         Contenuto spettrale       5.2.2         Spettro dinamico       5.2.3         Array InGaAs       5.2.3	<ol> <li>18</li> <li>18</li> <li>19</li> <li>20</li> <li>22</li> <li>22</li> <li>22</li> <li>22</li> <li>23</li> </ol>

6 Conclusioni

## Introduzione

Le dinamiche degli elettroni di un materiale si sviluppano su scale di tempo dell'ordine dei femtosecondi, tempi troppo brevi perché esse possano essere seguite da qualsiasi strumento elettronico finora realizzato. L'unico modo per studiarle è utilizzare metodi ottici. A questo scopo si fanno esperimenti di *pump-probe*. L'idea alla base di questi esperimenti è quella di eccitare un campione con un impulso ultracorto di luce, ovvero con una durata minore di 100 fs, (detto di pompa - o *pump*) e di misurare la sua risposta con un secondo impulso ultracorto meno intenso (detto di *probe* - ovvero di sonda). Il campione, dopo essere stato eccitato, ritorna verso l'equilibrio e l'impulso di *probe* misura le proprietà ottiche fuori equilibrio dopo un tempo di ritardo prefissato.

Il tempo che intercorre tra l'eccitazione e il *probe* può essere regolato variando il cammino ottico di uno dei due impulsi. Ripetendo la misura più volte a differenti ritardi, si può seguire l'intera dinamica di diseccitazione.

Nella maggior parte dei casi il *probe* (come la pompa) è un impulso laser. Nonostante la risposta del materiale possa estendersi su un ampio intervallo di lunghezze d'onda, un *probe* monocromatico ne rivela la risposta solo alla frequenza prefissata. Per conoscere la risposta ottica anche ad energie diverse è necessario modificare la lunghezza d'onda del *probe*, rendendo necessarie due scansioni: una temporale e una seconda in lunghezza d'onda. In questo modo il tempo necessario ad una misura completa si allunga di molto.

Nella configurazione sperimentale presentata in questa tesi, invece, viene utilizzato come impulso di *probe* un impulso di luce bianca (detto anche supercontinuo, o SC), che si estende in lunghezza d'onda per alcune centinaia di nanometri. Grazie a questo tipo di *probe* si può quindi studiare la risposta ottica transiente del campione simultaneamente su tutto quest'intervallo di energie facendo una sola scansione in tempo.

Un impulso di luce bianca si genera tramite l'interazione di un impulso monocromatico molto intenso con materiali ottici non lineari (capitolo 3). Il risultato di questa interazione è un impulso che presenta una dispersione temporale (*chirp*), ovvero le lunghezze d'onda maggiori precedono quelle minori. Questa struttura si riproduce anche nelle misure effettuate con un *probe* a luce bianca. Si rende quindi necessario caratterizzare la dispersione temporale dell'impulso al fine di poter correggere le misure. Questa caratterizzazione si può ottenere con varie tecniche ottiche. Quella utilizzata nel nostro caso sfrutta l'assorbimento a due fotoni in un campione di seleniuro di zinco ZnSe (capitolo 4). Il vantaggio di questa tecnica è che il metodo e il *set up* sperimentale per effettuare la caratterizzazione sono gli stessi usati per una vera e propria misura di pump-probe (capitolo 5), ma in questo caso l'impulso di pump agisce come *gate* ottico.

### Capitolo 1

# Ottica non lineare: introduzione formale

In generale, l'ottica a basse intensità di campo è ben descritta considerando una dipendenza lineare tra la polarizzazione del mezzo e il campo elettrico applicato:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} \tag{1.1}$$

dove  $\chi \neq \chi(\mathbf{E})$ .

Per alte intensità di campo tale approssimazione non è più valida e i termini di ordine superiore non sono più trascurabili. Effettuando uno sviluppo di  $\chi$  nell'intorno di E = 0 si ottiene una suscettività dipendente dal campo elettrico come [Bloembergen(1996)]:

$$\chi_{ij}(E) = \chi_{ij}(0) + \frac{\partial \chi_{ij}}{\partial E_k}(0)E_k + \frac{1}{2}\frac{\partial^2 \chi_{ij}}{\partial E_k \partial E_l}(0)E_kE_l + \dots$$
(1.2)

e di conseguenza una polarizzazione:

$$P_{i} = \epsilon_{0} \chi_{ij}^{(1)} E_{j} + \epsilon_{0} \chi_{ijk}^{(2)} E_{j} E_{k} + \epsilon_{0} \chi_{ijkl}^{(3)} E_{j} E_{k} E_{l} + \dots$$
(1.3)

Il primo termine è lineare in E e descrive l'ottica lineare.

In generale, i primi due termini della polarizzazione sono dati da:

$$P_i^{(1)}(\mathbf{r},t) = \epsilon_0 \int_{V'} \int_{-\infty}^t \chi_{ij}^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') E_j(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt$$
(1.4)

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r},t) = \epsilon_0 \int \int_V \int \int_{-\infty}^t \chi_{ijk}^{(2)} \begin{pmatrix} \mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t' \\ \mathbf{r} - \mathbf{r}'', t - t'' \end{pmatrix} E_j(\mathbf{r}', t') E_k(\mathbf{r}'', t'') d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'' dt' dt''$$
(1.5)

#### 1.1 Termine lineare della polarizzazione

Il termine lineare della polarizzazione diventa:

$$P_j^{(1)}(\mathbf{r},t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi_{ij}^{(1)}(t-t') E_j(\mathbf{r},t') dt'.$$
 (1.6)

Considerando l'onda piana incidente:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \hat{e}E(\omega_0)\cos(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_0 t - \Phi) = \hat{e}\left[\frac{E(\omega_0)}{2}e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega_0 t)} + compl.conj\right]$$
(1.7)

si ottengono due integrali che sono la convoluzione di  $\chi$  ed E. La loro trasformata di Fourier, ovvero  $P(\omega)$ , è quindi il prodotto delle trasformate di Fourier delle due funzioni:

$$P_i^{(1)}(\mathbf{r},\omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \int_0^\infty \chi_{ij}^{(1)} e^{i\omega\tau} d\tau E(\omega) e^{i(k\cdot r - \omega t)} \mathbf{e}_j + compl.conj.$$
(1.8)

$$P_i^{(1)}(\omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi_{ij}^{(1)}(\omega) E(\omega) + compl.conj.$$
(1.9)

Quindi è la polarizzazione la sorgente del campo prodotto dal mezzo che, oscillando ad una frequenza  $\omega_0$  genera una radiazione alla stessa frequenza del campo incidente.

#### 1.2 Termine del second'ordine

Allo stesso modo il termine di second'ordine si scrive:

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r},t) = \epsilon_0 \int_0^\infty \int_0^\infty \chi_{ijk}(\tau_1,\tau_2) E_j(\mathbf{r},t-\tau_1) E_k(\mathbf{r},t-\tau_2)$$
(1.10)

e si introduce un campo  ${\bf E}$ 

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \hat{e}_1 \frac{E_1}{2} e^{i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1 - \omega_1 t)} + \hat{e}_2 \frac{E_2}{2} e^{i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2 - \omega_2 t)} + compl.conj$$
(1.11)

(corrispondente a due onde piane incidenti). Questo termine può essere scritto come

$$P_i^{(2)} = \frac{\epsilon_0}{4} M \tag{1.12}$$

dove M contiene vari termini (16 in totale), oscillanti a diverse frequenze. Questi termini risultano dalla combinaziona delle frequenze  $\omega_1 \in \omega_2$ :

$$M = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_{1};\omega_{1},\omega_{1})e_{1j}e_{1k}E_{1}^{2}e^{i(2\mathbf{k}_{1}\cdot\mathbf{r}-2\omega_{1}t)} + compl.conj.+$$

$$\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_{2};\omega_{2},\omega_{2})e_{2j}e_{2k}E_{2}^{2}e^{i(2\mathbf{k}_{2}\cdot\mathbf{r}-2\omega_{2}t)} + compl.conj.+$$

$$2\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{1}+\omega_{2};\omega_{1},\omega_{2})e_{1j}e_{2k}E_{1}E_{2}e^{i([\mathbf{k}_{1}+\mathbf{k}_{2}]\cdot\mathbf{r}-[\omega_{1}+\omega_{2}]t)} + compl.conj.+$$

$$2\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{1}-\omega_{2};\omega_{1},-\omega_{2})e_{1j}e_{2k}E_{1}E_{2} * e^{i([\mathbf{k}_{1}-\mathbf{k}_{2}]\cdot\mathbf{r}-[\omega_{1}-\omega_{2}]t)} + compl.conj.+$$

$$2\chi_{ijk}^{(2)}(0;\omega_{1},-\omega_{1})e_{1j}e_{1k}E_{1}^{2} +$$

$$2\chi_{ijk}^{(2)}(0;\omega_{2},-\omega_{2})e_{2j}e_{2k}E_{2}^{2}.$$
(1.13)

A differenza del termine lineare della polarizzazione, il termine quadratico oscilla a frequenze diverse da quella originale dando quindi origine ai fenomeni ottici non lineari del second'ordine.

#### 1.2.1 Classificazione degli effetti dovuti a $\chi^{(2)}$

Gli effetti dovuti ai termini contenuti in M possono essere classificati nel seguente modo:

**Sum Frequency Generation** Il termine  $\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)$  dà origine al fenomeno di generazione di frequenza somma (SFG). Ovvero, nel campo di risposta del mezzo stimolato da due onde di frequenze  $\omega_1 \in \omega_2$  è presente una componente che oscilla alla frequenza  $\omega_1 + \omega_2$ . Se  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$  si ha il caso degenere della SFG e quindi di generazione di seconda armonica (SHG - second harmonic generation). **Differential Frequency Generation** Il termine  $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2, \omega_1, -\omega_2)$  corrisponde alla generazione di frequenza differenza (DFG). Anch'essa presenta una versione degenere in cui  $\omega_1 = \omega_2$ . In questo caso però la differenza delle frequenze è nulla: questa componente del campo è continua e non è oscillante. In questo caso il processo prende il nome di rettificazione ottica (OR - *optical rettification*).

Effetto Pockels  $\chi^{(2)}(\omega, \omega, 0)$  Comporta una variazione dell'indice di rifrazione quando si applica al materiale un campo elettrico costante ( $\omega_2 = 0$ ). L'intensità di questa variazione dipende linearmente da  $E_2$ . Il termine di M responsabile per questo effetto è infatti

$$4\chi_{iik}(\omega_1;\omega_1,0)e_{1i}e_{2k}E_1E_2e^{i(\mathbf{k}_1\cdot\mathbf{r}-\omega_1t)} + compl.conj.$$

**Amplificazione ottica parametrica**  $\chi^{(2)}(\omega_i, \omega_p, -\omega_s)$  (dove i sta per *idler*, p per pompa e s per seed e  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ ) dà origine all'amplificazione ottica parametrica (OPA- optical parametric amplification). Permette l'amplificazione di una particolare frequenza  $\omega_s$ , in modo dipendente da un parametro, che può essere la temperatura o, per un cristallo, l'angolo di incidenza.

Nota: simmetria del cristallo e  $\chi^{(2)}$  Basandosi su argomenti di simmetria si dimostra che  $\chi^{(2)}$  è nulla per tutti i cristalli centrosimmetrici. Un cristallo frequentemente usato per ottenere effetti non lineari del second'ordine è il  $\beta$ -borato di bario (BBO).

#### 1.3 Terz'ordine ed effetto Kerr ottico

A differenza di  $\chi^{(2)}$ , il termine del terz'ordine è non nullo per quasi tutti i mezzi ottici [Siegman(1986)]. Tuttavia, in questo caso i termini della funzione di polarizzazione sono 81. La trattazione dettagliata dei fenomeni non lineari al terzo ordine prescinde lo scopo di questa tesi e quindi qui è riportata una descrizione semplificata il cui scopo è rendere chiara la fenomenologia che sta alla base della generazione di impulsi di luce bianca.

La funzione dielettrica lineare può essere scritta come

$$\epsilon_1 = \epsilon_0 (1 + \chi^{(1)}). \tag{1.14}$$

Con l'introduzione della correzione al terz'ordine  $(\chi^{(3)})$  si ottiene una funzione complessa espressa da

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + \epsilon_2 E^2. \tag{1.15}$$

Di conseguenza l'indice di rifrazione è dato da un'espressione che contiene un termine quadratico nel campo elettrico,

$$n = n_0 + n_2 E^2. (1.16)$$

Se il campo incidente è sufficientemente intenso possono aver luogo quindi dei fenomeni ottici non lineari, tra cui la generazione di terza armonica dovuta al termine  $\chi^{(3)}E^3$ . Un fenomeno di particolare rilevanza per la generazione di luce bianca è la variazione dell'indice di rifrazione medio in funzione dell'intensità della radiazione incidente

$$n = n_0 + n_2 < E^2 >= n_0 + \bar{n}_2 I. \tag{1.17}$$

Quest'ultimo prende il nome di effetto Kerr ottico. È da sottolineare come l'effetto Pockels (in cui viene modificato l'indice di rifrazione con l'applicazione di un campo elettrico) abbia una dipendenza lineare dal modulo del campo, mentre in questo caso essa è quadratica. L'effetto Kerr sta alla base dei due fenomeni principali per il processo di generazione di luce bianca, ovvero il *self-focusing* e la *self-phase modulation*.

## Capitolo 2

## Generazione di luce bianca

Un modo pratico per generare impulsi di luce bianca è tramite l'interazione tra un impulso laser ultra-breve e ultra-intenso con un cristallo con proprietà ottiche non lineari. La trattazione dettagliata della generazione di luce bianca esula dallo scopo di questa tesi. Al riguardo, questo capitolo riporta una breve descrizione dei processi che concorrono alla generazione non lineare di impulsi bianchi.

Tra i processi ottici che ne sono responsabili, quelli predominanti sono non lineari, quindi, caratteristici delle alte intensità. Durante l'attraversamento del mezzo l'impulso originale, detto di *seed*, viene disperso in banda sufficientemente larga da apparire all'occhio come luce bianca.

Uno fra questi processi, il *self-focusing* (SF, autofocalizzazione), risulta essere il più importante. Infatti, esso permette di raggiungere intensità più alte rispetto all'impulso originale favorendo, quindi, gli altri fenomeni non lineari.

#### 2.1 Self focusing

#### SF o autofocalizzazione

L'ingrediente fondamentale per il SF è l'effetto Kerr ottico, che sta alla base anche della SPM, ulteriore processo coinvolto nella generazione di luce bianca. In generale, l'intensità di un impulso (o di un fascio) non è mai uniforme sulla sua sezione. Si consideri in particolare un impulso con un profilo trasverso di intensità di tipo gaussiano

$$I(x,y) = I(r) = I_0 e^{-\frac{r^2}{2\alpha^2}}$$
(2.1)

dove r è la distanza dal centro della sezione dell'impulso. L'indice di rifrazione del materiale non lineare è, a causa dell'effetto Kerr,

$$n(I) = n_0 + \bar{n}_2 I(r). \tag{2.2}$$

Esso avrà, a meno di costanti, lo stesso profilo di I(r) se  $\bar{n}_2 > 0$  (ovvero nella maggior parte dei casi), e quindi decrescerà monotonamente a partire dal centro della sezione. Ciò agisce come una lente convergente e l'impulso collassa su sé stesso (figura 2.1). Il processo di focalizzazione prosegue finché non intervengono dei processi di defocalizzazione, l'impulso non esce dal mezzo o finché il materiale stesso non viene danneggiato.

Considerando, insieme al SF anche la diffrazione, si può dimostrare che il *self focusing* avviene quando l'impulso presenta una potenza maggiore di una potenza critica, indipendentemente dalla superficie su cui è distribuita, e quindi indipendentemente dall'intensità.

Il SF può avvenire anche grazie a meccanismi diversi, ad esempio all'interno di un plasma. Si usa perciò indicare questo tipo di SF come *Kerr-induced self focusing*.



Figura 2.1: Self focusing

#### 2.2 Self phase modulation

#### SPM o automodulazione di fase

Anche la *self-phase modulation* si basa l'effetto Kerr ottico (quindi la dipendenza dell'indice di rifrazione da I), ma in questo caso si considera la dipendenza dell'intensità dell'impulso dal tempo e non dalla posizione come per il caso del SF. La SPM avviene, in generale, per segnali (intensi) modulati nel dominio del tempo. Si consideri il profilo temporale gaussiano di un impulso prodotto da un laser [Siegman(1986)]:

$$I(t) = I_0 e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}.$$
(2.3)

L'indice di rifrazione è

$$n(I) = n_0 + \bar{n}_2 I(t). \tag{2.4}$$

Se d è lo spessore del mezzo non lineare in cui viaggia la luce, allora, rispetto al cammino ottico dovuto a  $n_0$  ( $L = n_0 d$ ) c'è una variazione di cammino ottico

$$\Delta L = \bar{n}_2 d \cdot I(t) = \bar{n}_2 d \cdot I_0 e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}$$
(2.5)

che causa uno sfasamento

$$\Delta \Phi = -\frac{2\pi\Delta L}{\lambda_0} = -\frac{2\pi\bar{n}_2 dI_0}{\lambda_0} e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}$$
(2.6)

 $(\lambda_0 \text{ è la lunghezza d'onda dell'impulso})$ . La frequenza angolare dell'onda è la derivata temporale della sua fase, e quindi, come ultima conseguenza, si ha una variazione nella frequenza istantanea

$$\Delta\omega(t) = \frac{\partial\Delta\Phi}{\partial t} = \frac{4\pi\bar{n}_2 dI_0}{\lambda_0} \frac{t}{\tau^2} e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}.$$
(2.7)

Essa varia con il tempo. La parte anteriore dell'impulso si sposta a frequenze più basse mentre la coda si sposta verso frequenze più alte (come rappresentato in figura 2.2). Da ciò segue che l'impulso di luce bianca prodotto è disperso temporalmente (*chirped*). Le lunghezze d'onda maggiori precedono quelle minori.

La variazione massima di frequenza è

$$|\Delta\omega_{max}| = \frac{4\pi L\bar{n}_2 I_0}{\lambda\tau\sqrt{2}}e^{-\frac{1}{2}} \tag{2.8}$$

che avviene per  $t = \pm \tau / \sqrt{2}$ .

Nota Questa trattazione è valida supponendo che I(t) non cambi attraversando il materiale.



Figura 2.2: Automodulazione di fase

#### 2.3 Scattering Raman

Un altro fenomeno che contribuisce all'allargamento dello spettro dell'impulso di seed è lo scattering Raman, ovvero la diffusione inelastica dei fotoni da parte del mezzo. Un fotone (di frequenza  $\nu_0$ ) può eccitare un sistema ad un livello virtuale più alto. Diseccitandosi esso può tornare allo stato di partenza e riemettere un fotone con la stessa frequenza  $\nu_0$ . Se il mezzo si diseccita passando ad un livello più alto di quello di partenza, il fotone emesso ha una frequenza minore di  $\nu_0$ . In questo caso la riga emessa prende il nome di riga Stokes (ovvero fotoni di Stokes). Tuttavia, se l'energia del livello finale è minore di quella del livello iniziale (ad esempio se si parte da un livello eccitato e si arriva a quello fondamentale), il fotone emesso risulta a energia maggiore e prende il nome di fotone (riga) anti-Stokes. Anche tramite questo processo lo spettro dell'impulso di seed si arricchisce di frequenze diverse da quella centrale di partenza.



Figura 2.3: Scattering Raman

**Prevalenza della componente Stokes** In generale, la componente Stokes (quindi ad energia più bassa del seed) è più intensa. Essendo la popolazione degli stati di tipo termico, i livelli vibrazionali più bassi sono i più occupati.

#### 2.4 Four wave mixing (parzialmente degenere)

Anche il four wave mixing (FWM) contribuisce alla generazione di luce bianca. In quest'altro processo non lineare due fotoni con frequenze  $\omega_1 \in \omega_2$  vengono annichiliti e altri due fotoni, con frequenze diverse, vengono creati, con il vincolo della conservazione dell'energia:

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4. \tag{2.9}$$

Nel caso qui analizzato si tratta di FWM parzialmente degenere, ovvero i due fotoni in ingresso hanno approssimativamente la stessa frequenza, poiché appartengono entrambi allo stesso impulso "monocromatico",

$$2\omega_{in} = \omega_s + \omega_{as}.\tag{2.10}$$

In analogia con lo scattering Raman, tra le due frequenze in uscita, quella più bassa si dice di Stokes, mentre quella più alta di anti-Stokes. In questo caso però, a differenza dello scattering Raman, le componenti Stokes e anti-Stokes sono generate nello stesso processo, per cui entrambe hanno la stessa intensità.

## Capitolo 3

## Assorbimento a 2 fotoni

#### TPA o two photon absorption

L'assorbimento a due fotoni è il processo impiegato per la caratterizzazione dinamica dell'impulso di luce bianca studiato. Esso permette di utilizzare l'impulso di pompa come *gate* ottico (come descritto più avanti), e ciò permette di individuare la posizione temporale delle varie lunghezze d'onda all'interno del supercontinuo.

Anche questo è un fenomeno ottico non lineare.

#### 3.1 Assorbimento tra livelli discreti

Dati due livelli energetici di un sistema  $E_0$  ed  $E_1$  separati da un  $\Delta E$  di energia, un elettrone nel livello  $E_0$  può assorbire un fotone solo se questo ha energia  $h\nu = \Delta E$ . Se non ci sono fotoni a quell'energia, non c'è alcun assorbimento nel limite lineare.

Quando però l'intensità della luce incidente sul sistema è sufficientemente alta, possono intervenire fenomeni ottici non lineari che danno origine a nuovi comportamenti. Se infatti due fotoni arrivano insieme sul sistema, e la somma delle loro energie è pari al  $\Delta E$  tra i due livelli energetici, allora può esserci assorbimento.



Figura 3.1: Assorbimento tra livelli discreti

I due fotoni possono avere frequenze diverse oppure appartenere allo stesso impulso laser e quindi avere la stessa frequenza. È da ribadire che si tratta di un fenomeno non lineare. Anche ad alte intensità, l'assorbimento a due fotoni è minimo. Nelle misure effettuate su ZnSe si osservano, rispetto all'assorbimento lineare, aumenti relativi nell'assorbimento dovuti a questo processo dell'ordine del centesimo.

#### 3.2 Assorbimento tra bande

L'assorbimento a due fotoni in sistemi con livelli esclusivamente discreti è limitato alle coppie di fotoni con energia totale pari esattamente ai  $\Delta E$  disponibili. Se invece si considera un sistema a due bande, è sufficiente che

$$h\nu_1 + h\nu_2 \in (\Delta E_{min}; \Delta E_{max})$$

con  $\Delta E_{min}$  il gap  $E_g$  tra le due bande e  $\Delta E_{max}$  somma delle larghezze delle due bande  $(B_1 \in B_2)$ e del gap  $E_g$ . Perciò, in queste condizioni, l'assorbimento a due fotoni non è strettamente legato ad una sola energia.

Se, come per le misure effettuate per studiare gli impulsi di luce bianca, il sistema in questione è il seleniuro di zinco (ZnSe) con un gap  $E_g = 2.5 \, eV$ , l'assorbimento (lineare e non) non è limitato a 2.5 eV.



Figura 3.2: Assorbimento tra bande

#### 3.3 Utilizzo di un impulso ultracorto come gate ottico

Per un impulso B, con uno spettro che si estenda fino ad energie massime più piccole di  $E_g$  di un semiconduttore, nessuna frequenza può essere assorbita direttamente, mentre per le frequenze tali che  $h\nu > E_g/2$  ci può essere assorbimento a due fotoni.

Se sul semiconduttore incide anche un fascio A monocromatico, continuo e molto intenso, l'assorbimento a due fotoni (per tutte le frequenze permesse, incluse quelle tali che  $h\nu \leq E_g/2$ ) aumenta. Si consideri ora:

- l'impulso B disperso *chirped* ma con ampio contenuto spettrale (frequenze diverse arrivano a tempi diversi);
- $\nu_A + \nu_B$  sempre permessa per l'assorbimento a due fotoni  $\forall \nu_B$ ;
- A, invece che continuo, un impulso molto più corto di B (ma sempre limitato in banda).

In queste condizioni, l'aumento di assorbimento dovuto alla presenza di A può avvenire solo per le frequenze di B che arrivano sul semiconduttore insieme a A. Poiché A è molto più corto di B, ciò interesserà soltanto un piccolo intervallo di frequenze (figura 3.3). A questo punto, variando il tempo  $t_A$  a cui l'impulso A arriva sul semiconduttore, si può andare ad indagare quali frequenze sono contenute in B al tempo  $t_A$ . Si ottiene così una mappa della struttura temporale dell'impulso disperso B.



Figura 3.3: L'utilizzo di un impulso ultracorto come *gate* ottico mediante l'assorbimento a due fotoni

#### 3.4 Assorbimento a due fotoni e automodulazione di fase

Tornando a considerare la generazione di luce bianca, si può fare questa considerazione. Tra i fotoni coinvolti nella SPM (e più in generale nella generazione del supercontinuo), ci possono essere delle coppie con energie  $h\nu_1 + h\nu_2 \ge E_g$ , dove  $E_g$  è la larghezza della banda del materiale in cui il SC si genera. In questo caso i fotoni possono venir assorbiti per assorbimento a due fotoni. Come hanno mostrato Nagura et al. [Nagura(2002)] misurando l'allargamento dello spettro nel suo lato anti-Stokes nella generazione del SC in vari materiali, non si ha sostanzialmente alcun allargamento nel caso in cui la frequenza del *seed* sia tale che  $h\nu_s > E_g/2$ . L'esistenza di questa frequenza di soglia è spiegabile considerando la competizione che si instaura tra la SPM e l'assorbimento a due fotoni.

## Capitolo 4

## Set up sperimentale

#### 4.1 Esperimenti pump-probe

L'idea che sta alla base di un esperimento di *pump-probe* è quella di eccitare un campione con un impulso di luce ultracorto (*pump*, pompa) e di misurare la sua risposta ottica (in riflessione o trasmissione) con un secondo impulso meno intenso (*probe*, sonda). Il campione, dopo l'eccitazione, ritorna verso l'equilibrio e l'impulso di *probe* (anch'esso ultracorto, la cui durata è minore di 100 fs) misura un particolare istante di questo processo. Ciò che rende possibile ottenere misure risolte in tempo in esperimenti *pump-probe* è la capacità di imporre un ritardo regolabile tra l'arrivo sul campione dell'impulso di pompa e quello dell'impulso di *probe*. Ripetendo più volte la procedura eccitazione-misura, con ritardi sempre crescenti (ovvero effettuando una scansione in tempo), si può seguire la dinamica della diseccitazione. La distanza temporale tra pompa e *probe* si controlla variando meccanicamente il cammino ottico di uno dei due impulsi. Si consideri che 1  $\mu m$  di variazione di cammino corrisponde a 3.3 fs.

Nel caso dell'esperimento qui riportato lungo il percorso che compie l'impulso di pompa è inserita una slitta su cui è montato uno specchio, come schematizzato in figura 4.1. La risoluzione temporale



Figura 4.1: Slitta e specchi che regolano il ritardo

massima è di  $\simeq 0.66 fs$ . In generale però, poiché gli impulsi utilizzati hanno durate ben più lunghe di questo valore, questa risoluzione temporale non è necessaria, e si usano passi della slitta di alcuni micrometri.

In esperimenti standard di *pump-probe* il *probe* è quasi monocromatico. Ciò costituisce un limite importante per la comprensione dell'origine dei fenomeni fisici che seguono la fotoeccitazione. Per una comprensione più ampia di questi si rende necessario lo studio della risposta del materiale a diverse lunghezze d'onda.

Varie configurazioni sperimentali, invece di utilizzare un *probe* alla lunghezza d'onda fondamentale del laser impiegato (fissa, nel caso di questo lavoro corrispondente a un'energia di 1.5 eV), utilizzano un *probe* generato da un sistema OPA (regolabile tra 0.5 e 1 eV). In questo caso sono possibili misure a diverse lunghezze d'onda. La scansione in energia, in questo caso, si somma a quella in tempo e comporta quindi un aumento dei tempi per la misura, rendendo questa strada piuttosto laboriosa dal punto di vista sperimentale.

Utilizzando come probe un impulso di luce bianca, ovvero il cui spettro si estende su un ampio

intervallo in frequenza, è invece possibile conoscere la risposta del materiale simultaneamente su tutto questo intervallo di lunghezze d'onda, con una singola misura.

In questa tesi è presentato e caratterizzato un sistema sperimentale per misure con *probe* supercontinuo. In figura 4.2 è rappresentato lo schema del set up utilizzato sia per le misure di *pump-probe* sia per la caratterizzazione del supercontinuo stesso.



Figura 4.2: Schema del set up sperimentale utilizzato sia per la caratterizzazione dell'impulso di luce bianca che per le misure di *pump-probe* 

Nell'immagine si distinguono i due fasci impulsati coinvolti, ovvero la pompa e il *probe*. La luce bianca utilizzata come *probe* è generata a partire da un fascio indicato come *seed*. Nella configurazione qui descritta il fascio di *seed* è ricavato, grazie ad un *beam splitter*, dal fascio proveniente dal laser amplificato al titanio-zaffiro (Coherent REGA che genera impulsi a 800nm, della durata di 50fs con un *repetition rate* di 250kHz) - percorso A nella figura 4.2. Come discusso più avanti in questo capitolo, sono state utilizzate due diverse configurazioni per la generazione del *probe* supercontinuo. Nella seconda configurazione la luce bianca è generata a partire da impulsi prodotti da un OPA (con lunghezza d'onda 1300nm) - percorso B. La generazione della luce bianca e il funzionamento dell'apparato per le misure, descritto in questo capitolo, sono indipendenti da quale delle due configurazioni è utilizzata.

#### 4.2 Generazione e misura della luce bianca

La generazione di luce bianca avviene all'interno di un disco di zaffiro di 3mm di spessore su cui è focalizzato il *seed* (secondo i processi descritti nel capitolo 2). Con questa configurazione, gli impulsi di *seed*, per generare il supercontinuo, devono avere un energia di circa 1  $\mu J$ /impulso. Di seguito è descritto il sistema di misura delle diverse componenti spettrali della luce bianca.

#### 4.2.1 Acquisizione con array di fotodiodi

Ciò che dà accesso alla risoluzione temporale nelle misure è la slitta, mentre la risoluzione in frequenza è resa possibile dalla dispersione, ad opera di un prisma, del fascio riflesso (o trasmesso)

#### 4.2. GENERAZIONE E MISURA DELLA LUCE BIANCA

dal campione su di un array lineare di 256 fotodiodi.

L'equazione di Sellmeier che lega indice di rifrazione del materiale di cui è composto il prisma e lunghezza d'onda è

$$n^{2}(\lambda) = 1 + \frac{B_{1}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{1}} + \frac{B_{2}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{2}} + \frac{B_{3}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{3}}.$$
(4.1)

Se l'array di fotodiodi è posizionato dietro il prisma, su ciascun fotodiodo arriva una piccola porzione delle lunghezze d'onda contenute nell'impulso di luce bianca.

Nota: sensibilità dei fotodiodi I fotodiodi utilizzati sono in silicio e il *range* di lunghezze d'onda a cui sono sensibili si estende da 200 nm a 1000 nm.



Figura 4.3: Sensibilità dei fotodiodi in silicio degli array S8380-256Q [Hamamatsu(2011)]

Poiché l'angolo di dispersione non varia linearmente con la lunghezza d'onda, gli intervalli di lunghezza d'onda  $\Delta\lambda$  visti dai diversi fotodiodi dell'*array* non hanno tutti la stessa ampiezza, quindi la risoluzione non è uniforme e va calcolata con un apposito algoritmo descritto di seguito.

**Calibrazione** Poiché la configurazione prisma-fotodiodo non è né univoca né rimane fissa durante l'esperimento, ad ogni misura (o set di misure) deve essere associata anche la calibrazione della scala di lunghezze d'onda rispetto all'*array*. Dato che la calibrazione non è lineare, due punti che associno  $\lambda$  ai rispettivi indici dell'*array* non sono sufficienti. Si lascia perciò incidere sul prisma (e quindi sull'*array*) la luce bianca, facendole attraversare dei filtri. I picchi di assorbimento (o di trasmissione) caratteristici di quei filtri consentono di associare delle particolari lunghezze d'onda ad indici del fotodiodo. Generalmente vengono usati sia filtri interferenziali passa-banda sia un filtro multipicco (figura 4.4).

Una volta ottenuti i punti si effettua un *fit* della funzione che segue in modo da poter ottenere una lunghezza d'onda per ogni elemento dell'*array*. La posizione x sull'*array* in funzione della lunghezza d'onda è (figura 4.5):

$$x = Dtan[\beta - \alpha + arcsen[sen(\alpha)\sqrt{n^2(\lambda) - sen^2(\beta)} - sen(\beta)cos(\alpha)] - \delta_0]$$

$$(4.2)$$

con  $n = n(\lambda)$  secondo l'equazione di Sellmeier,  $\delta_0$  l'angolo di dispersione media,  $\beta$  l'angolo d'incidenza del fascio sul prisma,  $\alpha$  l'angolo del vertice in questione del prisma e D la distanza tra esso e l'array di fotodiodi.



Figura 4.4: Spettro del filtro multipicco utilizzato per la calibrazione (Thorlabs FGB67)



Figura 4.5: Dispersione della luce bianca

#### 4.2.2 Riferimento

Prima di arrivare sul campione da analizzare, parte del fascio di probe viene deviata con un *beam* splitter e viene misurata l'intensità delle sue componenti spettrali. Questa misura viene utilizzata come riferimento per la misura vera e propria:

$$\frac{I_{misura}(\lambda)}{I_{reference}(\lambda)}$$

. Questo rapporto permette di ridurre gli effetti delle fluttuazioni presenti nel processo di generazione di luce bianca.

#### 4.3 Misura di transienti di riflettività o trasmittività

Lo scopo di una misura pump-probe è di misurare come varia, rispetto all'equilibrio, la riflettività R (o la trasmittività T) del campione a seguito dell'arrivo dell'impulso di pompa. Bisogna quindi avere, contemporaneamente alla misura sul campione eccitato, anche quella sul campione all'equilibrio. Per questo, nel percorso della pompa è inserito un chopper (un modulatore meccanico di intensità costituito da delle pale rotanti a una frequenza regolabile). L'intensità della pompa sul campione sarà quindi un'onda quadra (a media I/2) con un duty cicle del 50% (determinato dalla geometria delle pale). In questo modo per la metà del tempo si avranno misure sul campione eccitato e per l'altra misure sul campione all'equilibrio. I dati raccolti sono quindi (in riflettività R o trasmettività T):

$$\frac{\delta T}{T} = \frac{T(eccitato) - T(non\ eccitato)}{T(non\ eccitato)}$$
(4.3)

#### 4.4 Elettronica di controllo dell'acquisizione dati

L'elettronica che controlla l'acquisizione dati è schematizzata in figura 4.6. [Cilento(2006)]



Figura 4.6: Schema dell'elettronica di controllo

L'elemento "parità" confronta il *trigger* del laser (*trigger* A, emesso ogni volta che un impulso esce dal laser, quindi a 250kHz) con ciò che misura il fotodiodo (PD) posto oltre il *chopper* (figura 4.7).

Ciò che ne risulta è quindi un'onda quadra che distingue quando la pompa arriva sul campione o



Figura 4.7: Confronto tra le misure del fotodiodo ed il trigger del laser

meno.

Le misure effettuate dagli *array* non riguardano un solo impulso alla volta: esse integrano 64 impulsi. Il *trigger* B, che regola lo scaricamento dei dati dagli *array* al computer, è ottenuto dividendo il *trigger* A (del laser): B ha infatti 1/64 della frequenza di A, ovvero circa 3.9 kHz.

Il segnale di *clock* serve poi per regolare la velocità di scaricamento dei dati dai *pixel* dell'array. I fotodiodi vengono infatti scaricati in serie alla frequenza data dal *clock*. Il *clock* prodotto dall'elemento "box" è a 8 MHz ma, per come sono costruiti, gli array rispondono a 2 MHz. Ciò significa che per scaricare l'intero array (256 fotodiodi) sono necessari 128  $\mu s$  ( $\Delta t = 256 \cdot 1/(2 MHz) = 128 \, \mu s$ ).

#### 4.5 Il campione e la caratterizzazione dinamica del SC

Le misure si possono effettuare sia in riflessione sia in trasmissione. A seconda del caso specchi diversi portano la luce all'*array* di fotodiodi.

Per la caratterizzazione dinamica dell'impulso di luce bianca si utilizza l'assorbimento a due fotoni: viene usato un campione di seleniuro di zinco (ZnSe) e la misura viene fatta in trasmissione. Gli elementi necessari per il metodo di misura descritto nella sezione sull'assorbimento a due fotoni sono tutti presenti:

- semiconductore con *gap* appropriata;
- impulso da caratterizzare con energia minore del gap;
- impulso di pompa molto più corto di quello da caratterizzare;
- possibilità di variare il ritardo tra la pompa e quest'ultimo.

#### 4.6 Pump e probe sul campione: procedure impiegate

I percorsi degli impulsi di pompa e di *probe* sono comunque diversi, a causa della costruzione dell'apparato ottico, a prescindere dall'anticipo regolato con la slitta. Per questo, ogni volta che viene fatta una modifica di uno dei due percorsi, va ricercato lo zero dei tempi (ovvero la posizione della slitta in cui si ha la coincidenza temporale dei due impulsi sul campione). Ciò viene fatto mettendo nel portacampioni un cristallo BBO ( $\beta$ -borato di bario): muovendo la slitta, quando i due impulsi arrivano in coincidenza temporale (più precisamente, quando la pompa arriva contemporaneamente ad una componente del probe), all'interno del BBO viene generata la frequenza somma (SFG) tra pump e quella componente del probe, visibile semplicemente senza l'aiuto di alcuno strumento. La coincidenza spaziale degli spot prodotti dai fasci sul campione viene invece cercata con una telecamera. Perché la misura non sia distorta, inoltre, la porzione di superficie che il *probe* va ad analizzare dev'essere uniformemente eccitata dall'impulso di pompa. Perciò l'ultima lente che focalizza la pompa sul campione ha una focale più lunga (40 cm) di quella per il *probe* (25 cm). In questo modo la superficie illuminata dalla pompa è più grande di quella illuminata dal *probe* e pertanto quest'ultima si può considerare uniformemente eccitata.

#### 4.7 Due diverse configurazioni

Per motivazioni analizzate nella discussione della caratterizzazione del supercontinuo, sono utilizzate due diverse configurazioni per la generazione della luce bianca. Il *seed*, infatti, può

- 1. provenire directamente dal laser ( $\lambda = 800nm \pm 20nm$ )
- 2. provenire da un OPA ( $\lambda = 1300nm \pm 40nm$ )

I motivi per preferire una configurazione all'altra verranno analizzati più avanti. In ogni caso, il processo di generazione di luce bianca è lo stesso per entrambe le configurazioni. Subito dopo il laser, quindi, un *beam splitter* separa il fascio a 800nm in due fasci:

- 1. Nella prima configurazione il fascio utilizzato come *seed* per la generazione di luce bianca ha il 30% dell'intensità originale, mentre quello utilizzato come pompa il restante 70%. Il *seed* viene quindi direttamente indirizzato sul cristallo di zaffiro.
- 2. Nella seconda invece, il 30% dell'intensità viene utilizzata come pompa, mentre il 70% del fascio originale viene immesso in un amplificatore parametrico (OPA). In questo caso sono gli impulsi uscenti dall'OPA ( $\lambda = 1300nm$ ) ad entrare nello zaffiro. La differenza nella redistribuzione delle energie rispetto alla prima configurazione nasce dalle alte intensità di cui ha bisogno l'amplificatore parametrico per funzionare.

#### 4.8 Misura statica dello spettro

Lo schema di esperimento descritto è utile sia per le misure generiche di *pump and probe*, sia per le misure di caratterizzazione dinamica del supercontinuo stesso. Oltre a questa caratterizzazione, è tuttavia necessario acquisire anche il contenuto spettrale del SC.

Invece di focalizzare l'impulso bianco sullo ZnSe lo si porta, tramite fibra ottica, in un monocromatore.

**Nota** Nei casi in cui il supercontinuo si estenda su un intervallo di frequenze molto grande è necessario utilizzare fotodiodi diversi per il monocromatore. I fotodiodi disponibili, infatti, non coprono tutto lo spettro occupato dal SC. Ad esempio, l'intervallo di lunghezze d'onda più piccole viene misurato con un fotodiodo al silicio mentre l'intervallo ad energie minori con un fotodiodo InGaAs. Nel punto in cui bisogna raccordare le due porzioni dello spettro, data la diversa sensibilità dei fotodiodi, è necessario normalizzare una delle due metà dello spettro sull'altra.

## Capitolo 5

## Misure

In questo capitolo sono presentate le misure di caratterizzazione degli impulsi supercontinui generati con le due diverse configurazioni descritte.

#### 5.1 Caratterizzazione del SC generato con impulsi a 800nm

#### 5.1.1 Misura statica: spettro integrato

La figura 5.1 mostra il contenuto spettrale del supercontinuo generato con un impulso di *seed* a 800 nm (la prima configurazione descritta del *set up* sperimentale - percorso A).



Figura 5.1: Spettro statico dell'impulso di luce bianca

La prima cosa da notare è il picco di intensità che si ha a 800 nm: esso dimostra che i processi non lineari coinvolti nella generazione di luce bianca sono lontani dall'avere efficienze del 100%. Questo picco deriva dall'impulso orginale di *seed* e la sua intensità massima è circa due/tre ordini di grandezza maggiore rispetto a quella del resto dello spettro.

Trascurando la componente centrata a 1600 nm, possiamo dire che l'impulso contiene lunghezze d'onda sufficientemente intense per fare spettroscopia nell'intervallo da 450 nm a circa 1300 nm. Rispetto alla lunghezza d'onda del *seed* lo spettro è sbilanciato verso lunghezze d'onda minori. Il 59% dell'allargamento è infatti verso l'infrarosso, mentre solo il restante 41% si estende verso il visibile.

La porzione di frequenze effettivamente usate per fare misure va da 450 a 1000 nm. In quell'intervallo lo spettro è tutt'altro che piatto. Il picco a 800 nm cade infatti al suo interno. Ciò implica una serie di problemi nell'utilizzo di questo impulso come probe. Essi sono analizzati in seguito.

#### 5.1.2 Misura dinamica: struttura temporale dello spettro

La figura 5.2 mostra ciò che si ottiene studiando la struttura temporale dello spettro grazie all'assorbimento a due fotoni nel ZnSe. L'impulso è disperso temporalmente (*chirped*): lunghezze d'onda diverse arrivano a tempi diversi. L'asse orizzontale è quello dei tempi, quello verticale delle



Figura 5.2: Caratterizzazione dinamica del SC generato con seed a 800nm

lunghezze d'onda mentre il colore rappresenta la variazione relativa di trasmittività

$$\frac{\delta T}{T} = \frac{T(eccitato) - T(non\ eccitato)}{T(non\ eccitato)}.$$
(5.1)

L'asse delle lunghezze d'onda è composto da 256 punti in ogni misura, poiché 256 sono i fotodiodi contenuti nell'*array*.

In figura è riportato lo spettro solo fino a 800 nm. Questo per necessità spiegate in seguito. L'impulso di luce bianca contiene lunghezze d'onda minori di 500 nm, ma in questo esperimento esse non sono osservabili (come invece nella misura statica, dove lo spettro si conclude a 450 nm). Il motivo risiede nel fatto che il gap di ZnSe (2.5 eV) corrisponde ad una lunghezza d'onda di  $1240/2.5 = 496 nm \simeq 500 nm$ . Ciò significa che le lunghezze d'onda minori vengono assorbite da ZnSe in modo diretto e non è quindi più possibile vedere un incremento nell'assorbimento a causa dell'assorbimento a due fotoni.

Analisi del chirp La durata totale dell'impulso visibile in questa misura è di circa 6 ps. La durata misurata delle singole lunghezze d'onda però è più breve e non è costante: il punto in cui la misura dura di meno è a 800 nm, poiché questa componente del supercontinuo, avendo la stessa lunghezza d'onda della pompa, viaggia alla sua stessa velocità all'interno del campione di ZnSe. Inoltre, l'andamento di  $\lambda(t)$  è in accordo con quello causato dalla SPM, ovvero le frequenze minori precedono quelle maggiori. Tuttavia, in questo esperimento, non è possibile, a causa del range di sensibilità dei fotodiodi, osservare la struttura dell'impulso in tutta la sua componente infrarossa.

**Profilo temporale ad una lunghezza d'onda** In figura 5.3 sono riportati i profili temporali a lunghezze d'onda fissate: 500 nm (riga blu), 650 nm (riga verde) e 780 nm (riga rossa).

#### Correzioni numeriche da applicare alle misure

La struttura temporale del supercontinuo si ritrova anche nelle misure *pump-probe* effettuate con questo tipo di impulso come *probe*.



Figura 5.3: Profili temporali di tre lunghezze d'onda diverse

Per poter analizzare le misure più facilmente, è necessario applicare delle correzioni numeriche. Poiché l'impulso di *probe* è disperso in tempo, è necessario correggere lo zero dei tempi per ciascuna lunghezza d'onda. Il risultato che si vuole ottenere è visualizzare come sarebbe stata la misura se l'impulso di *probe* non fosse stato disperso temporalmente.

**Fit del profilo temporale** Il profilo temporale di ciascuna lunghezza d'onda (quindi, ogni riga della matrice che rappresenta la misura) è stato *fittato*, mediante procedure di IGOR, con una gaussiana:

$$f(t) = B + Ae^{-\left(\frac{(t-t_0)}{T}\right)^2}.$$
(5.2)

La larghezza dell'impulso è la larghezza della gaussiana a meno della durata della pompa e della risposta del materiale. Quest'ultima non è costante alle varie lunghezze d'onda, per cui la larghezza dell'impulso non può essere data.



Figura 5.4: Fit della caratterizzazione dinamica del SC generato con seed a 800 nm

**Funzionamento del programma per la correzione** Dalla matrice ottenuta per l'impulso di probe dopo il *fit* si estrae la posizione del minimo di ciascuna riga (ovvero il parametro  $t_0$  del fit). Questi indici formano il vettore che viene poi utilizzato per correggere le misure vere e proprie. Ciascuna riga della matrice della misura, e quindi il profilo temporale di ciascuna lunghezza d'onda, viene traslata nel tempo. In questo modo si ottiene la misura che si avrebbe se l'impulso di *probe* non fosse disperso.

#### 5.1.3 Problematiche nell'utilizzo di questo impulso

Come già detto, l'utilizzo di luce supercontinua come probe presenta dei problemi legati al picco di intensità residuo a 800 nm. Esso è sostanzialmente il *seed* utilizzato nella generazione del SC, privato di quella porzione di energia che è stata redistribuita sulle altre lunghezze d'onda. Questa componente del *probe*, avendo intensità paragonabili a quelle dell'impulso di pompa, può agire

sul campione come una seconda pompa, e quindi inficiare la misura. Inoltre, a simili intensità si possono danneggiare i fotodiodi degli *array*.

Una soluzione al problema è data dall'utilizzo di impulsi a basse intensità. (L'intensità del probe è regolata con un filtro neutro variabile con densità ottica che varia tra 0 e 4. Ciò significa che, su un ampio intervallo di frequenze, la trasmissione può essere variata da 1 a  $10^{-4}$ ). In questo modo il picco a 800 nm nel SC diventa poco intenso e non agisce più come una seconda pompa. Tuttavia, in questo caso le intensità che i fotodiodi devono misurare ricoprono più di due ordini di grandezza e quindi si è costretti a ridurre il *range* dinamico nelle misure.

Un'altra possibile soluzione è l'utilizzo di un filtro *notch* che elimini la componente a 800 nm. I filtri di questo tipo modificano però la struttura temporale dell'impulso.

La soluzione utilizzata qui consiste nell'effettuare due misure separate con due filtri, prima un passa-basso (Schott - KG3) e poi un passa-alto (Schott - RG850), con  $\lambda$  di soglia a 800 nm.



(b) Filtro passa alto

Figura 5.5: I due filtri passa basso e passa alto [Schott(2011)]

I filtri non estinguono la componente a 800 nm ( $T \simeq 0.001$  per l'RG850 e  $T \simeq 0.05$  per il KG3) e, vista l'alta intensità iniziale, anche dopo il filtro si osserva un'intensità comparabile con le altre lunghezze d'onda. In questo modo, è possibile effettuare misure su tutto il *range* spettrale degli impulsi.

**Due misure separate** Ciò che risulta subito evidente è che in questo modo si hanno due misure contigue e complementari per ogni campione che bisogna unire per ottenere un unico spettro. Tra una misura e quella complementare possono cambiare

- la scala dei ritardi tra *pump* e *probe* (ovvero la posizione iniziale e finale della slitta) al fine di evitare di avere sezioni vuote troppo larghe in una o nell'altra misura
- la scala delle lunghezze d'onda rispetto all'*array*: nel caso, ad esempio, che la dispersione angolare della luce bianca nel prisma sia tale che non tutte le lunghezze d'onda da misurare cadano contemporaneamente all'interno dell'*array*. In questo caso tra una misura e l'altra si traslano lateralmente i fotodiodi.

Le posizioni iniziali e finali e la lunghezza dei passi della slitta sono noti. Quindi, quando si uniscono i due spettri ottenuti nelle due misure, la traslazione dell'asse dei tempi è immediata. Il *matching* tra le due scale di lunghezza d'onda invece va effettuato tramite le calibrazioni con i filtri associate alle due misure; poiché tra una misura e quella complementare la scala è solo traslata, è sufficiente un solo punto in comune.

Per effettuare queste operazioni è stato scritto un programma in LabView.

#### 5.2 Caratterizzazione del SC generato con impulsi a 1300nm

Viste le limitazioni dell'impulso di luce bianca generato con un seed a 800 nm si è provato a generare il supercontinuo con un impulso a 1300 nm. Il problema principale nell'utilizzo del SC è dato dalla presenza del picco all'interno dell'intervallo di frequenze in cui si vuole misurare (450-1000 nm). Poiché il picco si trova in corrispondenza della  $\lambda$  del seed, si risolve il problema usandone uno che giaccia al di fuori dell'intervallo di interesse.

#### 5.2.1 Contenuto spettrale

La sorgente utilizzata per la generazione di luce bianca è un fascio laser impulsato prodotto tramite un OPA regolato a 1300 nm. Il contenuto spettrale che si ottiene con questo seed è riportato in figura 5.6.



Figura 5.6: Spettro statico del supercontinuo generato con seed a 1300 nm (misurato con un fotodiodo Thorlabs - DET10C).

L'intervallo di lunghezze d'onda evidenziato è il *range* di sensibilità dei fotodiodi in silicio che compongono gli *array*. Al suo interno non è presente alcun picco che possa inficiare le misure o danneggiare i fotodiodi. Anzi, quella porzione di spettro è sostanzialmente piatta. Utilizzando questo SC come impulso di probe si possono quindi fare delle misure singole utilizzando un solo filtro passa basso per tagliare la componente a 1300 nm, snellendo di molto l'acquisizione dati.

**Nota** Come già anticipato, per coprire quest'intervallo di lunghezze d'onda vengono utilizzati due fotodiodi diversi. In figura 5.7 le loro curve di sensibilità.

#### 5.2.2 Spettro dinamico

La misura dinamica di questo SC è in figura 5.8. All'estremo superiore della scala delle lunghezza d'onda lo spettro finisce poiché i fotodiodi non sono sensibili a lunghezze d'onda maggiori. All'estremo inferiore, come si vede nella misura statica, è invece lo spettro stesso a non estendersi oltre (diversamente da quanto succedeva per l'altro impulso di luce bianca).



Figura 5.7: Curve di sensibilità dei fotodiodi utilizzati per la caratterizzazione statica del supercontinuo generato con seed a 1300 nm [Thorlabs(2011)]



Figura 5.8: Caratterizzazione dinamica del supercontinuo con seed a 1300nm

La durata della porzione di impulso visibile in questa misura è di 7 ps, mentre la forma ricorda quella della luce bianca generata con la 800nm. Anch'essa è in accordo con l'ordine delle lunghezze d'onda previsto dall'automodulazione di fase: il rosso precede il blu.

**Fit** Anche in questo caso è stato fatto un *fit* dei profili temporali per poi ottenere il vettore per la correzione numerica delle misure (figura 5.9).

**Nota** Per innescare la generazione di luce bianca l'impulso di *seed* deve avere una potenza superiore ad una potenza critica (per il *self focusing*). La potenza generata con un OPA è abbastanza grande solo in condizioni ottimali del suo funzionamento.

#### 5.2.3 Array InGaAs

Il supercontinuo generato con l'impulso a 1300 nm, oltre a risolvere il problema del picco residuo del *seed* per le misure nel visibile, offre anche un'altra possibilità: sfruttare la sua grande larghezza di banda sostituendo gli attuali *array* di fotodiodi con dei nuovi fotodiodi InGaAs prodotti dalla Hamamatsu di cui è stata ampliata la sensibilità nel visibile. In figura 5.10 è riportata la loro curva di sensibilità.

Si noti anche che sarebbe possibile studiare la risposta dei materiali su un intervallo di lunghezze d'onda che va da 500 nm a 1.7  $\mu m$  con una sola misura.



Figura 5.9:  $\mathit{Fit}$  della caratterizzazione dinamica del SC generato con seed a 1300 nm



Figura 5.10: Sensibilità dei fotodiodi InGaAs degli array G11608 [Hamamatsu(2011)]

# Capitolo 6 Conclusioni

La generazione del supercontinuo con un *seed* a 800 nm proveniente direttamente dal laser produce un impulso di luce su un intervallo di lunghezze d'onda che va da 450 nm a 1300 nm. L'impulso è disperso temporalmente e la durata totale è di circa 7 ps, con le frequenze minori che precedono quelle maggiori. Questa dispersione viene riprodotta nelle misure effettuate utilizzando l'impulso supercontinuo come *probe*. Per questo sono necessari lo studio della struttura temporale del SC e lo sviluppo di algoritmi per la correzione delle misure.

L'utilizzo di questo *probe* presenta però altre problematiche che complicano l'acquisizione dei dati, obbligando ad utilizzare dei filtri per evitare che l'intensa componenete del SC a 800 nm infici le misure. Sì è perciò generato un impulso di luce bianca utilizzando un *seed* a 1300 nm. Esso non presenta le problematiche caratteristiche dell'altro supercontinuo, offrendo invece la possibilità di sfruttare la sua maggiore larghezza di banda (500 - 1800 nm) per misure su un intervallo di lunghezze d'onda compreso tra 500 e 1700 nm, anche in forza di nuovi rilevatori con fotodiodi di InGaAs potenziati per la misura di radiazione visibile.

## Bibliografia

- [Bloembergen(1996)] N. Bloembergen. Nonlinear Optics. World Scientific, 1996.
- [Cilento(2006)] F. Cilento. Dinamiche elettroniche fotoindotte in superconduttori ad alta temperatura critica, 2006.
- [Hamamatsu(2011)] Hamamatsu. http://www.hamamatsu.com/, 2011.
- [Nagura(2002)] C. Nagura. Generation and characterization of ultrafast white-light continuum in condensed media, 2002.
- [Schott(2011)] Schott. http://www.schott.com/, 2011.
- [Siegman(1986)] A.E. Siegman. Lasers. University Science Books, 1986.
- [Thorlabs(2011)] Thorlabs. http://www.thorlabs.com/, 2011.

## Ringraziamenti

La prima persona che mi sento di ringraziare è Federico, per l'immenso supporto che mi ha dato in ogni singolo aspetto di questa tesi. Daniele, che ha sempre investito moltissimo tempo per spiegarmi passo passo cosa veniva fatto in laboratorio e la fisica che ci stava dietro. Il Professor Parmigiani, che mi ha dato il consiglio di approcciare la materia con il giusto angolo in modo da poter costruire una conoscenza più solida rispetto a quanto avrei potuto fare con altre scelte e che si è sempre assicurato che il lavoro procedesse per il verso giusto. Voglio ringraziare tutti i membri del gruppo T-ReX per l'amicizia e per aver potuto, seppur collateralmente, vedere i loro esperimenti.

E infine, gli amici e la mia famiglia che mi hanno tanto aiutato al di fuori del laboratorio.