

Università Cattolica del Sacro Cuore

Sede di Brescia

Facoltà di Scienze Matematiche, Fisiche e Naturali

Corso di Laurea triennale in Fisica



OPTO-ACOUSTIC CHARACTERIZATION OF AG THIN FILMS GROWN BY SUPERSONIC CLUSTER BEAM DEPOSITION

Relatore:

Dott. Francesco Banfi

Correlatore:

Dott. Simone Peli

Laureando: **Mauro Ghirardelli**

mat. 4008255

Anno Accademico 2014/2015

CONTENTS

1	Introduzione	3
2	Fondamenti dello studio ottico/acustico	4
2.1	Dinamica termo-meccanica impulsiva	4
2.2	$\delta T(t)$, $\delta R(t)$ ed oscillazione meccanica	9
3	Tecnica sperimentale	17
3.1	ASOPS	17
3.2	Set-up sperimentale	20
3.2.1	Banco ottico	20
3.2.2	Procedura operativa	22
3.3	Tecnica SCBD, evaporazione termica	23
3.4	Campioni: (SCBD, evaporazione termica)	26
4	Misure opto-acustiche risolte in tempo	28
4.1	Misure Campioni SCBD	28
4.1.1	Presentazione misure	28

4.1.2	Risposta meccanica	29
4.1.3	Risposta termica	38
4.2	Conclusioni	43

1. INTRODUZIONE

La nanotecnologia è la scienza che si occupa dello studio di materiali con dimensioni spaziali nel range di 1-100nm. Il forte interesse della comunità scientifica nei confronti dei nanomateriali è giustificato dalle loro proprietà uniche. Nanoelettronica, biomedicina, comunicazione, conversione di energia, i campi dove i nanomateriali trovano applicazioni sono molteplici. Per questo motivo negli ultimi anni si sono sviluppate molte tecniche sia per crearli, sia per analizzarli.

In questo studio ci siamo posti come obiettivo l'analisi delle dinamiche termo-meccaniche di rilassamento di un film di argento depositato su substrato di zaffiro (Al_2O_3) con la tecnica SCBD. Tramite l'analisi di campioni su film di diversi spessori, si è cercato di individuare un trend di come il sistema, una volta sollecitato da un laser di pompa ad impulsi ultracorti, ritorni allo stato di equilibrio. Questi campioni sono stati generati con la tecnica di Deposizione di Cluster in Fascio Supersonico (SCBD), tecnica di particolare rilevanza applicativa. Per la misura delle dinamiche termo-meccaniche risolte in tempo ci siamo serviti di un sistema Pump & Probe di tipo ASOPS.

2. FONDAMENTI DELLO STUDIO OTTICO/ACUSTICO

2.1 Dinamica termo-meccanica impulsiva

In questo lavoro di tesi si è studiato il comportamento della dinamica termo-meccanica di rilassamento di un film di argento depositato su di un substrato di zaffiro¹. I fenomeni termo-meccanici coinvolti sono diversi ed avvengono su specifiche scale temporali. Inizialmente un laser di pompa viene fatto incidere sul film di argento. Questo laser genera una dinamica così distribuita:

- gli elettroni dell'argento vengono eccitati dall'impulso laser di pump, la scala temporale di questo processo si attesta sul centinaio di *femtosecondi* (*fs*)
- gli elettroni scambiano energia con i fononi dell'argento fino alla termalizzazione interna del film, in questo caso la scala temporale dipende sia dallo spessore del film di argento sia dall'intensità del laser di pump. Ha una scala dell'ordine dei *picosecondi* (*ps*)

¹ossido di alluminio cristallino Al_2O_3

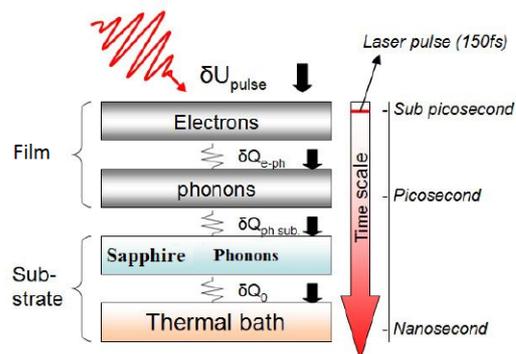


Figure 2.1: La figura rappresenta schematicamente le dinamiche di rilassamento di una struttura film-substrato dopo l'assorbimento di un laser di pump. I primi due blocchi rappresentano il film di Ag e l'accoppiamento elettrone-fonone. Il terzo ed il quarto blocco rappresentano il substrato ed il bagno termico

- i fononi dell'argento scambiano energia con i fononi dello zaffiro tramite l'interfaccia fra i due materiali. Questo processo avviene su una scala temporale nell'ordine delle centinaia di *nanosecondi* (*ns*).

In Fig. 2.1[1] è presentato un modello schematico delle dinamiche di rilassamento descritte. L'oggetto di studio di questa tesi è la terza dinamica presentata, ovvero quella di scambio di energia fra il film ed il substrato.

In questa fase è possibile identificare due fenomeni: un'oscillazione meccanica smorzata del film ed una termalizzazione della coppia film-substrato.

Per il principio di conservazione dell'energia scriviamo:

$$-\nabla \cdot \mathbf{q} + g(\mathbf{r}, t) = \rho c_m \frac{\partial T}{\partial t}$$

con $g(\mathbf{r}, t)$ termine sorgente della densità di potenza (W/m^3), $-\nabla \cdot \mathbf{q}$ è la funzione di dispersione della potenza, \mathbf{q} densità di corrente termica (W/m^2) e $\rho c_m \frac{\partial T}{\partial t}$ densità istantanea di potenza. (ρ è la densità del materiale, c_m il

suo calore specifico per unità di massa) Identifichiamo la densità di corrente con l'equazione di Fourier

$$\mathbf{q} = -\kappa \nabla T.$$

L'equazione di conservazione diviene allora:

$$\kappa \nabla^2 T + g(\mathbf{r}, t) = \rho c_m \frac{\partial T}{\partial t}.$$

Il termine sorgente è dovuto ad una forzante esterna, in questo caso il laser di pompa. L'argento ha un'alta conducibilità termica ($\kappa_{Ag} = 429 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ [2]), se consideriamo anche il valore di penetrazione del campo del laser di pompa nel film a 1560 nm ($\Lambda_{Ag} = 11 \text{ nm}$) e lo spessore del film ($15 - 75 \text{ nm}$), possiamo assumere il film come isoterma ad una temperatura T_0 maggiore di 300k . La quantità di energia assorbita dal substrato è trascurabile². Esso svolge quindi la funzione di bagno termico del sistema. Consideriamo un modello semplificato del problema in cui il trasporto termico avviene lungo l'asse z Fig. 2.2³.

Ciò permette un'agile soluzione ad una dimensione.

Il modello assume un film isoterma a temperatura T_0 al tempo iniziale $t = 0$ in contatto con un substrato ad una temperatura costante T_{sub} .

La resistività termica d'interfaccia ρ_{th} ($\text{m}^2\text{K}/\text{W}$) regola lo scambio di energia attraverso la superficie di contatto secondo la relazione

$$\kappa \frac{\partial T(\mathbf{z}, t)}{\partial z} = \frac{1}{\rho_{th}} [T(\mathbf{z}, t) - T_{sub}].$$

²lo zaffiro è otticamente trasparente al fascio di pompa

³questa semplificazione geometrica è giustificata sia per gli spessori dei film considerati (15, 20, 35, 50 e 75 nm) sia perchè i tempi di diffusione planare del calore sono superiori ai tempi di diffusione del calore perpendicolarmente alla superficie di interfaccia film-substrato

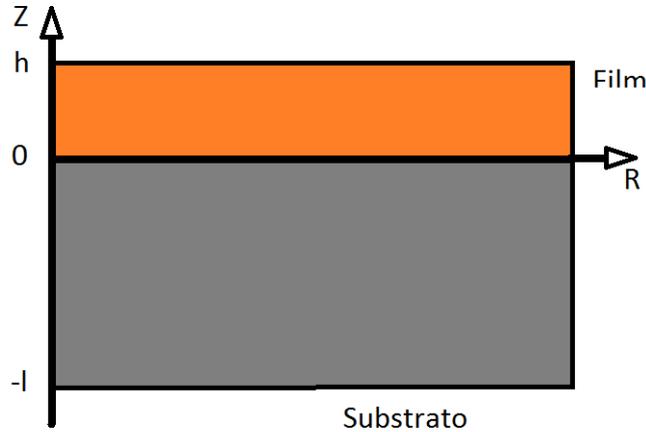


Figure 2.2: Modello geometrico semplificato utilizzato per la ricerca della soluzione analitica nel caso unidimensionale

Assumiamo che non ci sia flusso di calore all'interfaccia film-aria, è possibile quindi scrivere la condizione al contorno

$$\frac{\partial T}{\partial z} = 0.$$

alla superficie $z = h$ Infine quando il numero di Biot, definito come

$$B = \frac{h}{\kappa \rho t h},$$

è $B \ll 1$ possiamo considerare verificate le seguenti affermazioni

- il film risulta spazialmente isoterma durante la dinamica termica ⁴
- la soluzione del problema termico consiste in un esponenziale nella forma

$$T(t) = T_{sub} + T_0 \exp \frac{-(t - t_0)}{\tau_{th}}$$

⁴ $\frac{dT(z,t)}{dz} = 0$ per $0 < z < h$

da cui si ricava

$$\tau_{th} = (\rho c_m \rho_{th})h.$$

dove h rappresenta lo spessore del *film*.

Il valore di ρ_{th} per l'interfaccia Ag/Zaffiro è dell'ordine di $4 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{K}/\text{W}$ [3]

, per $h = 50 \text{ nm}$ otteniamo $B \sim 0.03$, cioè la condizione $B \ll 1$ è verificata.

Per l'Ag a temperatura ambiente si trova $\rho = 10.49 \cdot 10^3 \text{ Kg m}^{-3}$ e $c_m = 232 \text{ JK}^{-1} \text{ Kg}^{-1}$ [4], ci attendiamo quindi un tempo di decadimento $\tau_{th} \sim 480 \text{ ps}$.

Se definiamo una conducibilità d'interfaccia⁵

$$\kappa_{int} = \frac{V}{A\rho_{th}} = \frac{h}{\rho_{th}} \left[\frac{W}{mK} \right]$$

che indica quanto sia efficace lo scambio di calore tra disco e substrato, appare subito chiaro il significato fisico del numero di Biot B : esso è il rapporto tra la conducibilità termica del film e la conducibilità termica d'interfaccia

$$B = \frac{\kappa_{int}}{\kappa}$$

Un numero di Biot $\ll 1$ implica che la conduzione di calore all'interno del film è molto più rapida che la dissipazione di calore dal film, attraverso l'interfaccia, verso il bagno termico. In questo caso il gradiente di temperatura all'interno del campione risulta trascurabile, quindi, nel processo di termalizzazione con il bagno termico, il campione può essere considerato isoterma.

⁵da non confondere con $\kappa_{int} = \frac{1}{\rho_{th}}$

2.2 $\delta T(t)$, $\delta R(t)$ ed oscillazione meccanica

Consideriamo il nostro campione (Ag con substrato zaffiro). La riflettività R del materiale è dovuta alla costante dielettrica complessa sia dell'argento che dello zaffiro.⁶

$$R = R(\tilde{\epsilon}_{Ag}, \tilde{\epsilon}_{Sap})$$

dove

- $\tilde{\epsilon}_{Ag} = \epsilon_{1,Ag} + i\epsilon_{2,Ag}$
- $\tilde{\epsilon}_{sap} = \epsilon_{1,sap} + i\epsilon_{2,sap}$

Quando un'onda elettromagnetica attraversa un materiale la sua energia viene in parte trasmessa, in parte riflessa ed in parte assorbita⁷. L'assorbimento di energia da parte del materiale è proporzionale a $Im\tilde{\epsilon}$ dove $\tilde{\epsilon}$ è la sua costante dielettrica complessa. Lo zaffiro alle frequenze ottiche in uso non assorbe radiazioni elettromagnetiche. Per questo motivo $\tilde{\epsilon}$ si riduce alla sola parte reale

$$\tilde{\epsilon}_{sap} = \epsilon_{sap}$$

La costante dielettrica dell'argento a sua volta è funzione della temperatura (T_{Ag}) e dello spostamento (μ_z). Per spostamento invece si intende variazione

⁶in realtà sono tensori dielettrici; per quanto riguarda l'argento analizzato però, vista la sua isotropia ed omogeneità in quanto policristallino, sono ridotti a scalari. Lo zaffiro non è nè omogeneo nè isotropo assumiamo tuttavia le costanti ottiche come scalari per semplicità di esposizione.

⁷il principio di conservazione di energia, $A+R+Tr=1$

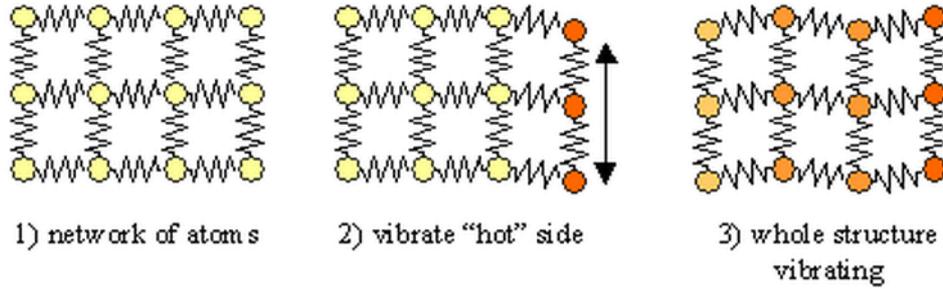


Figure 2.3: Rappresentazione schematica della diffusione di calore attraverso un reticolo di atomi.

di posizione di un volumetto infinitesimale del materiale dalla sua posizione di equilibrio.⁸

$$\tilde{\epsilon}_{Ag} = \tilde{\epsilon}_{Ag}(T_{Ag}, \mu_z)$$

Possiamo infatti schematizzare il film come un reticolo di atomi, i quali, una volta subita una sollecitazione, cominciano ad oscillare. Anche ϵ_{Sap} è in generale dipendente sia dalla T_{Sap} che dalla funzione spostamento. In questo caso abbiamo però considerato nullo l'assorbimento dello zaffiro, ϵ_{Sap} risulta quindi come funzione della sola temperatura.

$$\epsilon_{Sap} = \epsilon_{Sap}(T_{Sap})$$

⁸per una teoria più completa sulla funzione spostamento si veda campo degli spostamenti in Meccanica dei Continui

Osserviamo ora la variazione infinitesima della riflettività $dR(\tilde{\epsilon}_{Ag}, \epsilon_{Sap})$ ⁹ del campione. Essa è espressa tramite l'equazione

$$dR = \frac{\partial R}{\partial \tilde{\epsilon}_{Ag}} d\tilde{\epsilon}_{Ag} + \frac{\partial R}{\partial \epsilon_{Sap}} d\epsilon_{Sap}$$

dove a loro volta $d\tilde{\epsilon}_{Ag}$ e $d\epsilon_{Sap}$ sono espresse da

$$d\tilde{\epsilon}_{Ag} = \frac{\partial \tilde{\epsilon}_{Ag}}{\partial T_{Ag}} dT_{Ag} + \frac{\partial \tilde{\epsilon}_{Ag}}{\partial \mu_z} d\mu_z$$

$$d\epsilon_{Sap} = \frac{\partial \epsilon_{Sap}}{\partial T_{Sap}} dT_{Sap}$$

Abbiamo quindi in generale, seguendo il modello teorico proposto, una dipendenza della Riflettività funzione delle temperature dei film, del displacement e della T_{Sub}

$$R = R(T_{Ag}, T_{Sap}, \mu_z)$$

Siccome sia la temperatura che il displacement variano in funzione del tempo, in questo lavoro di tesi la funzione dR verrà considerata a sua volta funzione del tempo. Lo stesso modello è applicato per la variazione di trasmittività dTr

$$dR = f(t)$$

$$dTr = g(t)$$

Vogliamo ora calcolare analiticamente $\mu(z, t)$. Partendo dalla legge di Hooke

$$\mathbf{F} = -k\mu$$

⁹in questo caso si usa la notazione compatta

$$\frac{\partial R(\tilde{\epsilon}_f, \epsilon_s)}{\partial \tilde{\epsilon}_f} \Big|_{Film} d\tilde{\epsilon}_f = \frac{\partial R(\epsilon_{f1}, \epsilon_{f2}, \epsilon_s)}{\partial \epsilon_{f1}} \Big|_{Film} d\epsilon_{f1} + \frac{\partial R(\epsilon_{f1}, \epsilon_{f2}, \epsilon_s)}{\partial \epsilon_{f2}} \Big|_{Film} d\epsilon_{f2}$$

con $k(\frac{[N]}{[m]})$ costante elastica del materiale e μ spostamento dalla posizione di equilibrio, possiamo ricavare la relazione

$$\overleftrightarrow{\sigma} = \overleftrightarrow{C} \overleftrightarrow{\epsilon} \quad (2.1)$$

con $\overleftrightarrow{\sigma}$ tensore degli sforzi, $\overleftrightarrow{\epsilon}$ tensore della deformazione e \overleftrightarrow{C} costante elastica allo sforzo in forma tensoriale. Per semplificare la risoluzione del problema ci poniamo nel caso monodimensionale con direzione di propagazione dell'onda acustica lungo l'asse z (fig.2.4), consideriamo inoltre il solido come isotropo ed omogeneo. Infine consideriamo rilevante solo la parte longitudinale della funzione spostamento $(\mu_l)^{10}$. Tramite queste assunzioni, a partire dalla relazione 2.1 è possibile calcolare l'onda di propagazione longitudinale diretta lungo l'asse z

$$\rho \frac{d\mu^2}{dt^2} = C_{11} \frac{\partial^2 \mu}{\partial z^2} \quad (2.2)$$

con $\rho(\frac{[Kg]}{[V^3]})$ densità del materiale e C_{11} elemento del tensore delle costanti elastiche¹¹. Possiamo scrivere la funzione spostamento come

$$\mu(z, t) = Z(z)T(t)$$

con

$$T(t) = e^{-i\omega t}$$

$$Z(z) = Z_k e^{ikz} + Z_{-k} e^{-ikz} \quad (2.3)$$

L'Eq. 2.1¹² descrive il comportamento della parte spaziale della funzione spostamento. Ridefiniamo separatamente questa equazione per il film ($Z_1(z)$)

¹⁰ $\mu = \mu_t + \mu_l$, con $\mu_t = 0$ spostamento trasversale e μ_l spostamento longitudinale

¹¹per una trattazione completa si rimanda a [7]

¹²l'eq. 2.1 è ottenuta dalla sovrapposizione di due onde che si propagano in direzioni opposte. Vengono quindi utilizzati due pedici k e $-k$ per distinguere il coefficiente dell'onda che si propaga nel verso positivo (Z_k) e negativo (Z_{-k})

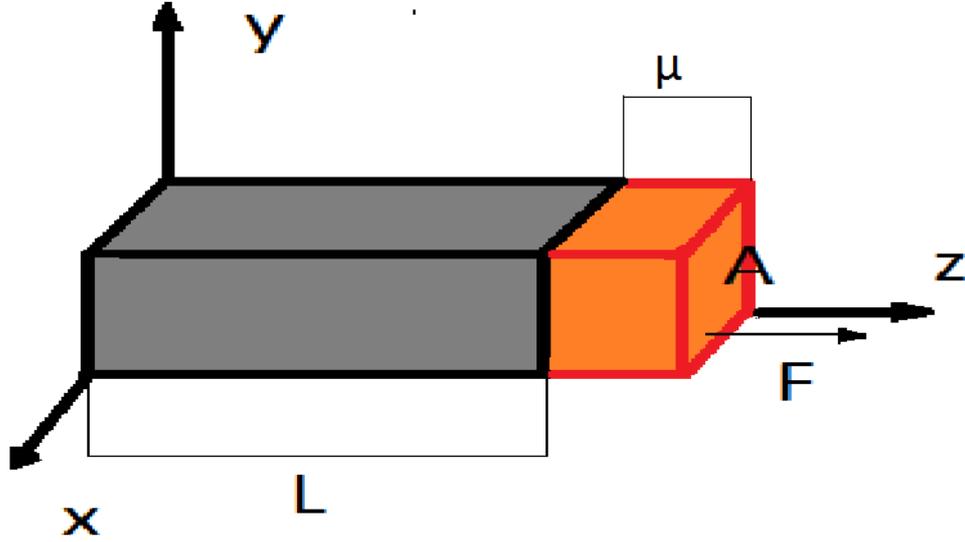


Figure 2.4:

e per il substrato ($Z_1(z)$)¹³

$$Z_1(z) = Z_{k_f} e^{ikz} + Z_{-k_f} e^{-ikz} \quad (2.4)$$

$$Z_2(z) = Z_{k_s} e^{ikz} + Z_{-k_s} e^{-ikz} \quad (2.5)$$

Per risolvere il sistema in modo analitico è necessario porre quattro condizioni al contorno.

$$C_f \frac{\partial \mu}{\partial z} \Big|_{z=h} = 0 \quad (2.6)$$

$$C_s \frac{\partial \mu}{\partial z} \Big|_{z=-l} = 0 \quad (2.7)$$

$$\mu(z = 0^-) = \mu(z = 0^+) \quad (2.8)$$

$$C_f \frac{\partial \mu}{\partial z} \Big|_{z=0^+} = C_s \frac{\partial \mu}{\partial z} \Big|_{z=0^-} \quad (2.9)$$

¹³in questo caso i pedici $\pm k_f$ e $\pm k_s$ vengono utilizzati per distinguere sia la direzione di propagazione dell'onda sia il materiale in cui si propaga; s sta per substrato, f per film.

¹⁴ Le condizioni 2.6 e 2.7 descrivono il comportamento della coppia film-substrato nelle coordinate $z = -l, z = h$; in questi punti non è presente sforzo ed i materiali hanno la possibilità di oscillare liberamente. Le condizioni 2.8 e 2.9 invece impongono la continuità del campo degli spostamenti e degli sforzi di interfaccia film-substrato ($z=0$). Si ottiene in questo modo il sistema

$$\begin{pmatrix} e^{ik_f h} & -e^{-ik_f h} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-ik_s l} & -e^{ik_s l} \\ 1 & 1 & -1 & -1 \\ C_f i k_f & -C_f i k_s & -C_s i k_s & C_s i k_s \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Z_{k_s} \\ Z_{-k_f} \\ Z_{k_s} \\ Z_{-k_s} \end{pmatrix} = 0$$

¹⁵ Si hanno soluzioni non banali per

$$\det A = 0$$

da cui si ricava

$$-2i \cos(k_s l) C_f k_f \sin(k_f h) - 2i \sin(k_s l) C_s k_s \cos(k_f h) = 0$$

Così facendo si è individuata l'equazione analitica di un automodo del sistema. Il sistema presentato è un sistema completo e fornisce solamente soluzioni per gli automodi del sistema. Dato che nel sistema fisico è presente un fenomeno di smorzamento, gli automodi di oscillazione non sono in grado di descrivere la dinamica di rilassamento del sistema. Per questo motivo è necessario togliere un condizione per liberare il sistema. Nel sistema fisico la dimensione del film è molto inferiore rispetto a quella del substrato ($|l| \gg |h|$), per questo motivo consideriamo come infinito lo spessore del

¹⁴ C_f e C_s sono notazioni abbreviate per C_{11f} , C_{11s} ovvero gli elementi del tensore delle costanti elastiche introdotto nella 2.1. Il pedice f si riferisce al film, il pedice s al substrato

¹⁵chiamiamo A la matrice dei coefficienti di questo sistema

substrato. Non consideriamo più la condizione a contorno 2.7 e l'equazione 2.6 diventa della forma

$$Z_2(z) = X_{-k_s} e^{-ikz} \quad (2.10)$$

Consideriamo quindi le eq. 2.5 e 2.10, imponiamo le condizioni a contorno 2.6, 2.8 e 2.9 ed operiamo come in precedenza

$$\begin{pmatrix} e^{ik_f h} & -e^{-ik_f h} & 0 \\ 1 & 1 & -1 \\ C_f i k_f & -C_f i k_s & C_s i k_s \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_{k_s} \\ X_{-k_f} \\ X_{-k_s} \end{pmatrix} = 0$$

16

$$Det B = 0 \implies e^{ik_f h} (-C_s k_s + C_f k_f) - e^{-ik_f h} (C_s k_s + C_f k_f) = 0$$

da cui

$$-C_s v_f \cos\left(\frac{\omega h}{v_f}\right) + i(C_f v_s) \sin\left(\frac{\omega h}{v_f}\right) = 0 \quad (2.11)$$

è stata applicata la sostituzione $\omega = v_s k_s$ e $\omega = v_f k_f$, v_s e v_f sono le velocità di propagazione dell'onda acustica longitudinale nel substrato e nel film. L'eq. 2.12 però non ha soluzioni se ω è reale. Poniamo dunque

$$\omega = \omega_1 + i\omega_2$$

ed otteniamo

$$\cos\left(\frac{\omega_1 h}{v_f}\right) [\alpha_- e^{\frac{-\omega_2 h}{v_f}} - \alpha_+ e^{\frac{\omega_2 h}{v_f}}] + i \sin\left(\frac{\omega_1 h}{v_f}\right) [\alpha_- e^{\frac{-\omega_2 h}{v_f}} + \alpha_+ e^{\frac{\omega_2 h}{v_f}}] = 0 \quad (2.12)$$

con

$$\alpha_- = +\frac{C_f}{v_f} - \frac{C_s}{v_s}, \alpha_+ = +\frac{C_f}{v_f} + \frac{C_s}{v_s}$$

¹⁶chiamiamo B la matrice dei coefficienti di questo sistema

affinchè la 2.13 ammetta soluzione deve verificarsi uno dei seguenti casi:

I

$$\begin{cases} \frac{\omega_1 h}{v_f} = n\pi \\ [\alpha_- e^{-\frac{\omega_2 h}{v_f}} - \alpha_+ e^{\frac{\omega_2 h}{v_f}}] = 0 \end{cases}$$

II

$$\begin{cases} \frac{\omega_1 h}{v_f} = n\pi + \frac{\pi}{2} \\ [\alpha_- e^{-\frac{\omega_2 h}{v_f}} + \alpha_+ e^{\frac{\omega_2 h}{v_f}}] = 0 \end{cases} \quad (2.13)$$

Relativamente al caso I otteniamo

$$\omega_2 = \frac{v_f}{2h} \ln\left(\frac{z_f - z_s}{z_f + z_s}\right)$$

con

$$\alpha_+ = Z_f + Z_s, \alpha_- = Z_f - Z_s$$

, dove Z_f e Z_s sono le impedenze del film. Il caso I è verificato se $z_f > z_s$

$$z_f < z_s$$

per il caso II invece otteniamo

$$\omega_2 = \frac{v_f}{2h} \ln\left(\frac{-z_f + z_s}{z_f + z_s}\right)$$

verificata per

$$z_s < z_f$$

Quello che si può notare in entrambi i casi è che il periodo dell'oscillazione del sistema è proporzionale allo spessore del film.

3. TECNICA SPERIMENTALE

In questa sezione verranno presentate le modalità operative con cui si sono analizzati i campioni. Nella prima sottosezione verrà presentata la tecnica ASOPS ed il suo funzionamento. Nella seconda parte si mostrerà il set-up, quali accorgimenti si sono dovuti prendere e in che condizioni sono stati analizzati i campioni. Nelle ultime due sottosezioni si accennerà alla tecnica con cui i campioni sono stati creati (Deposizione di Cluster in Fascio Supersonico) e verranno presentate le specifiche dei campioni.

3.1 ASOPS

Una delle tecniche sperimentali più diffuse per valutare le dinamiche temporali di rilassamento è il *Pump&Probe*. L'approccio classico a questa tecnica consiste nel dividere un fascio laser ad impulso ultracorto tramite beam splitter in due fasci (uno con la funzione di pump, l'altro di probe). Tramite un opportuno apparato di lenti e specchi essi vengono fatti convergere sul campione in coincidenza spaziale.

Il laser di pump ha lo scopo di portare ad uno stato eccitato il campione, per questo motivo esso è dotato di energia maggiore. Il laser di probe invece ha la funzione di sonda.

Per osservare il comportamento della dinamica di rilassamento del campione (dallo stato eccitato allo stato normale) è necessario sondare il sistema in istanti di tempo differenti. Per fare ciò è necessario creare un ritardo fra il laser di Pump ed il laser di Probe. Inizialmente si creava questo ritardo meccanicamente. Il ritardo temporale fra i fasci era ottenuto facendo percorrere ad uno di questi un percorso differente in lunghezza. In genere uno specchio era posto su di una slitta mobile che poteva essere spostata opportunamente per variare la lunghezza del percorso del fascio. Questa tecnica risulta però sconveniente in quanto dispendiosa in termini di tempo.

L'Asynchronous Optical Sampling System utilizza due laser impulsati, nel nostro caso 1580nm e 780 nm e impulso di 150 fs. Assegnamo al laser di pump e di probe una frequenza di ripetizione, rispettivamente ν_{pump} e ν_{probe} . Esse vengono prese in modo che differiscano di un $\Delta\nu$ molto piccolo.

$$\nu_{pump} = \nu_{probe} + \Delta\nu$$

Il valore di questo $\Delta\nu$ può essere selezionato in un range di 1 Hz-1 KHz. In questa tecnica si sostituisce l'operazione meccanica con il ritardo fra i due segnali, il processo è schematizzato nella figura 3.1. Il ritardo fra i due fasci può essere scritto come:

$$\Delta t = \left| \frac{1}{\nu_{pump}} - \frac{1}{\nu_{probe}} \right| = \frac{\Delta\nu}{\nu_{pump} \cdot \nu_{probe}}$$

Dato $\Delta\nu \ll \nu$ è possibile ottenere il grado di risoluzione temporale del

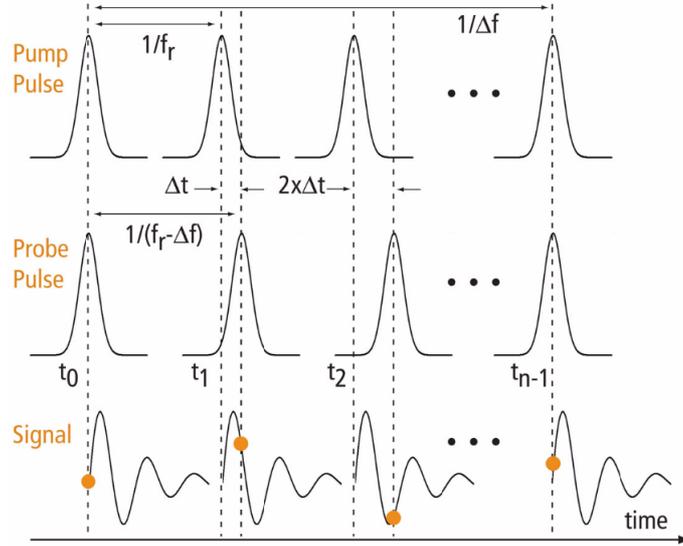


Figure 3.1: Principio operativo del sistema ASOPS [6]. In questo caso f_r sta per ν_{pump} . Δf è invece la differenza del rateo di ripetizione fra ν_{pump} e ν_{probe}

sistema espandendo in serie la (3.1). Si ottiene

$$\Delta t \approx \frac{\Delta \nu}{\nu_{pump}^2}$$

Dopo ogni periodo di oscillazione il laser di pump e di probe accumulano un mutuo ritardo, esso permette ai due segnali di sovrapporsi dopo un tempo t_0 . Per valutare t_0 procediamo nel modo seguente:

- chiamiamo n il numero di cicli che il sistema compie per tornare alla sincronia dei segnali
- osserviamo che

$$n\Delta t = T_{pump} = \frac{1}{\nu_{pump}}$$

- uniamo la (3.3) alla (3.4)

$$n \frac{\Delta \nu}{(\nu_{pump})^2} = \frac{1}{\nu_{pump}}$$

- Per la definizione di n , possiamo definire t_0 come

$$t_0 = nT_{pump}$$

uniamo questa equazione alla (3.5)

- infine si ottiene

$$t_0 = \frac{1}{\Delta\nu_{pump}}$$

Il sistema ASOPS è un sistema efficace in quanto riduce i tempi di esposizione del materiale, l'esperimento quindi è meno soggetto ad instabilità.

3.2 Set-up sperimentale

3.2.1 Banco ottico

Il sistema consiste in due laser impulsati di 1560 nm e 780 nm (rispettivamente di Pump e di Probe).

Il funzionamento del sistema vede la sua rappresentazione schematica nella figura (3.2). Il laser di pump (1560 nm, impulso 150fs) viene fatto passare in un polarizzatore accoppiato ad un lambda mezz. Questo passaggio è fondamentale in quanto l'operazione ci permette di modificare l'intensità del fascio. Il laser di pump viene successivamente focalizzato tramite una lente convergente sul campione.

Il fascio di probe, uscito dalla cavità, passa a sua volta in una coppia polarizzatore-lambda mezz. Esso viene poi diviso da un beam splitter in due fasci al 50% dell'intensità iniziale.

In questo modo si creano due fasci identici di 780 nm; uno di questi incide sul campione con la effettiva funzione di "probe", l'altro viene utilizzato come

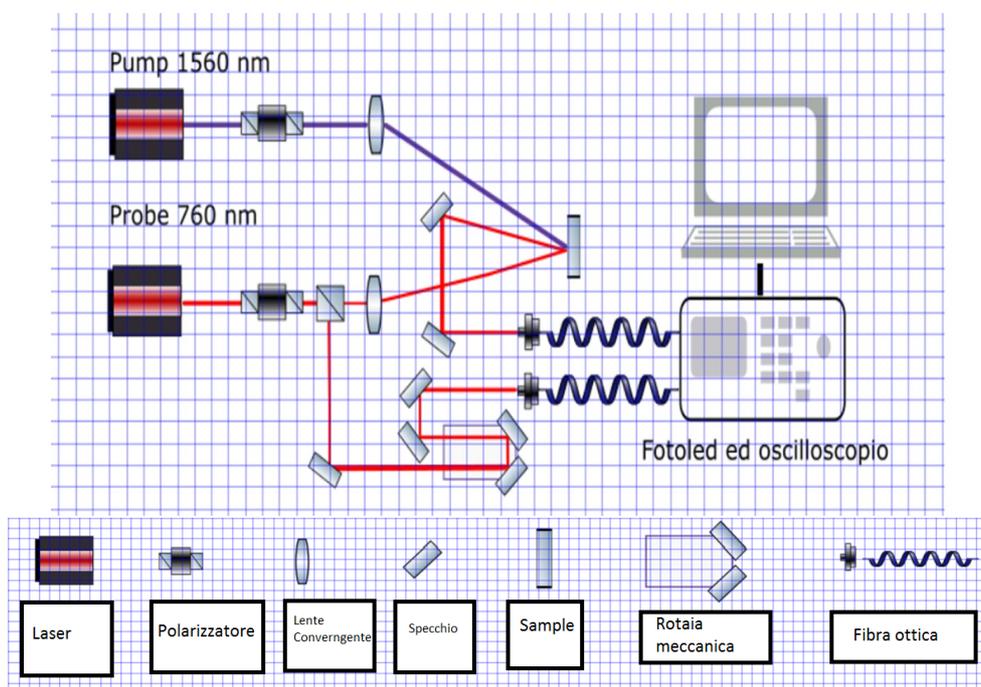


Figure 3.2: Modello schematico del banco ottico utilizzato con relativa legenda.

riferimento. Il primo di questi fasci di probe viene focalizzato tramite una lente convergente sul campione. Il laser di pump prima in riflessione poi in trasmissione, viene condotto con uno specchio parabolico in una fibra ottica collegata ad un fotodetector differenziale.

Il secondo fascio viene indirizzato direttamente in un'altra fibra ottica collegata al fotodiodo differenziale. Per ridurre lo sfasamento fra i due fasci di probe dovuti alla differenza di cammino, sono stati installati due specchi su di una slitta meccanica lungo il percorso del fascio di probe di riferimento. Spostando la posizione di questi specchi è possibile cambiare meccanicamente la lunghezza del percorso compiuto dal laser.

Il fotodetector è collegato ad un oscilloscopio ed ad un software di acquisizione dati.

Un microscopio ottico è stato utilizzato solo in fase preparativa dell'esperimento

per assicurarsi che il fascio di pump e di probe fossero focalizzati.

3.2.2 Procedura operativa

Per assicurarsi le migliori condizioni operative è stato necessario prendere alcuni accorgimenti. Per il corretto funzionamento del sistema ASOPS è fondamentale che il laser di Pump e quello di Probe incidano nello stesso punto del campione da analizzare. Per facilitare questa operazione il laser di probe viene focalizzato in modo che abbia sezione trasversale inferiore rispetto a quello di pump. In questo modo si ha la certezza che il fascio di probe sia nel punto di incidenza all'interno del fascio di pump.

Per calcolare la sezione trasversale si è utilizzato il metodo *knife edge*¹. Esso consiste in una tecnica veloce, poco costosa ed accurata per determinare la sezione trasversale di un fascio laser.

Questo metodo richiede una lamina sottile non trasparente, un supporto smovibile ed un rivelatore di intensità luminosa lungo la direzione di propagazione del fascio.

La lamina è traslata perpendicolarmente alla direzione di propagazione del laser e si può osservare la variazione dell'intensità rilevata dal sensore in funzione dello spostamento della lamina. In questo modo è possibile trovare la larghezza della sezione del fascio. Sono stati rilevati in questo modo i valori per il laser di pump e di probe rispettivamente di 50 e 25 μm .

Per focalizzare i fasci di pump e probe nello stesso punto sul campione i due fasci si è utilizzato un microscopio ottico del tipo (tipo microscopio).

¹per i dettagli su questa operazione si rimanda a [1]

Tramite un monitor si è osservata la coincidenza spaziale del due laser sul campione. Spostandosi sulle varie superfici per campione, si è poi attivato il sistema ASOPS e sono stati raccolti dati sia in trasmissione sia in riflessione in funzione del tempo². Per migliorare le raccolte dati si sono svolte le seguenti operazioni:

- si sono variate le intensità dei laser sia di pump che di probe per migliorare la precisione della misura
- dato che l'operazione di messa a fuoco è complicata e delicata, è stato variato anche la messa a fuoco sul campione ed il punto di incidenza del pump ed il probe per trovare la configurazione con migliore resa
- si è smorzato il rumore di fondo manualmente tramite la slitta meccanica posta sul banco ottico. Questa operazione è stata eseguita per ridurre la differenza i due laser di probe divisi dal *beam splitter* .

3.3 Tecnica SCBD, evaporazione termica

La Deposizione di Cluster in Fascio Supersonico è una tecnica che permette di generare un fascio di nanoparticelle a partire da un agglomerato di materiale iniziale. L'apparato sperimentale è rappresentato dalla figura (3.3)[5]. Esso

²sperimentalmente il campione subisce con un rateo $\nu_{pump} = 100MHz$ un impulso di energia; a causa di questa energia esso si riscalda e successivamente dissipa il calore con l'ambiente circostante. Questo tempo di raffreddamento si attesta nell'ordine di centinaia di *ns*. Visto che il tempo fra un impulso ed il successivo è di $10ns$, il campione non ha il tempo necessario per tornare alla temperatura di equilibrio iniziale. Questo elemento è trascurabile in quanto il campione una volta avviata l'analisi si trova ad uno stato di energia maggiore ma sempre di equilibrio.

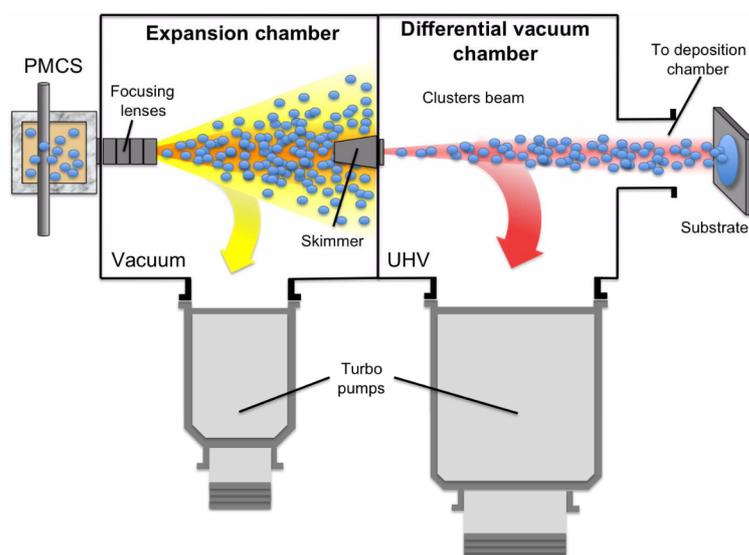


Figure 3.3: schema dell'apparato per la Supersonic cluster beam deposition

si può dividere in tre blocchi principali:

- microplasma cluster source (PMCS), dove i clusters vengono creati
- camera di espansione, dove il fascio viene focalizzato
- camera a vuoto differenziale che connette l'apparato SCBD ad una camera UHV dove è situato il substrato.

La PMCS consiste di un corpo ceramico all'interno del quale è scavata una fessura cilindrica. Questa cavità contiene un cilindro ad alta purezza (99,999%) del materiale da vaporizzare (Ag nel nostro caso). Il funzionamento base del PMCS è mostrato nella figura (3.4). Un gas inerte (He nel nostro caso) viene immesso per qualche centinaia di μs nella cavità attraverso una valvola ad impulso. Il gas viene a questo punto ionizzato da una scarica elettrica ad alta intensità (1000 A) ed alto voltaggio (1000 V). Questa scarica viene

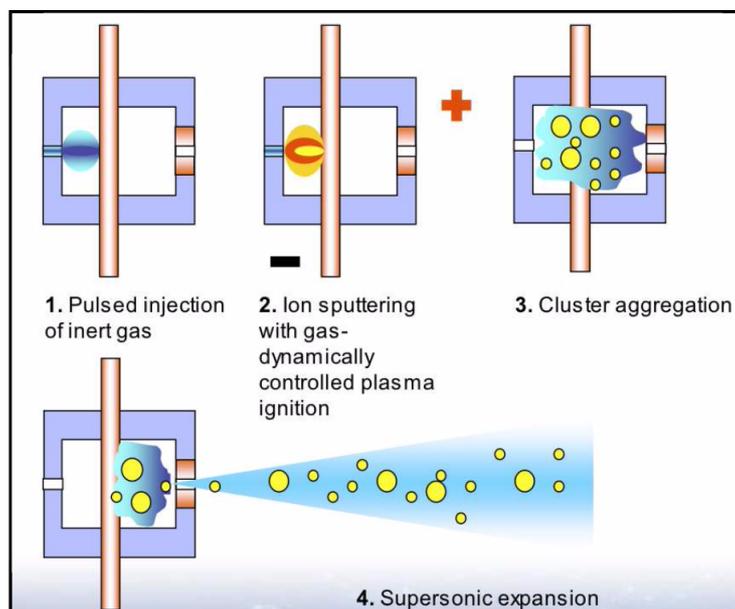


Figure 3.4: Schema del funzionamento di un apparato PMCS

generata fra il cilindro di Ag e il corpo ceramico (rispettivamente fungono da catodo ed anodo). La scarica dura una decina di ms, essa ha unicamente il compito di ionizzare il gas nella camera, il quale funge da agente di erosione tramite ablazione del cilindro di Ag. Gli atomi di Ag evaporati tramite il gas ionizzato vengono condensati in cluster. Questo aggregato di cluster ed elio viene espanso dal corpo della sorgente tramite un ugello e focalizzato in un fascio supersonico che si muove verso la camera di deposizione. Il fascio entra all'interno di una camera di pompaggio differenziale tramite uno skimmer dal diametro di 2mm. La camera di espansione è collegata alla camera di deposizione tramite una valvola che, quando aperta, consente al fascio di depositarsi sul substrato.

3.4 Campioni: (SCBD, evaporazione termica)

Tutti i campioni analizzati sono stati creati dalla tecnica SCBD descritta nel capitolo precedente. L'analisi è stata eseguita su due campioni dello stesso materiale ma di spessore diverso.

- Il primo campione consiste in un substrato di zaffiro monocristallino (Al_2O_3 , spessore 0,5 mm) su cui sono posati quattro differenti film di argento (Ag, spessore 15-35-50-75 nm) (vedi fig.3.5) Tutti i film sono depositati sulla stessa faccia del substrato in quattro triangoli in modo da riempire tutta la superficie. Per analizzare i singoli film si è fatto coincidere il laser di pump a quello di probe su ogni singolo triangolo per osservare le risposte dovute alla variazione di spessore. Il parametro di Roughness è attestato attorno a 2.5 nm su ogni spessore.
- il secondo campione è un substrato di zaffiro monocristallino (Al_2O_3 , spessore 0,5 mm) su cui è posto un unico film dello spessore di 20 nm. (serve immagine)

L'utilizzo dello zaffiro è giustificato dalle sue proprietà. Con un indice di rifrazione $n = 1.77@780nm$ e $n = 1.74@1560nm$, con una conducibilità $k = 20W/m.K@300K$ è possibile considerare isoterma il substrato di materiale durante lo scambio di calore ed energia con il film.

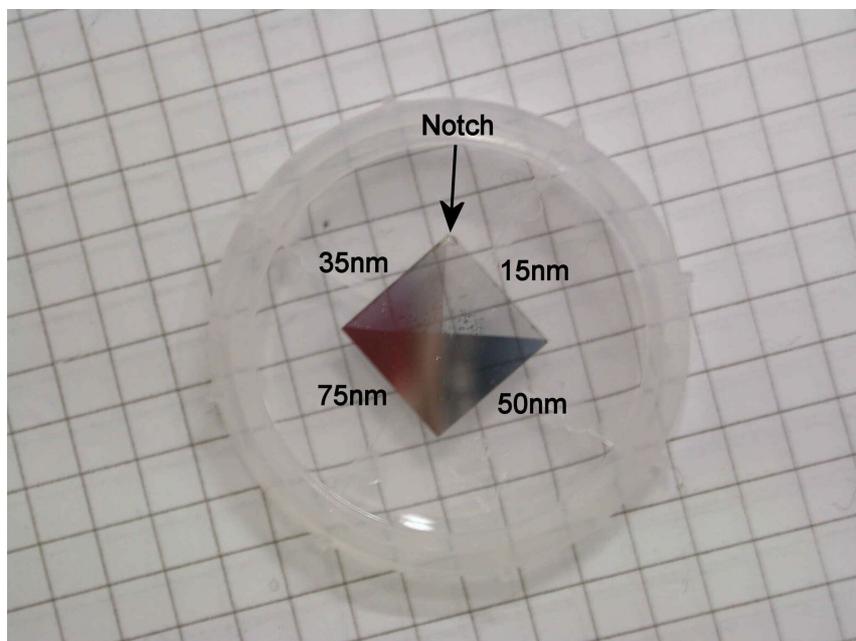


Figure 3.5: Film Ag con substrato Zaffiro, spessori di 15-35-50-75 nm

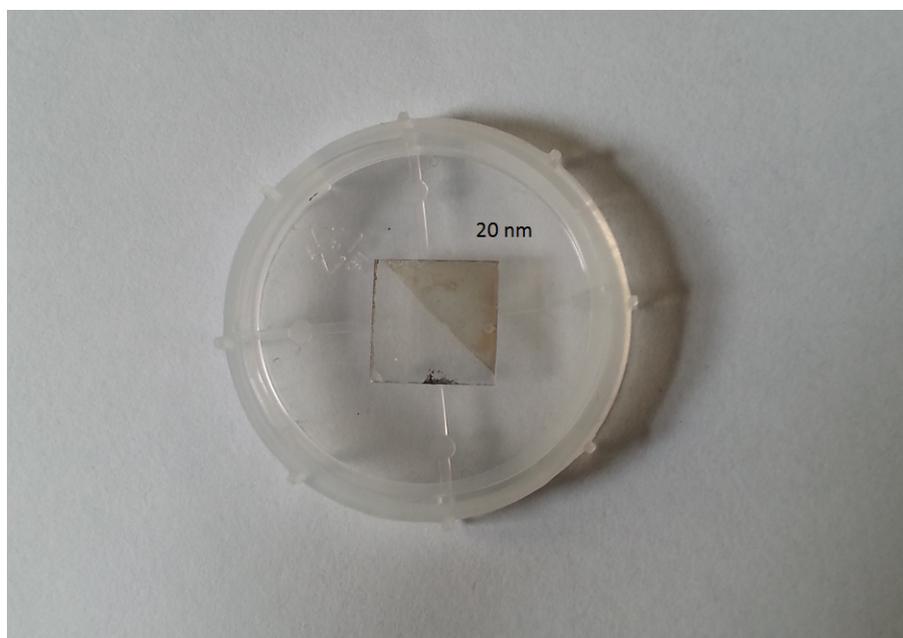


Figure 3.6: Film Ag con substrato Zaffiro, spessore 20 nm

4. MISURE OPTO-ACUSTICHE RISOLTE IN TEMPO

4.1 Misure Campioni SCBD

In questa sezione vengono mostrati i dati ottenuti con la tecnica *pump & probe* applicata ad i campioni presentati in sez. 3.4 . Inizialmente è presentata la totalità delle misure effettuate generale per poi soffermarsi singolarmente sulle singole dinamiche, prima quella meccanica e poi quella termica.

4.1.1 Presentazione misure

Le caratteristiche dei campioni presi in esame sono presentate nella sezione 3.4. Con le condizioni sperimentali presentate nel cap. 3 si è verificata la variazione di riflettività (ΔR) e di trasmittività (ΔTr) dei singoli film in funzione del tempo. Siccome non c'è interesse al valore assoluto della riflettività (R) e della trasmittività (Tr) ma solo del comportamento in funzione del tempo del sistema, le variazioni di queste due grandezze sono state normalizzate rispetto al valore di R e Tr rilevato dal fascio di probe di fondo¹.

¹Nello specifico parleremo di $\frac{\Delta R}{R}$ e $\frac{\Delta Tr}{Tr}$.

L'obiettivo di questo lavoro di tesi è di analizzare l'analisi di rilassamento e di termalizzazione film-substrato il cui modello teorico è stato presentato nella sezione 2.1. In figura 4.1 e 4.2 sono riportati i risultati sperimentali dei valori di $\frac{\Delta R}{R}$ e $\frac{\Delta Tr}{T}$ in funzione del tempo. In sezione 2.1 sono state presentate tre dinamiche distinte di termalizzazione del sistema. La prima dinamica è di interazione fotone-elettrone, essa ha una durata temporale dell'ordine dei fs . Il sistema ASOPS nelle condizioni sperimentali nelle quali si è operato² ha una definizione di $1ps$, per questo motivo non è possibile visualizzare questa dinamica. La seconda dinamica e la terza dinamica (rispettivamente interazione fonone-fonone nell'argento e interazione fonone-fonone fra la superficie di contatto argento/zaffiro) complessivamente si estendono da centinaria di ps a decine di ns . Esse sono quindi visualizzabili nei dati presentati. Non è stato possibile eseguire un'analisi in trasmissione del film da $75nm$ in quanto il segnale era troppo smorzato dallo spessore del film e risultava indistinguibile dal rumore di fondo.

4.1.2 Risposta meccanica

In questa sezione analizzeremo nello specifico i dati riferiti alla dinamica meccanica di rilassamento³ descritta nella sezione 2.2. Nei dati raccolti tramite *Pump&Probe* sono contenute informazioni sia sulla dinamica meccanica sia sulla dinamica termica. Per poter procedere ad un'analisi delle sole oscillazioni è necessario dividere il comportamento le due dinamiche. Sperimentalmente la variazione di riflettività (ΔR) e trasmissività (ΔTr) dipendono in modulo principalmente dalla variazione di temperatura. Come si può

² $\Delta\nu = 10KHz$

³le dinamiche meccaniche in film di questo tipo si estende da decine di ps a ns .

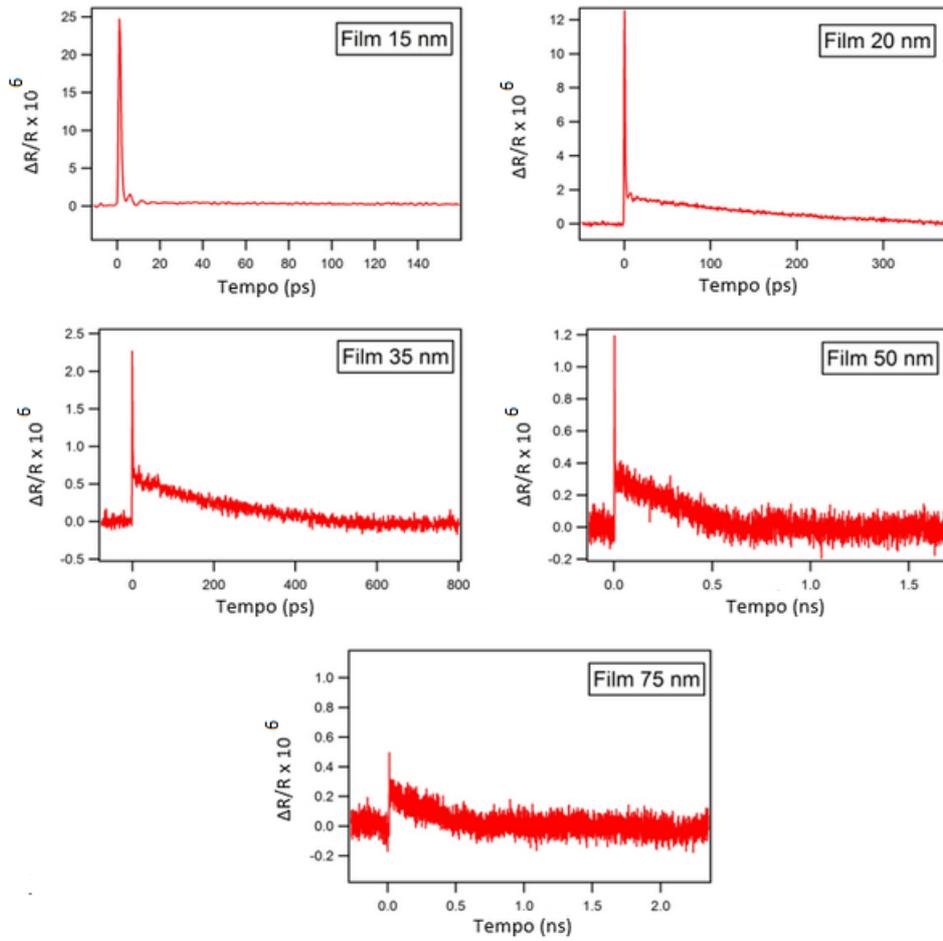


Figure 4.1: Variazione di riflettività relativa in funzione del tempo. Lo spessore dei singoli film è specificato nella legenda del grafico. Il detuning è $\Delta\nu = 10kHz$. La risoluzione temporale è attestata ad $1ps$.

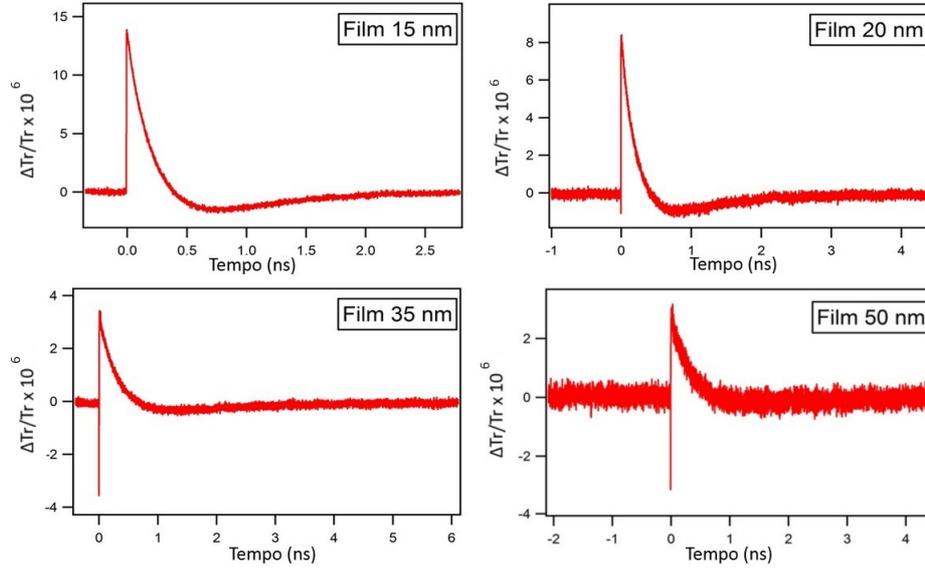


Figure 4.2: Variazione di trasmissività relativa in funzione del tempo. Lo spessore dei singoli film è specificato nella legenda del grafico. Il detuning è $\Delta\nu = 10kHz$. La risoluzione temporale è attestata ad $1ps$.

osservare in fig. 4.3 è la dinamica termica che regola l'andamento della distribuzione sperimentale delle misure⁴. Si sono interpolati inizialmente i dati con una funzione del tipo

$$f(t) = A \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + B \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + C \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right) \quad (4.1)$$

La 4.1 è una somma di generici esponenziali. Sebbene in generale il comportamento di rilassamento termico non ha un andamento esponenziale decrescente, grazie alle approssimazioni proposte in sezione 2.1 è stato possibile descrivere la variazione in funzione del tempo della temperatura del film

⁴In figura 4.3 è presentato soltanto l'ingrandimento della curva sperimentale ottenuta in trasmissione per il film di 35nm come esempio. Simile comportamento è stato riscontrato sia in trasmissione che in riflessione per i rimanenti film.

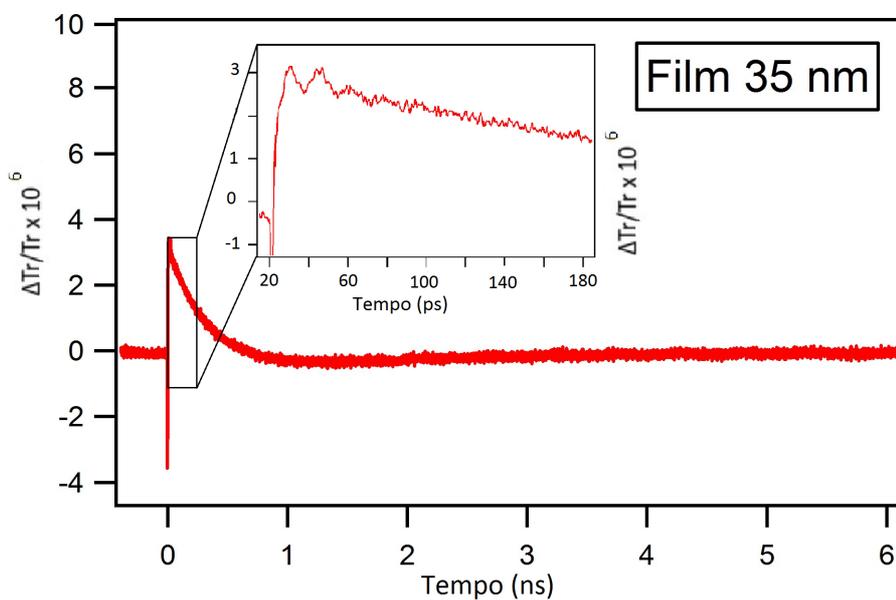


Figure 4.3: Variazione di trasmissione relativa in funzione del tempo. E' presentato l'ingrandimento della curva sperimentale per apprezzare il segnale oscillante.

tramite l'equazione

$$T(t) = T_{sub} + T_0 \exp\left(-\frac{(t - t_0)}{\tau_{th}}\right) \quad (4.2)$$

Siccome è interesse di questo procedimento distinguere la caduta esponenziale della temperatura dalle oscillazioni periodiche del film la somma di esponenziali è utilizzata, sebbene non conforme con la teoria, per diminuire l'errore del *curve fitting*. Successivamente si è sottratto ad i dati trovati il valore del fit.

Si sono quindi individuati i valori di $\frac{\Delta R}{R}$ e $\frac{\Delta T}{T}$ dovute alla dinamica meccanica. Come funzione di *curve fitting* dei residui ottenuti tramite questa operazione è stata utilizzata la 4.2

$$f(t) = \exp\left(-\frac{t - t_0}{\tau_1}\right)(\sin(\omega_1 t - \phi_1) + \exp\left(-\frac{t - t_0}{\tau_2}\right) + \sin(\omega_2 t - \phi_2)) \quad (4.3)$$

Questa funzione che tiene in considerazione due oscillazioni non legate tra loro è la funzione che analiticamente approssima meglio di dati sperimentali.

⁵ Si ritiene di conseguenza che la dinamica oscillatoria sia dovuta alla sovrapposizione di prima e di seconda armonica ⁶ ⁷. Vengono di seguito presentati i risultati dei fits: Il risultato del fitting è lontano dall'essere ottimale. Il valore in modulo dei dati rilevati, prima dell'operazione di normalizzazione, aveva un ordine di grandezza dell'ordine di 10^{-6} . I dati relativi alla sola oscillazione sono dell'ordine di $10^{-6} - 10^{-7}$.

⁵Nelle misure prese in riflessione per i film di 50-75 nm e per le misure prese in trasmissione sul film da 75 nm non è stato possibile riconoscere un chiaro moto oscillatorio riconducibile alla dinamica meccanica di rilassamento del sistema.

⁶Ci riferiamo al periodo dovuto alle oscillazioni di prima e di seconda armonica rispettivamente con T_1 e T_2

⁷ $\omega_1 = \frac{2\pi}{T_1}$, $\omega_2 = \frac{2\pi}{T_2}$

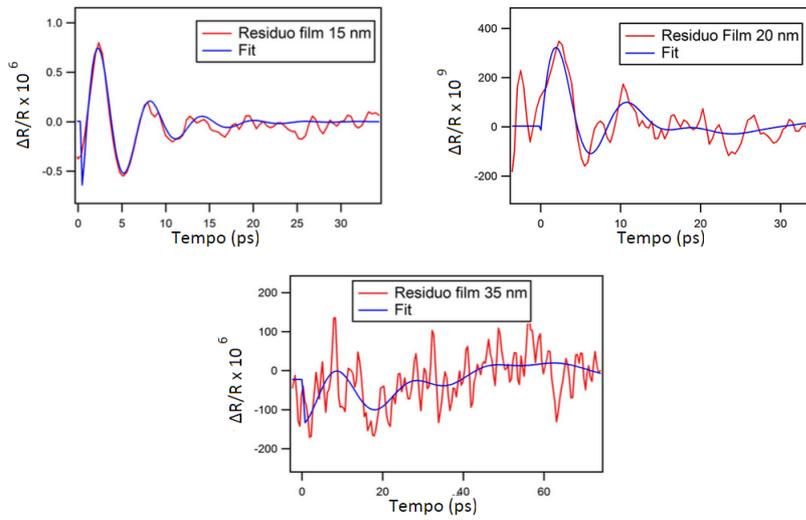


Figure 4.4: Residuo della variazione di riflettività per i film di 15, 20 e 35 nm (curva rossa) e risultato dell'operazione di fitting con due oscillatori smorzati da un esponenziale (curva blu)

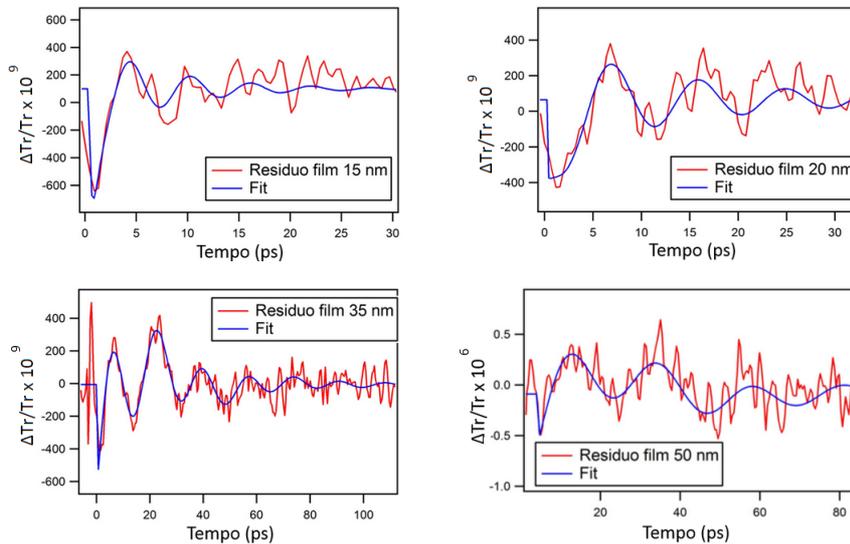


Figure 4.5: Residuo della variazione di trasmittività per i film di 15,20,35 e 50 nm (curva rossa) e risultato dell'operazione di fitting con due oscillatori smorzati da un esponenziale (curva blu)

Table 4.1: T_1 , T_2 in trasmissione

Film	T_1	Err. T_1	T_2	Err. T_2
15 nm	$2,09 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-11} s$	$5,88 \cdot 10^{-12} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-14} s$
20 nm	$2,8 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 3 \cdot 10^{-11} s$	$9,39 \cdot 10^{-12} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-14} s$
35 nm	$5,2 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 3 \cdot 10^{-11} s$	$1,70 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-14} s$
50 nm	$6,3 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-11} s$	$2,3 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-14} s$

Table 4.2: T_1 , T_2 in riflessione

Film	T_1	Err. T_1	T_2	Err. T_2
15 nm	$2,1 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 7 \cdot 10^{-12} s$	$5,9 \cdot 10^{-12} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-13} s$
20 nm	$2,7 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 4 \cdot 10^{-12} s$	$9,1 \cdot 10^{-12} s$	$\pm 4 \cdot 10^{-13} s$
35 nm	$5,5 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 4 \cdot 10^{-12} s$	$1,8 \cdot 10^{-11} s$	$\pm 1 \cdot 10^{-12} s$

In tutte le misure inoltre l'oscillazione viene smorzata in non più di 90ps.

Questi fattori rendono l'analisi della dinamica meccanica non ottimale.

Nelle tabelle 4.1 e 4.2 sono presentati i valori dei parametri del fit ottenuti sia in trasmissione che in riflessione:

Nella sezione 2.2 abbiamo analizzato le soluzioni della funzione di Navier. Nel sistema fisico film-substrato oggetto di questa tesi abbiamo che $z_s < z_f$, di conseguenza la soluzione è del tipo

$$\begin{cases} \frac{\omega_1 h}{v_f} = n\pi + \frac{\pi}{2} \\ [\alpha_- e^{-\frac{\omega_2 h}{v_f}} + \alpha_+ e^{\frac{\omega_2 h}{v_f}}] = 0 \end{cases} \quad (4.4)$$

Table 4.3: T_1 e T_2 teorico

Film	V_f	T_1	T_2
15 nm	$3600ms^{-1}$	$1,66.10^{-11}s$	$5,5.10^{-12}s$
20 nm	$3600ms^{-1}$	$2,22.10^{-11}s$	$7,04.10^{-12}s$
35 nm	$3600ms^{-1}$	$3,88.10^{-11}s$	$1,29.10^{-11}s$
50 nm	$3600ms^{-1}$	$5,55.10^{-11}s$	$1,85.10^{-11}s$

Tramite la relazione generica⁸

$$\frac{\omega_n h}{v_f} = n\pi + \frac{\pi}{2} \quad (4.5)$$

possiamo legare il periodo di oscillazione alla velocità di propagazione dell'onda acustica nel film.

La velocità di propagazione di un onda acustica nell'argento spesso è attestata a $3600ms^{-1}$. Utilizzando questo valore è possibile calcolare i valori che ci si aspetta di $T_1 = T_{n=0}$ e $T_2 = T_{n=1}$ in funzione dello spessore del film. I risultati sono presentati in tabella 4.3. In figura 4.6 è possibile osservare il confronto fra i dati ottenuti sperimentalmente e i periodi di oscillazione che ci si aspetta dalla modellizzazione proposta in sez. 2.2. Le curve verde e nera rappresentano l'andamento teorico⁹ rispettivamente per la prima ($n=0$) e seconda armonica ($n=1$). La curva rossa rappresenta il fit lineare dei dati sperimentali per la prima armonica, gli errori sulle misure in questo caso non sono stati presentati in quanto troppo elevati. Le bande di confidenza sul fit (linee rosse discontinue) delimitano 1σ livello di confidenza. La curva blu invece rappresenta il fit lineare per la seconda armonica, gli errori sulle mis-

⁸il pedice n nel termine ω_n è inserito per distinguere le pulsazioni dovute agli automodi di oscillazione

⁹considerando $v_f = 3600ms^{-1}$ sia in trasmissione che in riflessione

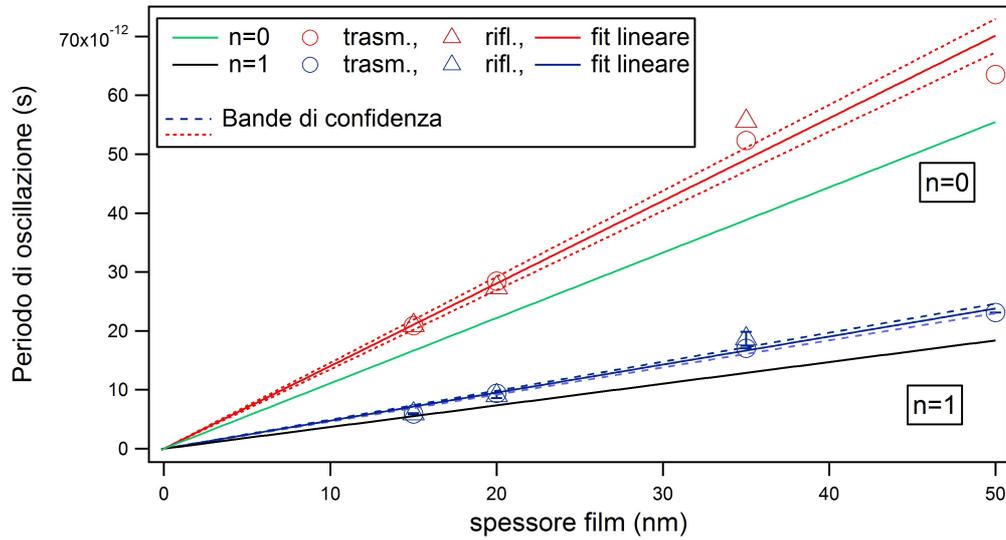


Figure 4.6: confronto oscillazioni di prima e di seconda armonica dei valori T_1 , T_2 sperimentali e teorici

ure sono presentati e sono molto ridotti. Come si può osservare dalla figura per entrambe le armoniche abbiamo una velocità di propagazione maggiore di quella attestata a 3600ms^{-1} , si evince quindi che in sottili strati di argento policristallino un'onda acustica longitudinale si trasmette più velocemente rispetto che in argento spesso. Come detto in precedenza non sono stati presentati in figura 4.6 gli errori relativi a T_1 sia in riflessione sia in trasmissione in quanto presentavano valori troppo elevati.

In tabella 4.4 e 4.5 sono presentati i tempi caratteristici di smorzamento calcolati sperimentalmente tramite l'equazione 4.3. Come si può osservare il periodo dell'oscillazione meccanica sia in riflessione che in trasmissione ha lunghezza pari o inferiore al τ caratteristico del sistema. Ciò vuol dire che fisicamente l'energia nel film si dissipa così velocemente che l'oscillazione

Table 4.4: T_{Tr} e tempo caratteristico τ_{Tr}

Film	τ_{Tr_1}	T_{Tr_1}
15 nm	$7,6 \cdot 10^{-12} \pm 4 \cdot 10^{-12}$	$2,09 \cdot 10^{-11} \pm 1,1 \cdot 10^{-11}$
20 nm	$1,52 \cdot 10^{-11} \pm 7 \cdot 10^{-12}$	$2,8 \cdot 10^{-11} \pm 3,1 \cdot 10^{-11}$
35 nm	$2,9 \cdot 10^{-11} \pm 2,8 \cdot 10^{-12}$	$5,2 \cdot 10^{-11} \pm 3,1 \cdot 10^{-11}$
50 nm	$4,5 \cdot 10^{-11} \pm 1 \cdot 10^{-11}$	$.10^{-11} \pm 1,1 \cdot 10^{-11}$

Table 4.5: T_R e tempo caratteristico τ_R

Film	τ_{R_1}	T_{R_1}
15 nm	$1,0 \cdot 10^{-11} \pm 8,9 \cdot 10^{-12}$	$2,1 \cdot 10^{-11} \text{s} \pm 7 \cdot 10^{-12}$
20 nm	$3,8 \cdot 10^{-11} \pm 7,0 \cdot 10^{-11}$	$2,7 \cdot 10^{-11} \text{s} \pm 4 \cdot 10^{-12}$
35 nm	$6,9 \cdot 10^{-9} \pm 7,0 \cdot 10^{-7}$	$5,5 \cdot 10^{-11} \text{s} \pm 4 \cdot 10^{-12}$

completa secondo il primo modo ($n=0$) non ha modo di verificarsi. Questo fatto può giustificare un così alto errore sperimentale sulle misure T_{R_1} e T_{Tr_1} .

4.1.3 Risposta termica

Si analizzano ora i dati dovuti alla dinamica termica nel sistema. Per lo scopo della nostra analisi non siamo interessati nè al modulo del valore di trasmittività e riflettività assoluto del sistema sollecitato nè al modulo delle variazioni ΔR , ΔT .

Siamo invece interessati alla dipendenza dal tempo terza dinamica presentata in sezione 2.1: quella di termalizzazione dell'argento con il substrato di zaffiro.

Per questo motivo sono stati trattati i dati rilevati nel modo seguente:

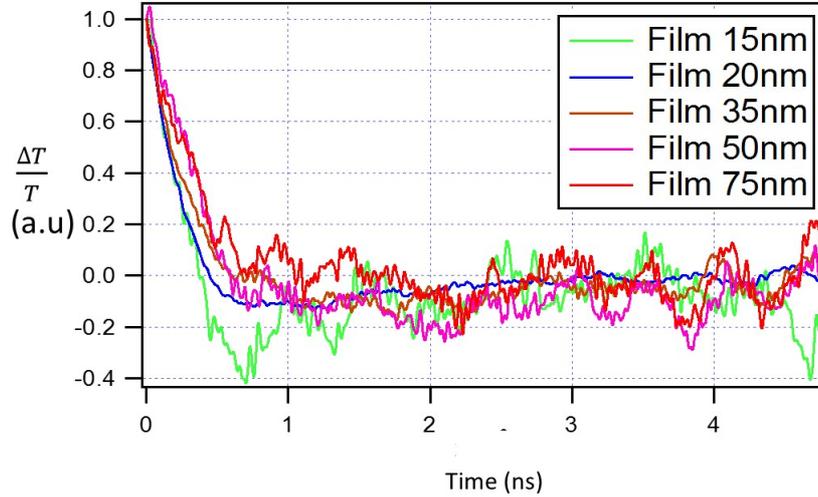


Figure 4.7: curva caratteristica dell'andamento $\frac{\Delta R}{R}$ in funzione del tempo. Gli spessori dei film considerati sono presentati nella legenda

- siccome la dinamica di cui siamo interessati mi manifesta in una fascia temporale che va dalle decine di ns ai ps abbiamo considerato i dati sperimentali rilevati dopo $10ps$ dall'inizio del picco impulsivo¹⁰.
- poniamo $t_0 = 10ns$ come il tempo iniziale.
- abbiamo normalizzato le curve trovate rispetto a $\frac{\Delta R}{R}$ e $\frac{\Delta T}{T}$ rilevati al tempo $t_0 = 10ns$

Vengono di seguito presentati gli andamenti ottenuti.

Si è cercato di analizzare questi dati tramite il modello teorico descritto nella sezione 2.1. Le dinamiche prese in esame seguendo il modello teorico proposto, se analizzate singolarmente, non possono essere rappresentate analiticamente da una funzione esponenziale.

¹⁰come era stato fatto in precedenza per la dinamica meccanica

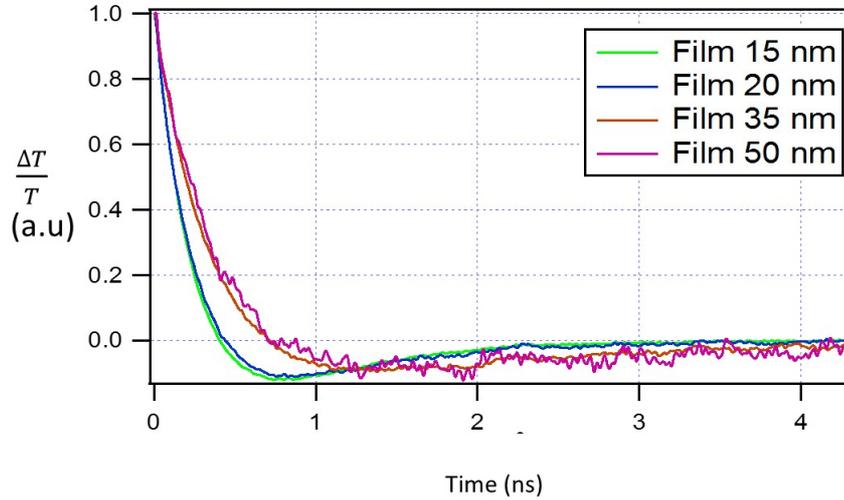


Figure 4.8: curva caratteristica dell'andamento $\frac{\Delta T}{T}$ in funzione del tempo. Gli spessori dei film considerati sono presentati nella legenda

Invece l'andamento generale di una funzione monotona decrescente può essere ben approssimato da una somma di esponenziali. Per questo motivo si è pensato di utilizzare come funzione di “fitting” una funzione nella forma

$$f(t) = A \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + B \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + C \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right)$$

Questa affermazione però non è valida nel nostro caso, se infatti osserviamo i dati sperimentali in fig. 4.8 4.9 ci accorgiamo che le curve sono monotone decrescenti solo nei primi 0,5 ns.

Il modello teorico proposto in sez. 2.1 non riesce a descrivere i dati sperimentali ottenuti dall'analisi dei campioni. Avevamo infatti posto tre condizioni al sistema (vedi cap.2):

- consideriamo i film di argento isotermi
- consideriamo l'assorbimento del sistema-substrato zaffiro come costante

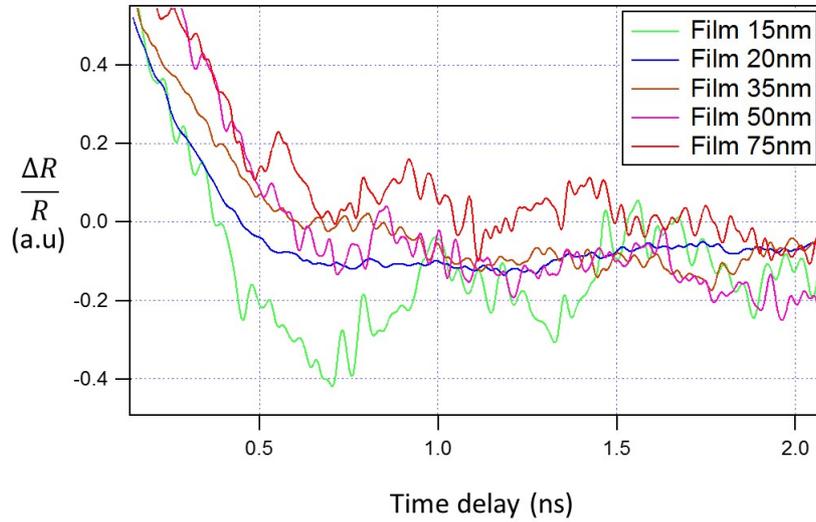


Figure 4.9: dettaglio andamento in riflessione della curva, si può notare come la variazione di riflettività normalizzata vada in negativo

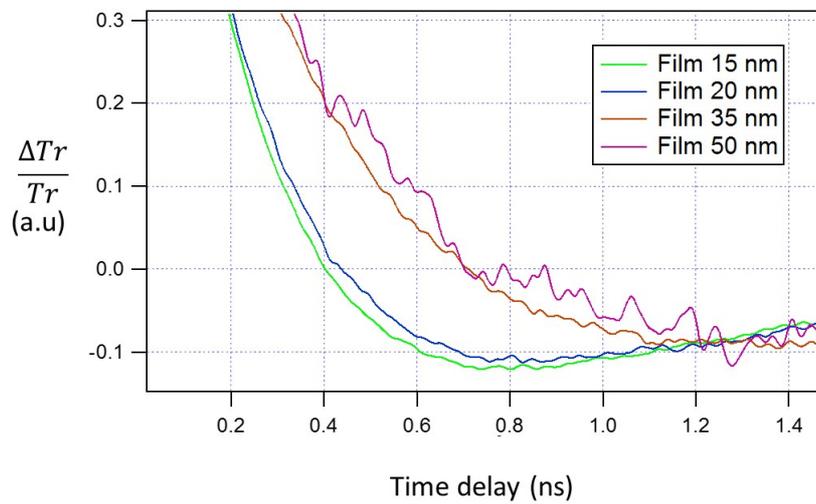


Figure 4.10: dettaglio andamento in riflessione della curva, si può notare come la variazione di trasmittività normalizzata vada in negativo

- lo zaffiro gioca il ruolo di bagno termico del sistema

Dalla conservazione di energia $1 = A + T + R$ ¹¹ nella condizione in cui A viene considerato costante, si ricava

$$dR + dT = 0$$

Se osserviamo le fig. 4.9 e 4.10 invece, possiamo notare come sia in riflessione sia in trasmissione la curva sia negativa in un range variabile compreso fra 0,4 e 1,5 ns. Ciò implica un aumento relativo dell'assorbimento del materiale.

Chiamiamo $\frac{\Delta A}{A}$ questo assorbimento relativo normalizzato rispetto all'assorbimento assoluto del materiale (A). Dall fig. 4.16 e 4.17 si può notare inoltre come

$$\frac{\Delta A}{A} \propto \frac{1}{h}$$

Aumentando inoltre lo spessore del film, questa variazione di $\frac{\Delta A}{A}$ è traslata in avanti nel tempo. Vogliamo quindi calcolare il valore della potenza media per unità di volume¹² assorbita dal film in funzione dello spessore. La potenza media assorbita è la potenza media del laser di pump meno quella del laser riflesso e trasmesso. Si ricava quindi

$$\frac{\langle P_{Abs} \rangle}{V} = \langle P_i \rangle \frac{A}{\pi r_{pump}^2 h} \quad (4.6)$$

con r_{pump} spessore del laser di pump, A coefficiente di assorbimento.

Come si può vedere in tabella 4.3 e 4.4 la potenza assorbita per unità di volume aumenta sia per il fascio di pump che per il fascio di probe al diminuire dello spessore del film. L'unica eccezione a questo trend è rappresentato dal

¹¹dove A sta per energia assorbita, T energia trasmessa ed R energia riflessa

¹² $\langle \frac{P_{Abs}}{V} \rangle$

Table 4.6: PUMP

Film	P_i [mW]	P_t [mW]	P_r [mW]	T	R	A	$\langle P_{Asb} \rangle / V$ [mW]
15 nm	110	20,3	80	0,185	0,729	0,086	$3,36 \cdot 10^{29}$
20 nm	110	10,6	89	0,09	0,8	0,09	$2,52 \cdot 10^{29}$
35 nm	110	1,4	105	0,013	0,953	0,034	$5,44 \cdot 10^{28}$
50 nm	110	0,4	107	0,003	0,973	0,024	$2,69 \cdot 10^{28}$

Table 4.7: PROBE

Film	P_i [mW]	P_t [mW]	P_r [mW]	T	R	A	$\langle P_{Asb} \rangle / V$ [mW]
15 nm	6,3	2,6	3,1	0,412	0,492	0,095	$8,1324 \cdot 10^{28}$
20 nm	2,1	0,59	1,38	0,280	0,657	0,061	$1,3 \cdot 10^{28}$
35 nm	31,1	1,55	27,6	0,049	0,881	0,068	$1,23 \cdot 10^{29}$
50 nm	30,1	0,44	28,7	0,014	0,953	0,031	$3,8 \cdot 10^{28}$

film di 35 nm che rispetto al laser di probe ha un indice di assorbimento superiore rispetto al film di 20 nm.

4.2 Conclusioni

In questo lavoro di tesi si è studiato il comportamento delle dinamiche termomeccaniche di rilassamento di films sottili (Ag, 15,20,35,50,75 nm) in funzione del tempo sollecitati da un impulso energetico (laser di pump@1560nm, impulso ultracorto 150fs). Per cercare di descrivere con sufficiente approssimazione queste dinamiche sono stati presentati due modelli teorici, uno per la parte termica, uno per la meccanica. Sono stati successivamente presentati la tecnica ASOPS con cui si sono studiati i campioni, il banco ottico, le

specifiche dei campioni presi in esame e cenni sulla tecnica tramite la quale è avvenuta la loro fabbricazione. Si sono infine presentati i dati ottenuti e l'analisi degli stessi.

Le oscillazioni meccaniche del film sono state riconosciute ed analizzate; è stato possibile ricondurre il periodo delle oscillazioni ad una dipendenza lineare con lo spessore del metallo. L'oscillazione meccanica che si verifica in fase di rilassamento è stata descritta come sovrapposizione delle prime due armoniche.

Il modello teorico presentato però non è riuscito a descrivere con sufficiente approssimazione la dinamica termica del sistema. L'assorbimento del materiale considerato inizialmente dipendente solamente dal tipo di materiale (quindi come costante per l'argento) risulta invece anch'esso funzione dello spessore del film.

Numerosi sono i fattori che abbiamo riscontrato nel corso di questa analisi che potrebbero essere migliorati.

In primo luogo è necessario implementare il modello teorico per descrivere con maggiore approssimazione il comportamento della dinamica termica del sistema. In questo modo sarebbe possibile stimare una relazione fra lo spessore del film e la capacità dello stesso di assorbire energia. In secondo luogo sarebbe utile utilizzare un numero maggiore di film differenti per spessore.

Su questo punto è comunque necessario fare alcune precisazioni. L'errore sulla misura del film è attestata a $\pm 2,5nm$. Un errore di questo tipo pesa molto sui film di spessore inferiore ridotto (10-20nm).

All'aumentare dello spessore del film però, sebbene l'errore relativo sullo spessore diminuisca, il modulo del valore di dR e dT misurato cala drasticamente.

Quindi se da una parte è difficile sapere con precisione la differenza fra i film sottili fabbricati a causa dell'errore sulla misura dello spessore, dall'altro è difficile analizzare le dinamiche termo-meccaniche del sistema di film spessore maggiore in quanto il set-up sperimentale non riesce a definire con accurata precisione le differenze fra i film.

BIBLIOGRAPHY

- [1] Time resolved Microscopy on nanostructured materials, tesi di laurea triennale in Fisica, Università Cattolica del Sacro Cuore, A.A. 2011-2012.
- [2] www.nist.gov/data/nsrds/NSRDS-NBS-8.pdf.
- [3] R. J. Stoner and H. J. Maris, *Phys. Rev. B* 48, 16373 (1993).
- [4] M.J. Weber *Handbook of optical materials*, CRC Press, 2003.
- [5] Menlo System, ASOPS white paper, April 15 2009.
- [6] *The Feynman Lectures on Physics Volume 2*, 1963.