

Università Cattolica del Sacro Cuore

Sede di Brescia

Facoltà di Scienze Matematiche, Fisiche e Naturali

Corso di Laurea di Primo Livello in Fisica



GENERAZIONE DI SECONDA ARMONICA
DA VETRI CERAMICI KNANS MEDIANTE
IMPULSI LASER CORTI

Relatore:

Dott. Gabriele Ferrini

Correlatore:

Dott. Claudio Giannetti

Laureando: **Simone Peli**

mat. 3403894

Anno Accademico 2007/2008

INDICE

1	Introduzione	3
2	Caratteristiche dei campioni	5
3	Introduzione teorica	6
3.1	Approccio meccanico : l'Oscillatore di Lorentz	9
3.2	Approccio elettrodinamico	14
3.3	Generazione di seconda armonica	20
4	Setup sperimentale	25
5	Misure	38
5.1	Come si è lavorato	38
5.2	Risultati	41
5.2.1	Dipendenza dell'intensità del segnale di SH rispetto a quella del laser incidente	41
5.2.2	Efficienza relativa con il BBO	44

5.2.3	Probabile dipendenza dalla temperatura	48
6	Conclusioni	53



1. INTRODUZIONE

La caratteristica di certi materiali di riuscire a convertire la frequenza di un'onda elettromagnetica incidente, è sfruttata in parecchi ambiti scientifici e tecnologici. Grazie a queste caratteristiche non lineari è infatti possibile ottenere raggi coerenti con una lunghezza d'onda altrimenti non permessa dai laser standard e, restando in ambito scientifico, è anche possibile costruire strumenti molto utili quali: guide d'onda, sdoppiatori e convertitori di frequenza, modulatori elettroottici, interruttori e sensori di campo elettrico.

Ma anche l'industria tecnologica e, in particolare, quella informatica rivolge la sua attenzione alla possibilità di trasmettere informazioni sfruttando la conversione della frequenza di un raggio laser. Il futuro dei calcolatori non è più centrato sul passaggio di elettroni in un semiconduttore bensì, sul passaggio di luce in guide d'onda. I chip ottici, da questo punto di vista, potranno soddisfare la crescente necessità di avere flussi di dati sempre più veloci.

Esistono parecchi materiali dotati di proprietà non lineari e, fino a poco tempo fa si pensava che la conversione di frequenza potesse essere ottenuta soltanto da materiali monocristallini e puri molto costosi e di difficile utilizzo.

Recenti studi hanno invece dimostrato che non è necessario restare vincolati a questi cristalli per ottenere effetti non lineari. Si è infatti visto che anche materiali policristallini e amorfi, di facile costruzione e molto più economici, godono di queste proprietà.

Il nostro lavoro si inserisce in un progetto portato avanti dall'Università degli  studi di Napoli "Federico II" che punta alla costruzione di materiali vetrosi con spiccate proprietà non lineari e, nello specifico, il nostro compito è quello di valutare quantitativamente l'efficienza di generazione di seconda armonica (SHG) dei campioni,  stimolati da impulsi laser corti.



2. CARATTERISTICHE DEI CAMPIONI

Il nostro studio è concentrato su tre campioni di vetri ceramici KNaNS. Essi differiscono per la quantità di potassio (K), sodio (Na), niobio (Nb) e silicio (Si) che contengono. Le tre diverse composizioni utilizzate sono mostrate nella tabella seguente:


Campione	K (%)	Na (%)	Nb (%)	Si (%)
KNaNS 0-23-27-50	0	23	27	50
KNaNS 8-15-27-50	8	15	27	50
KNaNS 13-10-27-50	13	10	27	50

Queste serie sono l'evoluzione di vetri KNS già oggetto di studio dell'autore proprio riguardo alla loro efficienza di SHG. Il nostro studio sarà quello di valutare quale dei tre campioni KNaNS sia il più efficiente e, inoltre, confrontare la loro efficienza con quella dei vetri KNS e, soprattutto, con quella del BBO (Beta Bario Borato), uno dei materiali con il più alto grado di conversione di seconda armonica conosciuti.

3. INTRODUZIONE TEORICA

L'Ottica è una  **branchia** della fisica che descrive il comportamento e le proprietà della luce e l'interazione luce-materia. Quando un'onda elettromagnetica colpisce qualsiasi materiale, il suo campo elettrico oscillante eccita gli elettroni del materiale che, oscillando a loro volta, reirraggiano energia sotto forma di luce. Quando si ha a che fare con questo fenomeno, uno dei parametri fondamentali da considerare è la polarizzazione **P**.  **Essa non è altro che un vettore** diretto lungo la direzione del campo elettrico **E** e proporzionale ad esso tramite la forma

$$\mathbf{P} = \chi \mathbf{E} \quad (3.1)$$

dove χ è detta *suscettività o suscettibilità elettrica* ed è una caratteristica del materiale. In un materiale dielettrico (in cui non sono presenti cariche libere) la polarizzazione può essere interpretata, macroscopicamente, come la formazione di dipoli dovuta alla presenza di un campo elettrico **al quale** ~~creano di opporsi. L'effetto di schermo è limitato alle deformazioni~~  ~~la struttura elettronica microscopica attorno alla posizione di equilibrio.~~ gli elettroni possono deformare i propri orbitali spostando leggermente la propria

posizione rispetto ai nuclei. Di conseguenza si forma un dipolo di piccolissima intensità per ogni atomo del materiale, la somma dei dipoli microscopici produce il dipolo totale del solido. La suscettività elettrica è, nel caso più generale, un tensore che può essere sviluppato in un termine che dipende linearmente da \mathbf{E} e altri di ordine superiore che dipendono da potenze superiori di \mathbf{E} . Più in particolare possiamo avere i seguenti casi:

- Polarizzazione *lineare* ~~dettata da:~~

$$\mathbf{P} = \chi^{(1)} \mathbf{E} \quad (3.2)$$

essa dà origine a effetti lineari nell'interazione tra luce e materia quali:

- Legge di Snell
- Legge di Fresnel
- Concetto di velocità di fase e velocità di gruppo
- Leggi dell'ottica geometrica.

- Polarizzazione del *secondo ordine* ~~dettata da:~~

$$\mathbf{P} = \chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 \quad (3.3)$$

sta alla base di fenomeni come:

- Generazione di seconda armonica (SHG)
- Rettificazione ottica (generazione di corrente di polarizzazione al passaggio di un intenso raggio elettromagnetico)
- Generazione di frequenze diverse da quelle della pompa.

Cerchiamo di dare una interpretazione intuitiva a questi effetti non lineari. Possiamo pensare il dipolo elettrico come un elettrone che, sotto l'effetto del campo elettrico, oscilla attorno al nucleo come se fosse attaccato ad una molla. L'effetto lineare di questa modellizzazione è proprio la legge di Hooke dettata dalla relazione:

$$\mathbf{F} = k\Delta\mathbf{x} \quad (3.4)$$

Se io tirassi la molla in maniera innaturale, questa si deformerebbe e, di conseguenza, la ?? non sarebbe più valida. A questo punto, posso pensare ad un modello in cui la particella, legata alla molla che oscilla con la stessa frequenza di \mathbf{E} , sia inserita all'interno di un guscio sferico rigido. Quando l'ampiezza dell'oscillazione è tale da fare collidere la particella con il guscio, essa non seguirà più il campo elettrico e, di conseguenza, la sua oscillazione, nel tempo, non seguirà più una sinusoide ma la sua ampiezza verrà tagliata. Tenderà sempre più a diventare un'onda quadra. Dal momento che un'onda è sempre scrivibile, secondo Fourier, come somma di sinusoidi, per descrivere un'onda quadra avrò bisogno della somma di più sinusoidi, in altre parole, avrò bisogno di più ordini. Ecco allora che l'onda totale dovrà essere scomposta in:

- Costante (offset)
- Onda portante
- Frequenze di ordine superiore.

~~In virtù di questo fatto avremo che, nel materiale, alcuni dipoli verranno eccitati dalla frequenza portante, altri invece dalla frequenza di seconda armonica; essi quindi reirraggeranno onde con frequenze diverse.~~

~~Se dovessimo collocarci nell'ambito fisico in cui è possibile avere questi effetti, ci collocheremmo nel campo dell'interazione luce materia *non risonante* e *non coerente*.~~

- ~~La non-risonanza ci assicura l'impossibilità del passaggio di energia tra materia e luce in modo tale che non si possa avere in nessun modo amplificazione.~~

- ~~La non-coerenza ci permette di affermare che non appena si rimuove l'eccitazione, la polarizzazione cessa.~~

3.1 Approccio meccanico : l'Oscillatore di Lorentz

Per riuscire a comprendere la fisica della generazione di seconda armonica è utile utilizzare il modello dell'oscillatore di Lorentz. Consideriamo una energia potenziale $V(x)$ e consideriamo il moto di una carica attorno alla posizione di equilibrio. Se trascuriamo la dispersione spaziale, la carica sarà sottoposta ad un campo elettrico oscillante del tipo:

$$E(t) = E \cos(\omega t)$$

Ci troviamo nella situazione di un oscillatore armonico smorzato in presenza di una forzante.

Le forze in gioco sono:

1.

$$F_V = -\frac{\partial V(x)}{\partial x} \quad (3.5)$$

2.

$$F_E = qE \cos(\omega t) \quad (3.6)$$

3.

$$F_\gamma = -\gamma\dot{x}m \quad (3.7)$$

Da cui deriva la seguente equazione di moto:

$$m\ddot{x} = -\frac{\partial V(x)}{\partial x}m - \gamma\dot{x} + qE \cos(\omega t) \quad (3.8)$$

Ora, se espandiamo il potenziale $V(x)$ attorno al punto di equilibrio, esso diventerà:

$$V(x) = V(0) + \frac{\partial V(x)}{\partial x} \Big|_0 x + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 V(x)}{\partial x^2} \Big|_0 x^2 + \dots = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\partial^n V(x)}{\partial x^n} \Big|_0 \frac{x^n}{n!} \quad (3.9)$$

da cui deriva la seguente equazione di moto

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x + \sum_{n=3}^{\infty} \frac{\partial^n V(x)}{\partial x^{n-1}} \Big|_0 \frac{x^n}{(n-1)!} = \frac{qE}{m} \cos(\omega t) \quad (3.10)$$

dove ω_0 è la frequenza propria dell'oscillatore. Se espandiamo solo fino a $n = 2$, otterremo l'equazione di un oscillatore armonico lineare, cioè:

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{qE}{m} \cos(\omega t) \quad (3.11)$$

che è la parte reale dell'equazione complessa:

$$\ddot{\tilde{x}} + \gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2 \tilde{x} = \frac{q\tilde{E}}{m} e^{-i\omega t} \quad (3.12)$$

Poichè la forzante è una senoide con frequenza ω , una soluzione per questa equazione differenziale sarà una soluzione oscillante a ω :

$$\tilde{x}(t) = x_0(\omega) e^{-i\omega t} \quad (3.13)$$

con $x_0(\omega)$ coefficienti dell'espansione di Fourier in ω di $x(t)$ cioè:

$$x_0 = \frac{\frac{q}{m}}{\omega_0^2 - \omega - i\gamma\omega} E_0 \quad (3.14)$$

dove ω_0 è la frequenza propria dell'oscillatore. In questo caso la carica reirraggia solo a frequenza ω , perchè abbiamo supposto una particolare condizione sul potenziale. Il momento di dipolo del singolo elettrone \mathbf{p} è la parte reale di:

$$\tilde{p}(t) = q\tilde{x}(t) = \frac{\frac{q^2}{m}}{\omega_0^2 - \omega - i\gamma\omega} E_0 e^{-i\omega t} \quad (3.15)$$

Una peculiare caratteristica dei mezzi isotropi è che il vettore polarizzazione può essere scritto come

$$\mathbf{P} = nq\mathbf{x} = \frac{\frac{q^2}{m}}{\omega_0^2 - \omega - i\gamma\omega} \mathbf{E} \quad (3.16)$$

dove $n = \frac{N}{V}$ è il numero di elettroni per unità di volume. Il coefficiente che lega il vettore polarizzazione \mathbf{P} al campo esterno \mathbf{E} è uno scalare χ (susceptibilità elettrica).

In una situazione più generale (come nei cristalli), la polarizzazione indotta da un'onda nella materia può dipendere dalla direzione di propagazione dell'onda. Questo perchè, in mezzi non isotropi, la forza che lega gli elettroni varia al variare delle direzione del mezzo. Quindi la dipendenza di \mathbf{P} da \mathbf{E} è esprimibile solo tramite il *tensore di susceptibilità* $\hat{\chi}$:

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ij} E_j \quad (3.17)$$

o, in notazione matriciale

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} \\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Per cristalli non assorbenti, questo tensore è simmetrico e possiamo definire un set di assi principali. In questo modo il tensore diventa diagonale:

$$\hat{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} \\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

Ora, ~~approcciamoci perturbativamente alla soluzione dell'oscillatore, considerando~~ i termini non lineari dell'espansione **??**. Per farlo continuiamo la **??** fino al termine con $n = 3$. In una tale situazione, stiamo trattando effetti non lineari perchè otteniamo un termine quadratico per la forza. Risolviamo l'equazione non lineare supponendo che questi effetti introducano una piccola perturbazione nell'oscillatore di Lorentz lineare. Possiamo esprimere x come una serie di armoniche di ω con ampiezze rapidamente decrescenti:

$$x = x_1 \cos(\omega t + \phi_1) + x_2 \cos(2\omega t + \phi_2) + x_3 \cos(3\omega t + \phi_3) + \dots \quad (3.20)$$

con $x_1 \gg x_2 \gg x_3 \dots$ per giustificare l'approccio perturbativo. Ora, per ricavare i termini x_1 e x_2 (ci fermiamo al secondo ordine) sostituiamo l'espressione di x (scritta nella forma esponenziale) nell'equazione di moto **??** e otterremo le seguenti soluzioni:

- termini in ω :

$$x_1 = \frac{qE}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} = \frac{qE}{m} \frac{1}{D(\omega)} \quad (3.21)$$

- termini in 2ω :

$$x_2 = -\frac{1}{2} \frac{1}{2!} \frac{\partial^3 V(x)}{\partial x^3} \Big|_0 \frac{qE^2}{m} \frac{1}{D^2(\omega)D(2\omega)} \quad (3.22)$$

Noi conosciamo il vettore polarizzazione \mathbf{P} indotto da un campo elettrico

$E(t) = E_0 e^{i\omega t}$ in un mezzo isotropo. Ora espandiamo questo vettore attorno a $E = 0$:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E}(t) \simeq \varepsilon_0 (\chi^{(1)} E_0 e^{-i\omega t} + \chi^{(2)} E_0 e^{-2i\omega t} + \dots) \quad (3.23)$$

Inoltre conosciamo un'altra espressione per \mathbf{P} derivata da:

$$P = nqx_1 e^{-i\omega t} + nqx_2 e^{-i2\omega t} + \dots \quad (3.24)$$

Per cui otteniamo che l'espansione in x corrisponde ad una espansione della suscettività χ attorno ad $E = 0$. Uguagliando le due espressioni di \mathbf{P} abbiamo:

$$\chi^{(1)} = \frac{nq^2}{\varepsilon_0 m} \frac{1}{D(\omega)} \quad (3.25)$$

$$\chi^{(2)} = -\frac{nq^3}{2\varepsilon_0 m^2} \frac{1}{D^2(\omega)D(2\omega)} \frac{1}{2!} \frac{\partial^3 V(x)}{\partial x^3} \Big|_0 \quad (3.26)$$

Nel caso di mezzi cristallini, non siamo in presenza di cariche libere per cui la divergenza del vettore d'induzione \mathbf{D} è zero. L'espansione ?? diventa quindi:

$$P_i = \varepsilon_0 (\chi_{ij} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \dots) \quad (3.27)$$

dove χ_{ij} è un elemento del tensore di suscettibilità. $\chi_{ijk}^{(2)}$ rappresenta un elemento del tensore del terzo ordine. Infine possiamo anche separare la

polarizzazione in somma di termini lineari e non lineari. Quello non lineare sarà:

$$P_i^{NL} = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + o(\mathbf{E}^3) + \dots \quad (3.28)$$

3.2 Approccio elettrodinamico

Possiamo dare un'interpretazione dell'ottica non lineare anche partendo dalle equazioni di Maxwell.

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{E} &= 0, & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}, & \nabla \times \mathbf{B} &= \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}) \end{aligned} \quad (3.29)$$

con

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} \quad (3.30)$$

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)} \quad (3.31)$$

$$\mathbf{P}^{(1)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} \quad (3.32)$$

dove imponiamo:

- assenza di correnti
- assenza di magneti
- assenza di cariche libere
- assenza di elettretti

Ora distinguiamo le due situazioni dell'ottica lineare e di quella non lineare.

Ottica lineare Il vettore polarizzazione \mathbf{P} è una funzione lineare del campo incidente \mathbf{E} ed è espresso come:

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ij} E_j \quad (3.33)$$

dove abbiamo trascurato la dispersione spaziale e temporale e con χ_{ij} intendiamo un tensore del secondo ordine, simmetrico con sei componenti indipendenti che determina una propagazione anisotropa.

Ottica non lineare Per intensità elevate del campo elettrico non possiamo più supporre un legame lineare tra \mathbf{P} ed \mathbf{E} . Per cui, partendo dalla ?? sviluppiamo χ attorno a $E = 0$ ottenendo:

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ij}^{(1)} E_j + \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \varepsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (3.34)$$

Accoppiando, ora, le equazioni di Maxwell, ricaviamo l'equazione fondamentale dell'ottica sia lineare che non lineare, essa è la cosiddetta *equazione delle onde* ed è espressa dalla formula seguente:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (3.35)$$

Se consideriamo un campo elettrico incidente della forma $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = E_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)$, allora avremo che anche la polarizzazione è del tipo $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)$ e, in questa forma, risolvono l'equazione delle onde ??

Nell'ottica lineare la ?? è anch'essa lineare con il risultato che, la polarizzazione \mathbf{P} guida l'equazione delle onde a produrre luce solo con quelle

frequenze presenti in \mathbf{P} , a sua volta dettato dal campo elettrico incidente \mathbf{E} ; in altre parole la luce uscente non cambia colore.



Figura 3.1:

Ad alte intensità del campo elettrico incidente, la polarizzazione cessa di essere una semplice funzione lineare di esso per cui, bisogna necessariamente tenere conto di termini di ordine superiore tali per cui:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0(\chi^{(1)}\mathbf{E} + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2 \dots) \quad (3.36)$$

dove le suscettività $\chi^{(1)}$ e $\chi^{(2)}$ dipendono dalle loro frequenze e sono legate a potenze di ordine superiore del campo elettrico. Queste polarizzazioni ecciteranno i dipoli con frequenze diverse per cui avremo raggi uscenti di diverso colore rispetto al campo elettrico incidente.

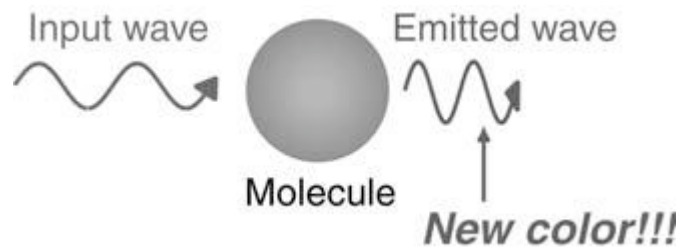


Figura 3.2:

Per avere una visione della forma completa di questa polarizzazione, prendiamo il campo elettrico risolvendo l'equazione delle onde precedente-

mente utilizzato, lo scriviamo nella forma differenziale togliendo la dipendenza spaziale

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}E(t)e^{i\omega t} + \frac{1}{2}E^*(t)e^{-i\omega t} \quad (3.37)$$

e, siccome $\mathbf{P}^{(2)}$ dipende da \mathbf{E}^2 , lo **quadriamo**

$$\mathbf{E}^2(t) = \frac{1}{4}E^2(t)e^{2i\omega t} + \frac{1}{2}E_1(t)E_1^*(t)\frac{1}{4}E_1^{*2}(t)e^{-2i\omega t} \quad (3.38)$$

da notare che quest'espressione contiene termini che oscillano a 2ω , la seconda armonica della luce incidente. Questi termini **puoi** guideranno l'equazione d'onda a generare luce a queste nuove frequenze. Proprio da qui deriva il processo di *generazione di seconda armonica* (SHG). L'espressione precedente, inoltre, contiene anche un termine non oscillante; questo significa che la luce può indurre un campo di corrente continua. Questo effetto è chiamato *rettificazione ottica*.

Se consideriamo la presenza di due raggi e, questa volta, non escludiamo la dipendenza temporale, avremo

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2}E_1(\mathbf{r}, t)e^{i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \frac{1}{2}E_2(\mathbf{r}, t)e^{i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} + c.c. \quad (3.39)$$

Ora, **quadrandolo** questa espressione otteniamo

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}^2(\mathbf{r}, t) = & \frac{1}{4}E_1^2 e^{2i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \\
& + \frac{1}{2}E_1(t)E_1^* + \frac{1}{4}E_1^{*2} e^{-2i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \\
& + \frac{1}{4}E_2^2 e^{2i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} + \\
& + \frac{1}{2}E_2 E_2^* + \frac{1}{4}E_2^{*2} e^{-2i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} + \\
& + \frac{1}{2}E_1 E_2 e^{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]} + \\
& + \frac{1}{2}E_1^* E_2^* e^{-i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]} + \\
& + \frac{1}{2}E_1 E_2^* e^{i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]} + \\
& + \frac{1}{2}E_1^* E_2 e^{-i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}]}
\end{aligned}$$

Le prime due righe del termine di destra dell'equazione sono i termini di SHG e di rettificazione ottica per i campi individuali; poi si vedono anche termini in cui le frequenze sono accoppiate e, più precisamente, essi producono luce la cui frequenza è la somma delle frequenze ($\omega_1 + \omega_2$) e il fenomeno è chiamato *generazione di frequenza somma* (SFG) e luce la cui frequenza è la differenza delle frequenze ($\omega_1 - \omega_2$), *generazione di frequenza differenza* (DFG). In altre parole, se entriamo in un cristallo con due raggi di frequenza ω_1 e ω_2 , usciremo con un raggio di frequenza diversa.

Da notare, inoltre, che i nuovi raggi hanno anche nuova direzione; per cui potremo avere SHG in entrambe le situazioni seguenti:

Consideriamo l'interazione a tre onde con $\omega_3 \geq \omega_2 \geq \omega_1$ e vincoliamole imponendo la condizione $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$

Ora, accoppiando le equazioni di Maxwell, otteniamo l'equazione delle onde scritta in questa maniera:

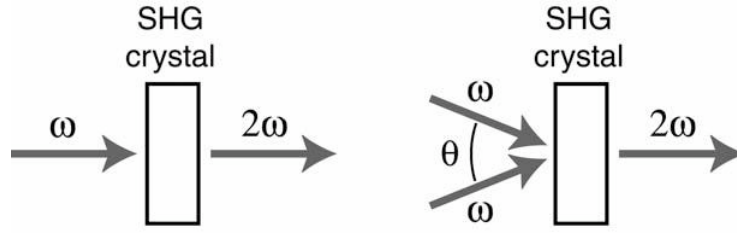


Figura 3.3:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = -\frac{1}{c^2} (1 + \chi^{(1)}) \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(2)}}{\partial t^2} \quad (3.40)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\omega) \mathbf{E} = \mu_0 \omega^2 \mathbf{P}^{(2)}(\omega) \quad (3.41)$$

L' ω nella formula è ottenuta dai seguenti processi di wave mixing:

$$\begin{cases} \mathbf{P}^{(2)}(\omega_3) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \\ \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\omega_3) \mathbf{E}^*(\omega_2) \\ \mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\omega_3) \mathbf{E}^*(\omega_1) \end{cases} \quad (3.42)$$

Consideriamo l'interazione tra tre onde copropaganti lungo z ottenendo:

$$\begin{cases} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_1 - \frac{\omega_1^2}{c^2} \varepsilon(\omega_1) \mathbf{E}_1 = \omega_1^2 \chi^{(2)} \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_2^* \\ \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_2 - \frac{\omega_2^2}{c^2} \varepsilon(\omega_2) \mathbf{E}_2 = \omega_2^2 \chi^{(2)} \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_1^* \\ \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_3 - \frac{\omega_3^2}{c^2} \varepsilon(\omega_3) \mathbf{E}_3 = \omega_3^2 \chi^{(2)} \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \end{cases} \quad (3.43)$$

Utilizzando l'approssimazione SVEA (Slowly variable envelope approximation), che ci permette di trascurare le derivate seconde ed eliminando il termine di assorbimento lineare, il sistema si riduce a:

$$\begin{cases} \frac{\partial E_1}{\partial z} = i\sigma_1 E_3 E_2^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} = i\sigma_2 E_3 E_1^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{\partial E_3}{\partial z} = i\sigma_3 E_1 E_2 e^{i\Delta kz} \end{cases} \quad (3.44)$$

con

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \quad (3.45)$$

e con

$$\sigma_i = \frac{\omega_i}{2n_i c} \chi^{(2)} \quad (3.46)$$

3.2.1 Generazione di seconda armonica

Supponiamo di avere un cristallo di spessore l colpito da un'onda incidente di frequenza ω e propagante nella direzione z . Quest'onda induce nel mezzo una polarizzazione con termini lineari e quadratici così che i termini non lineari causano il reirraggiamento degli elettroni ad una frequenza doppia. Matematicamente la situazione è la seguente:

$$\begin{aligned} \omega_1 = \omega_2 = \omega \\ \omega_3 = 2\omega \end{aligned} \quad (3.47)$$

ottenendo così

$$\begin{cases} \frac{\partial E_\omega}{\partial z} = i\sigma_\omega E_{2\omega} E_\omega^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{\partial E_{2\omega}}{\partial z} = i\sigma_{2\omega} E_\omega^2 e^{-i\Delta kz} \end{cases} \quad (3.48)$$

con

$$\Delta k = k_{2\omega} - k_{\omega} - k_{\omega} \quad (3.49)$$

e con

$$\sigma_{2\omega} = \frac{\omega}{n(2\omega)c} \chi^{(2)} \quad (3.50)$$

Utilizzando l'approssimazione di non svuotamento della pompa che ci permette di avere $\frac{\partial E_{\omega}}{\partial z} = 0$, possiamo integrare l'equazione per $E_{2\omega}$ ottenendo

$$E_{2\omega} \propto \int_0^l E_{\omega}^2 dz \quad (3.51)$$

e risolvendo l'integrale e prendendo il modulo quadro della soluzione, possiamo trovare l'intensità del raggio di seconda armonica:

$$I_{2\omega} \propto \left[\frac{\sin \frac{\Delta k l}{2}}{\frac{\Delta k l}{2}} \right] \quad (3.52)$$

Da quest'ultima espressione si capisce che la massima intensità di seconda armonica la si ottiene avendo $\Delta k = 0$.

Se $\Delta k \neq 0$, la seconda armonica generata in un certo piano z_1 non è in fase con quella generata in z_2 . La distanza che corrisponde a una differenza di fase di 2π tra i due piani è chiamata *lunghezza di coerenza* ed è definita come:

$$\Lambda_c = \frac{2\pi}{2k_{\omega} - k_{2\omega}} \quad (3.53)$$

che è la massima lunghezza del cristallo utile a produrre seconda armonica. L'intensità massima della seconda armonica è ottenuta quando la velocità

di fase dell'onda fondamentale uguaglia la velocità di fase dell'onda a doppia frequenza. Questa condizione è chiamata *phase matching*

Se utilizziamo la relazione $k_\omega = \omega\sqrt{\mu_0\varepsilon_0}n_\omega$, otteniamo che $n_\omega = n_{2\omega}$. Così per avere condizione di phase-matching, gli indici di rifrazione (e quindi le velocità di fase) della fondamentale e della seconda armonica devono essere uguali. Proprio per questo è impossibile soddisfare la condizione di phase-matching usando un materiale con una normale legge di dispersione poiché la velocità di fase dipende dalla frequenza. La tecnica usata per ottenere $\Delta k = 0$, prende spunto dalla naturale birifrangenza dei cristalli anisotropi. Per cui, per ottenere phase-matching, bisogna utilizzare un cristallo birifrangente in cui la polarizzazione dell'onda incidente e la sua direzione influenzano la velocità di propagazione dell'onda. Da un'accurata scelta dell'angolo di incidenza della fondamentale, la onde di seconda armonica generata dai diversi piani del cristallo interferiscono in modo costruttivo aumentando l'intensità di SH di parecchi ordini di grandezza.

Inoltre, l'intensità di seconda armonica dipende in maniera decisiva dall'intensità dell'onda incidente. Per ottenere un'apprezzabile segnale di seconda armonica dobbiamo usare una radiazione continua con elevata potenza.

Un'ottima alternativa è però costituita dall'utilizzo di radiazione impulsata che, a fronte di una bassa energia media depositata sul campione (in modo da preservarne l'integrità e le caratteristiche), l'intensità di picco per ogni impulso è molto elevata per permettere di avere fenomeni non lineari. In questo modo l'efficienza di conversione di seconda armonica è molto maggiore rispetto a quella ottenuta con un laser continuo.

Per ottenere generatori cristallini di seconda armonica si dovrebbe costruire

ire cristalli strato dopo strato e tagliarli ad uno spessore compatibile con la condizione di phase-matching, il tutto con un processo molto costoso. Negli ultimi anni però, molti studi hanno dimostrato che queste caratteristiche cristalline non sono necessarie per ottenere effetti non lineari; infatti una soluzione competitiva per avere buoni risultati, è fornita dal quasi phase-matching casuale. Questa situazione la si può ottenere utilizzando campioni policristallini disordinati che consistono in un grande numero di singoli domini cristallini con orientazioni, forme e grandezze casuali. Le onde con diversa frequenza generate (nel nostro caso seconda armonica) dai diversi domini, raggiungono fasi casuali e non interferiscono né in maniera costruttiva né distruttiva.



L'intensità totale dell'onda generata è la somma delle intensità che scaturiscono da ogni singolo dominio per cui essa cresce linearmente al crescere dei domini o dello spessore del campione. Ovviamente il phase-matching casuale è meno efficiente dei processi standard di phase-matching ma permette comunque di ottenere buoni risultati. Inoltre questo processo non richiede la difficile costruzione di campioni cristallini né l'oculato allineamento del setup per il suo utilizzo.

I campioni KNaNS utilizzati in questo lavoro, macroscopicamente appaiono come dei pezzi di ceramica non trasparente, quindi senza una struttura cristallina. Essi sono un'evoluzione dei campioni KNS precedentemente studiati in altri lavori e che hanno rivelato proprietà non lineari grazie allo studio con i raggi X.



Noi vogliamo esaminare in maniera quantitativa l'efficienza di SHG nei campioni KNaNS e confrontarla con l'efficienza di un cristallo di BBO (Beta

Bario Borato) che è uno dei materiali più efficienti per ottenere conversione di frequenza.

4. SETUP SPERIMENTALE

Il nostro obiettivo  era quello di misurare, come già anticipato, l'intensità del segnale di seconda armonica prodotto da vetri ceramici KNaNS con l'utilizzo di impulsi laser corti. Alla vista, questi cristalli appaiono come dei veri e propri frammenti di ceramica non trasparenti, per cui, la prima considerazione da fare è che le nostre misure non potranno essere effettuate sul raggio trasmesso bensì  quello riflesso. Questo fatto ci guiderà nella configurazione del **banco ottico** che è presentata in Figura **??**

Allora, partendo da questo schema, seguiamo passo passo il percorso del laser attraverso i vari strumenti e, di ognuno, diamo una breve spiegazione.

Laser Il laser usato è formato da tre elementi: la *pompa* (Coherent Verdi V10), un *oscillatore Ti:Sa* (Titanio-Zaffiro) Mira Coherent 900 e un *cavity dumper* (Pulse Switch APE). **Il fascio laser viene originato nella pompa ed esce di colore verde con una lunghezza d'onda $\lambda = 532nm$; esso ha una potenza massima di circa 10W.**  Questo **raggio laser continuo**  viene indirizzato in un oscillatore nel quale è presente un elemento attivo, un cristallo

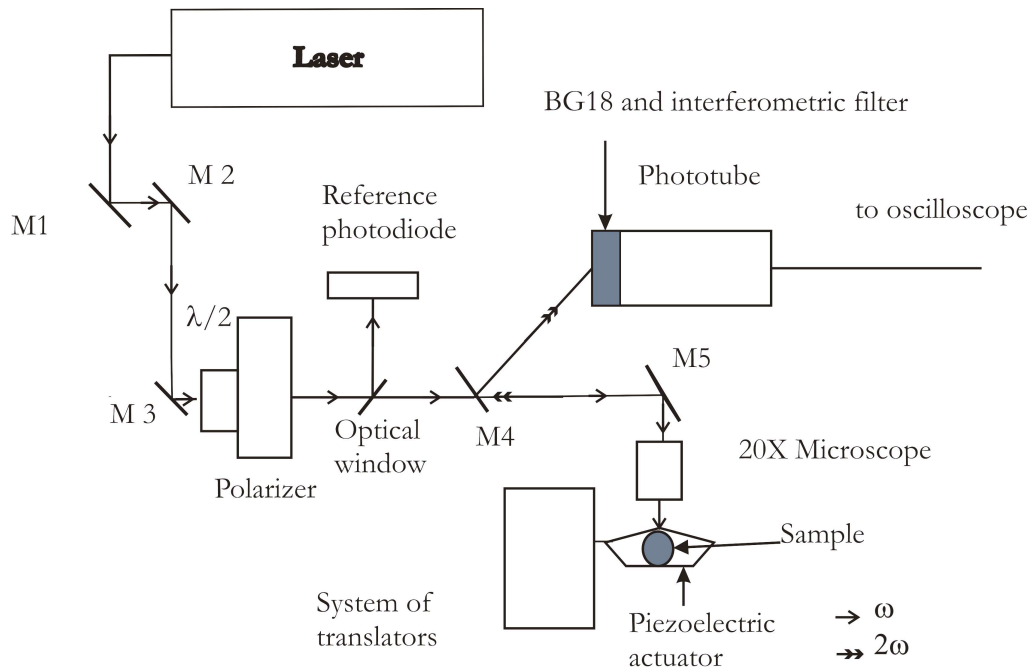


Figura 4.1: Configurazione del banco ottico

Titanio-Zaffiro. ~~Gli atomi del cristallo vengono dapprima eccitati dalla pompa, quindi vengono stimolati a emettere l'energia immagazzinata per mezzo di una radiazione esterna di frequenza determinata. I fotoni che costituiscono la radiazione emessa hanno la frequenza caratteristica degli atomi da cui sono stati emessi, e viaggiano in fase con i fotoni stimolatori. L'amplificazione della luce è ottenuta mediante successive riflessioni dei fotoni in una cavità risonante composta da vari specchi. Durante il percorso fra uno specchio e l'altro, i fotoni colpiscono altri atomi eccitati che, a loro volta, emettono nuovi fotoni caratterizzati dalla medesima frequenza e fase dei fotoni già presenti, generando quindi una radiazione di lunghezza d'onda da che va da 790 a 1100 nm, estremamente coerente e di alta intensità.~~ I laser a stato solido offrono la possibilità di ottenere sequenze di impulsi di luce molto intensi e di

brevissima durata. Un laser a Ti:Sa in modalità mode-locking è in grado di generare impulsi della durata $\tau \sim 100fs$ e il numero di impulsi per unità di tempo ($R_r = \text{RepetitionRate}$) dipende dalla lunghezza della cavità ed è dell'ordine di $\sim 54MHz$, cioè un impulso ogni $\sim 20ns$. Possiamo ulteriormente diminuire la frequenza di ripetizione del laser con un apposito dispositivo che seleziona solo alcuni degli impulsi generati dall'oscillatore. Tale dispositivo può essere esterno (Pulse Picker) o interno alla cavità (Cavity Dumper). Nel primo caso si ha una riduzione di $\sim 40\%$ dell'energia per impulso, mentre con il Cavity Dumper si ha un aumento considerevole di energia per impulso in quanto gli impulsi non utilizzati rimangono in cavità accumulando quindi energia. L'utilizzo di un cavity dumper risulta quindi utile non soltanto per ottenere la sintonizzabilità della frequenza di ripetizione del laser, ma anche per aumentare l'energia per impulso disponibile. Il raggio finale che esce dal sistema avrà quindi le seguenti caratteristiche:

- lunghezza d'onda $\lambda = (795 \div 800)nm$
- repetition rate del laser $R_r = (0.3 \div 1.5)MHz$
- durata dell'impulso $\tau = 120fs$
- energia di ogni impulso $E_p = (\text{Potenza letta sul power meter})/R_r$

L'impulso, inoltre ha una modulazione gaussiana nello spazio e, su questo, utilizzando la teoria dei fasci gaussiani, faremo una misura dell'area del punto focale collimato dalla lente. La potenza del raggio uscente viene misurata da un power-meter.

Lamina $\frac{\lambda}{2}$ e Polarizzatore Siccome una parte delle nostre misure riguarda lo studio della dipendenza dell'intensità di seconda armonica rispetto all'intensità del raggio incidente, dobbiamo utilizzare uno strumento che ci permetta di variare quest'ultima. Imponiamo il passaggio del raggio in un sistema composto da una lamina $\frac{\lambda}{2}$ e da un polarizzatore; il primo strumento a deviare il campo elettrico incidente lungo una determinata direzione, il secondo a permettere il passaggio di una sola componente del campo elettrico. Ruotando la lamina $\frac{\lambda}{2}$ siamo quindi in grado di variare l'intensità del raggio uscente, inoltre non c'è pericolo di perdere in generalità poiché non ci sono angoli di polarizzazione privilegiati per i nostri campioni.

Dopo essere passato per il polarizzatore, il fascio laser viene deviato ma, stavolta, non con un semplice specchio bensì, con un divisore di fascio (*beam splitter*). Questo strumento è uno specchio che riflette quasi tutto il fascio incidente ma ne trasmette una piccola parte ($\sim 8\%$). Questo piccolo raggio trasmesso ci servirà come riferimento per l'intensità del raggio incidente. Per misurare questa piccola intensità utilizziamo un *fotodiodo*.

Fotodiodo è uno strumento in grado di convertire in corrente il segnale luminoso che recepisce. Su di esso c'è un'area attiva del diametro di 1mm che rileva l'intensità della luce incidente. La curva di risposta del fotodiodo è, come si può vedere in Figura ??, molto più sensibile alla luce di una frequenza d'onda vicino a 800nm che è proprio la lunghezza d'onda del nostro laser. Il fotodiodo che utilizziamo è un Thorlabs DET210 con una capacità di conversione che dipende dalla lunghezza d'onda della luce e che, nel nostro caso ($\lambda \sim 800\text{nm}$) vale $Re = 0.4\text{A/W}$. Il fotodiodo è collegato, tramite

un cavo BNC, all'oscilloscopio che, avendo una resistenza interna, traduce il valore di corrente del fotodiodo in un valore in tensione. Tale impedenza interna può però essere regolata su due valori 50Ω o $1M\Omega$. Se vediamo il fotodiodo come un circuito RC, esso avrà un tempo di rilassamento $\tau = RC$. Per aumentare questo tempo di rilassamento, regoliamo l'impedenza interna su $1M\Omega$ in modo da diminuirne il tempo di risposta (che è inversamente proporzionale a τ). Così facendo siamo in grado di vedere un segnale continuo dovuto all'integrazione dei tanti picchi di segnale corrispondenti agli impulsi di luce incidenti.

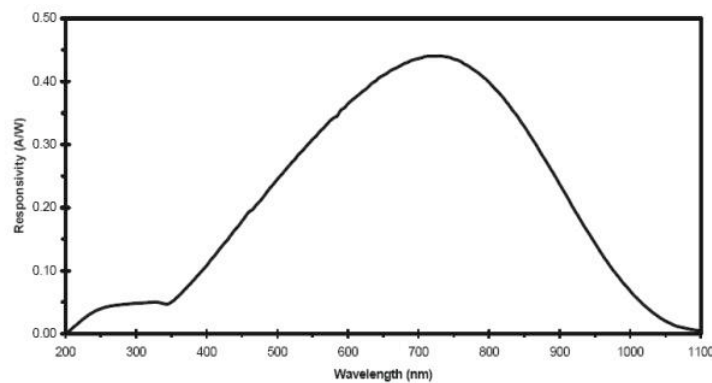


Figura 4.2: Curva di risposta del fotodiodo

Siamo arrivati al punto in cui, dal beam splitter, otteniamo due raggi, uno rilevato dal fotodiodo, l'altro indirizzato su uno speciale specchio chiamato *specchio dicroico*.

Specchio dicroico Esso ha la capacità di trasmettere soltanto certe frequenze d'onda e rifletterne certe altre. Noi ne utilizziamo uno (...) che trasmette a 800 nm e riflette a 400 nm. In sostanza, lungo il percorso d'andata con luce a 800 nm, esso non altera il raggio laser che, grazie ad uno

specchio metallico, indirizziamo perpendicolarmente al piano ottico, verso il basso, all'interno di un *microscopio*.

Microscopio Quello da noi utilizzato è un Newport M-20X; il raggio che passa nel microscopio converge nel fuoco concentrando la sua energia su una superficie minore e aumentando, di conseguenza, la sua intensità. Questo passaggio è necessario per la generazione di seconda armonica. La distanza focale di questo microscopio è di 1.7 mm. Ora, siccome l'impulso del nostro raggio ha una modulazione gaussiana, utilizzando la teoria della propagazione dei fasci gaussiani, siamo in grado di calcolare la profondità del fuoco e il diametro dello spot.

Un fascio gaussiano collimato da una lente si comporta come in Figura ??.

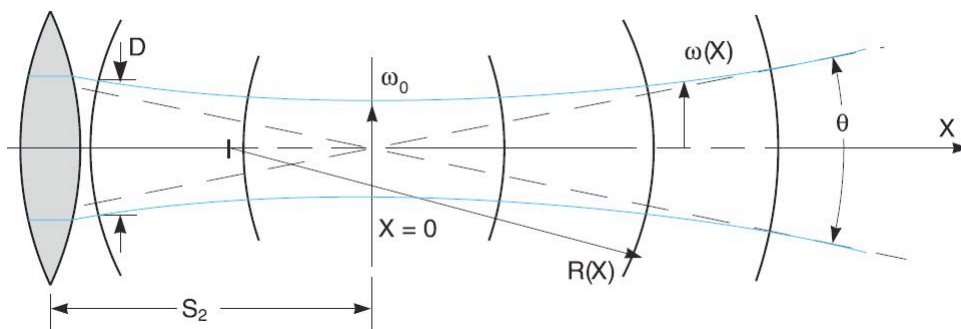


Figura 4.3: Propagazione di un fascio gaussiano in un microscopio

Dalla figura si vede che la larghezza dello spot è una funzione di x , $w(x)$. La larghezza minima w_0 è detta *waist*. Per un raggio di lunghezza d'onda λ , a una distanza x lungo il raggio, la larghezza dello spot è data da:

$$w(x) = w_0 \sqrt{1 + \frac{x^2}{x_0^2}} \quad (4.1)$$

dove

$$x_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (4.2)$$

è chiamato *Lunghezza di Rayleigh*

Il diametro dello spot nel fuoco è espresso come:

$$d_0 = 2w_0 = \frac{2\lambda f}{\pi D} \quad (4.3)$$

dove f è la distanza focale del microscopio, λ la lunghezza d'onda della luce e D il diametro dello spot prima di entrare nel microscopio. Inserendo nella formula il valore noto di f , il valore di $D = (3.3 \pm 0.3)$ preso dai lavori precedenti si trova che il diametro dello spot nel fuoco dovrebbe essere:

$$d_0 = (1.5 \pm 0.5) \mu m \quad (4.4)$$

Confrontando questo valore con quello ottenuto sperimentalmente nel Capitolo: *Misure*

Continuando lungo il percorso del raggio laser, siamo passati attraverso il microscopio e siamo arrivati sul campione. Una volta che il raggio ha raggiunto il campione, avvengono tutti quei fenomeni di ottica non lineare discussi in precedenza e si genera, finalmente, la seconda armonica. Dal campione verrà riflesso sia il raggio laser (ω) che la seconda armonica (2ω). Quest'ultima ha una frequenza doppia rispetto a quella del laser incidente e, quindi, una lunghezza d'onda dimezzata; siamo entrati con un laser a 800 nm , usciamo con un raggio contenente sia l'infrarosso che il blu a 400 nm della seconda armonica. Il raggio riflesso (contenente anche il blu) dovrà ripercorrere completamente lo stesso percorso fatto dalla raggio incidente. Poichè la superficie dei campioni non è regolare, non è detto che il raggio riflesso si diriga completamente nella lente del microscopio quindi, oltre a poter regolare la

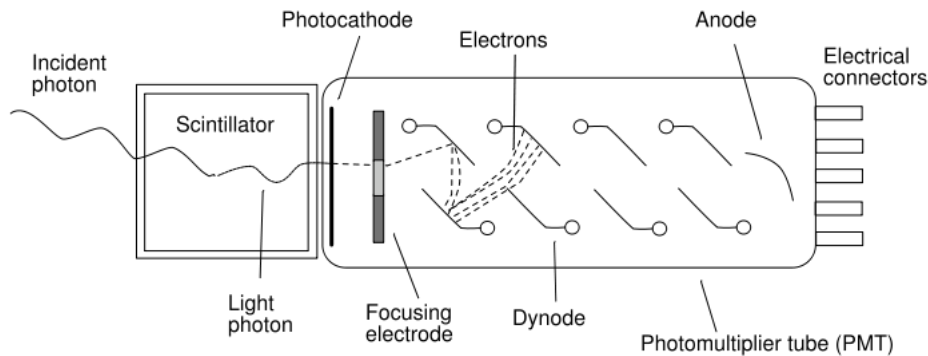


Figura 4.4: Principio di funzionamento del fototubo

distanza del campione dal fuoco, il supporto deve avere anche la possibilità di variare angolazione per far sì che, localmente, la superficie del campione risulti perpendicolare al raggio incidente. Per essere sicuri di trovarsi in questa situazione, basta controllare il segnale di SH sull'oscilloscopio, quando è massimo, la seconda armonica è perfettamente indirizzata. Dopodichè viene deviato dallo specchio metallico e arriva sullo specchio diecrico. Ora, questo specchio lascia passare, inalterate, soltanto lunghezze d'onda di 800 nm, mentre riflette quelle a 400 nm, per cui la seconda armonica verrà completamente riflessa, divisa dal rosso e indirizzata nel *fototubo*

Fototubo o Fotomoltiplicatore è lo strumento più importante per le nostre misure dal momento che, per poter misurare la bassa intensità della seconda armonica, è necessario disporre di una altissima sensibilità. Il fototubo è l'oggetto adatto poichè è sensibile anche al singolo fotone ma, per comprenderlo meglio, diamo un'occhiata al suo funzionamento illustrato in Figura ??.

Esso è uno strumento che converte la luce rilevata in corrente elettrica

misurabile tramite oscilloscopio. Esso è costituito da un tubo in vetro al cui interno è stato praticato il vuoto, in cui è presente un *anodo* e diversi elettrodi che costituiscono i *dinodi*. I fotoni colpiscono, attraverso una finestra di ingresso, una superficie chiamata *fotocatodo*, ricoperta di uno strato di materiale che favorisce l'effetto fotoelettrico. A causa di questo effetto vengono emessi degli elettroni che sono focalizzati da un elettrodo verso lo stadio di moltiplicazione. Questo stadio è costituito da una serie di elettrodi ciascuno caricato ad un potenziale superiore al precedente. Il primo elettrone emesso per effetto fotoelettrico subisce una accelerazione a causa del campo elettrico e acquisisce energia cinetica. Quando l'elettrone colpisce il primo elettrodo del dinodo provoca l'emissione secondaria di diversi elettroni di minore energia. La struttura del sistema è progettata in modo che ciascun elettrone emesso da un elettrodo venga accelerato e provochi l'emissione di diversi elettroni dall'elettrodo successivo. Si ha così un fenomeno a cascata per cui un singolo fotone che colpisce il fototubo provoca il passaggio di moltissimi elettroni. Al termine della sequenza di elettrodi gli elettroni colpiscono un anodo, ed un rapido impulso elettrico indica il rilevamento del fotone. Il fattore di amplificazione è dato dal *coefficiente di emissione di elettroni secondari* δ (numero di elettroni emessi dal dinodo per elettrone incidente). Proprio per questo il guadagno di un fototubo dipende dal numero n di dinodi ed è dato da

$$G = \delta^n$$

Abbiamo usato un Hamamatsu R7518 per rilevare l'intensità di seconda armonica; le sue caratteristiche spettrali sono quelle in Figura ??:

Collegandolo ad un oscilloscopio tramite un BNC si legge il valore in

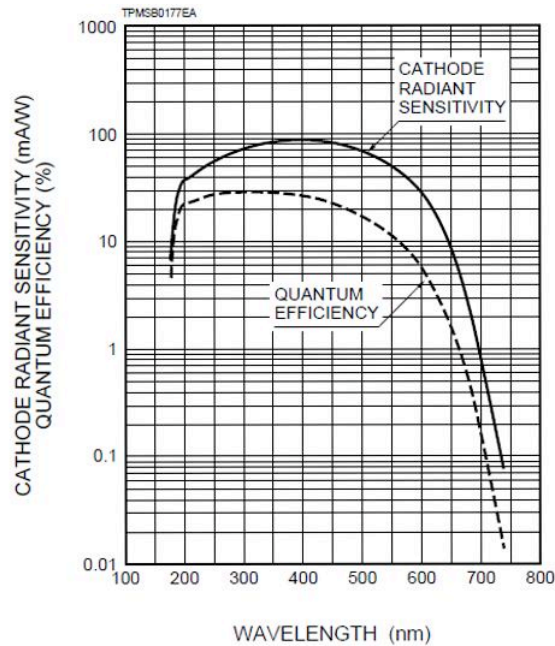





Figura 4.5: Risposta del fototubo in funzione di λ

tensione ad esso collegato. Anche in questo caso l'impedenza interna dell'oscilloscopio deve essere regolata su $1M\Omega$. Inoltre, per diminuire il rumore, non acquisiamo il valore istantaneo ma quello mediato su un certo intervallo di tempo.

Per poter usare questo strumento è importante lavorare completamente al buio poiché  ad ottenere dati per nulla ragionevoli, la luce del laboratorio potrebbe  rovinare irreparabilmente i dinodi dello strumento. Anche la sola luce emessa dai monitor dei vari strumenti può inficiare notevolmente le misure; si richiede la massima attenzione.  molto importante, inoltre, misurare il rumore di fondo inevitabilmente presente nel laboratorio per poterne tenere conto.

Filtri Per avere dati affidabili, dobbiamo essere sicuri che nel fototubo incida soltanto la seconda armonica. Nella struttura del fototubo è già contenuto un filtro interferenziale ma, sul percorso che la seconda armonica compie prima di entrarvi, è utile posizionare dei filtri blu i quali lasciano passare soltanto luce con lunghezza d'onda intorno ai 400 nm. Ovviamente, quando andremo a calcolare l'efficienza di conversione dei campioni, dovremo tenere conto anche di questi filtri e del loro grado di filtraggio.

I filtri che usiamo noi sono i BG18 e, nel grafico in Figura ?? sono mostrate le loro caratteristiche; come si può vedere, il loro coefficiente di trasmissione delle frequenze vicine ai 400 nm è circa 0.9, quello per le frequenze vicine agli 800 nm è, invece, molto basso.

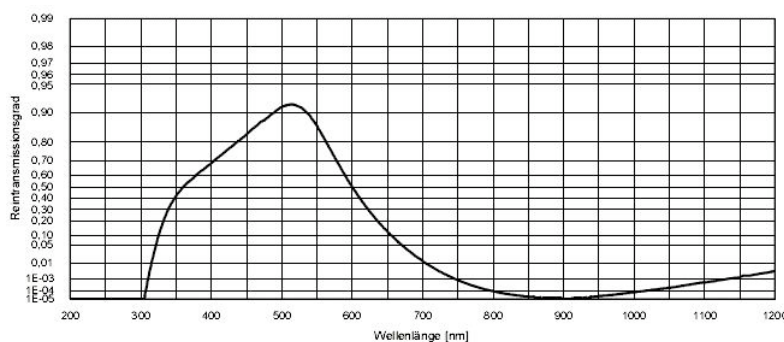


Figura 4.6: Coefficiente di trasmissione del filtro blu BG18

Per la misura su tre campioni di KNaNS, noi utilizzeremo due di questi filtri poichè sono sufficienti per restare nel range di lavoro del fototubo; le misure fatte sul BBO richiedono anche l'utilizzo di filtri neutri per evitare che il fototubo saturi. Noi utilizziamo filtri NG5 e NG11 che hanno le caratteristiche mostrate nei rispettivi grafici in Figura ?? e in Figura ??.

Per ogni tipo di filtro abbiamo anche effettuato delle misure sull'effetto che essi hanno sulla nostra seconda armonica. Abbiamo massimizzato il segnale

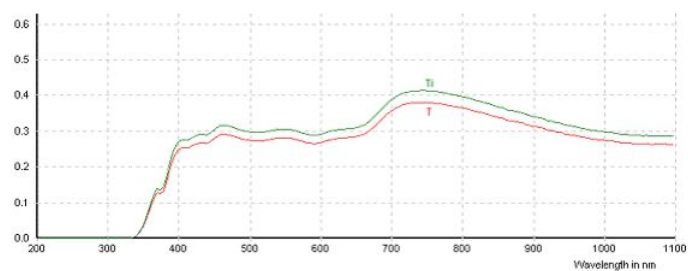


Figura 4.7: Coefficiente di trasmissione del filtro neutro NG5

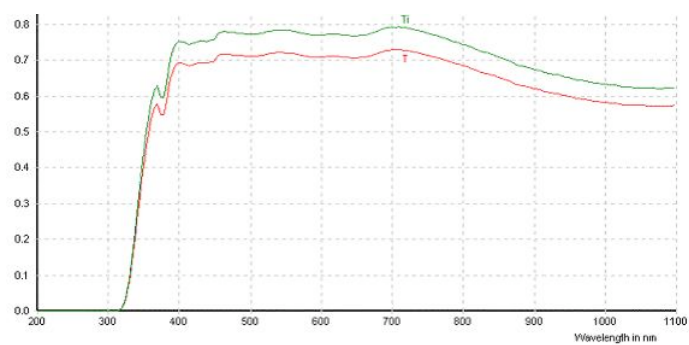


Figura 4.8: Coefficiente di trasmissione del filtro neutro NG11

di SH sull'oscilloscopio e, mantenendo inalterate le condizioni, **toglievamo**,
uno alla volta, i filtri e **annotavamo** la variazione di intensità rilevata dal-
l'oscilloscopio. Da questi dati derivano i coefficienti di trasmissione mostrati
in Tabella **??**:

Filtri	<i>BG18</i>	<i>NG5</i>	<i>NG11</i>
Coefficiente di trasmissione	0.43	0.39	0.61

Risulta di notevole importanza considerare la presenza di questi filtri
quando si andranno a considerare le intensità di generazione di seconda
armonica.

5. MISURE

A questo punto, siamo pronti ad illustrare quali sono stati i risultati ottenuti dalle nostre misure. Ma prima di farlo, è utile fornire alcune indicazioni su come si è agito, quali sono stati gli accorgimenti rispettati, qual è il modo migliore per fare questo tipo di misure.

5.1 Come si è lavorato

Ora cerchiamo di ripercorrere tutte le azioni principali utili da tenere presente per una eventuale ripetizione di tali esperienze.

Per quanto riguarda il laser, è utile sapere che, prima di regolarlo, calibrarlo e massimizzarne la potenza, bisogna attendere almeno un'ora da quando lo si accende; infatti deve avere il tempo necessario per riscaldarsi e raggiungere un regime stabile. Se le varie calibrazioni vengono fatte quando il laser non è ancora a regime, si rischia di doverle ripetere successivamente o di raccogliere dati poco significativi.

Innanzitutto è utile spendere del tempo montando personalmente le apparecchiature e gli strumenti in modo da familiarizzare con essi ed essere pronti se, per qualsiasi motivo, dovesse esserci la necessità di cambiarne le regolazioni.

Una volta fatto questo, bisogna lavorare sull'inclinazione dei vari specchi per essere sicuri che il raggio laser, il cui diametro visibile su una cartina è di circa 4 mm, vada proprio a cadere sulla lente del microscopio. È bene controllare questo fatto ogni volta che si entra in laboratorio poichè, per esperienza personale, a causa di questa piccola disattenzione si può perdere parecchio tempo.

Quando si è sicuri che la traiettoria del raggio laser non dovrà più essere variata, bisogna posizionare nel migliore dei modi il fotodiodo e il fototubo. Sul fotodiodo si può lavorare anche alla luce poiché, come abbiamo visto, non ne viene da essa influenzato. Per cui, una volta fissato il fotodiodo al banco ottico, si regola la sua angolazione fino a che viene massimizzato il valore letto sull'oscilloscopio; in questo modo si è sicuri che il tenue raggio uscente dal beam splitter, cada proprio perpendicolare alla superficie attiva del fotodiodo. Questo è molto importante poiché è il valore di riferimento di intensità incidente sul quale basiamo le misure di seconda armonica. Bisogna anche tenere controllata la potenza uscente del laser e verificare che non ci siano variazioni troppo marcate, perchè questo potrebbe essere indice di un disallineamento del laser o di una irregolarità nella sequenza degli impulsi.

Per il fototubo la cosa è leggermente più complicata poiché, nonostante la sua imboccatura sia decisamente più larga rispetto a quella del fotodiodo, essendo molto sensibile, lo si deve sistemare in assenza di luce. Comunque,

dal momento che dallo specchio diecrico esce anche una piccola componente di rosso, togliendo i filtri blu, si riesce a vedere la traiettoria del raggio per poterlo indirizzare nel fototubo.

A questo punto, tutto è pronto, basta solo mettere il campione sotto il fascio laser e vedere quanta seconda armonica produce. Ma, **non appena** si è certi di riuscire a leggere qualcosa dall'oscilloscopio, è utilissimo fare una serie di misure qualitative per rassicurarsi su quello che si sta facendo:

- annotare sempre il valore di potenza in uscita del laser letto dal power meter;
- bloccare il fascio laser, spegnere tutte le luci del laboratorio, coprire i vari monitor, accendere il fotodiodo e il fototubo e annotare i valori di fondo che essi rilevano. Fare questo prima di ogni serie di misure;
- liberare il fascio laser e notare la variazione del valore rilevato dal fotodiodo. Se non c'è variazione, o il laser è interrotto da qualche parte o il fotodiodo non è ben allineato;
- in presenza del cristallo non lineare variare la distanza di esso dal fuoco del microscopio e notare la variazione di segnale di SH rilevata dal fototubo. Se ciò non accade controllare l'oscilloscopio e settarlo ad una sensibilità inferiore;
- una volta certi della presenza del segnale di SH, provare a bloccare i raggi appena prima del fotodiodo e del fototubo: i valori dovranno coincidere con quelli del rumore di fondo annotati in precedenza;
- appena prima del fototubo provare a interporre un filtro rosso, esso lascia passare solo la luce rossa e blocca tutto il resto, anche la SH. Il

fototubo non deve rilevare più il segnale. Così facendo si è certi che nel fototubo entra solo la luce blu della SH.

Queste prove, se effettuate con esiti positivi, ci rassicurano sulla bontà e la validità dei dati che prenderemo.

5.2 Risultati

Il nostro scopo era quello di riuscire a fornire dei dati sul comportamento non lineare dei campioni KNaNS che avevamo a disposizione. L'utilità principale era quella di poter fare un confronto fra le efficienze di SHG fra questi campioni relative a quella del BBO. Per schematizzare il nostro lavoro potremmo fare la seguente suddivisione:

1. Dipendenza dell'intensità del segnale di SH rispetto a quella del laser incidente;
2. efficienza di SHG dei vari campioni relativa a quella del BBO;
3. probabile dipendenza della SHG dalla temperatura.

5.2.1 Dipendenza dell'intensità del segnale di SH rispetto a quella del laser incidente

Supponiamo di non conoscere che il segnale rilevato dal fototubo sia dovuto ad un fenomeno di ottica non lineare. Andiamo allora a valutare di che tipo è la dipendenza di intensità fra il raggio blu riflesso e quello incidente. Identifichiamo il raggio rosso incidente con (ω) e quello blu riflesso con (2ω) .

I dati che andremo a interpolare sono i valori in tensione che leggiamo dall'oscilloscopio. Per questo motivo le nostre misure non sono misure di intensità assolute ma, dal momento che sappiamo che i dati acquisiti in tensione sono lineari con l'intensità reale, fare delle misure relative è comunque ragionevole ed efficace.

Allora regoliamo la **rotazione del polarizzatore** in modo da massimizzare il segnale del fotodiodo, posizioniamo il campione sul supporto, regoliamo la distanza dal fuoco del microscopio, variamo gli altri gradi di libertà per massimizzare il segnale del fototubo e annotiamo i due valori in tensione. Ora ruotiamo leggermente **il polarizzatore** per diminuire l'intensità del raggio incidente e prendiamo i valori, e così via.

Nel grafico in Figura ?? sono mostrati i risultati ottenuti.

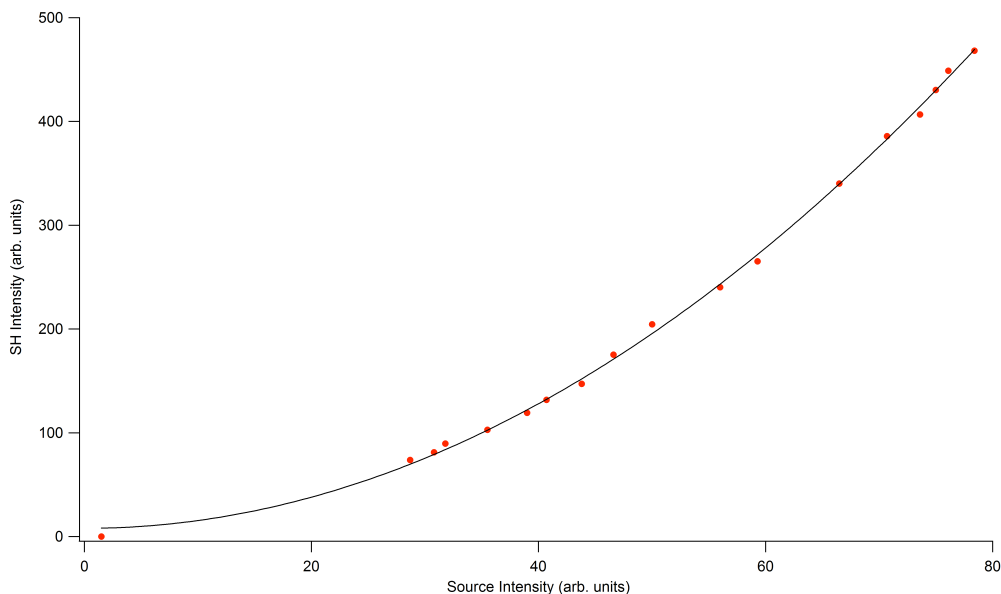


Figura 5.1: Dipendenza tra l'intensità della sorgente e quella della SH

I dati sono fittati da una polinomiale al secondo ordine con il termine

lineare nullo; questo ci permette di affermare che:

$$I(2\omega) \propto I^2(\omega) \quad (5.1)$$

Se mettiamo i dati in un grafico in scala logaritmica dovremo ottenere la seguente relazione:

$$\log I(2\omega) \propto 2 \log I(\omega) \quad (5.2)$$

E, come mostrato in Figura ?? la retta che interpola i dati ha un coefficiente angolare $m = 2$

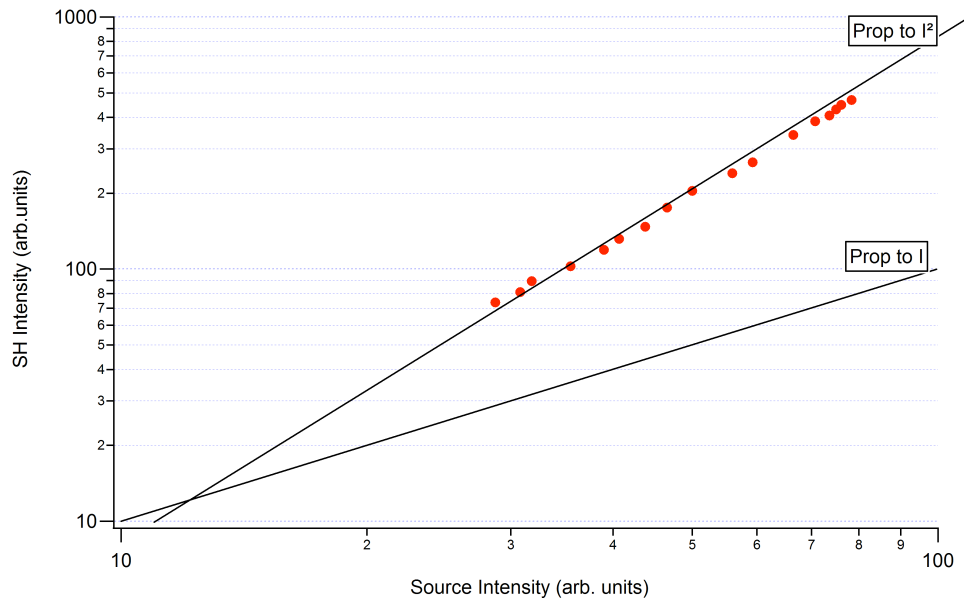


Figura 5.2: Linearità tra $\log I(2\omega)$ e $\log I(\omega)$. Il grafico ha gli assi in scala logaritmica.



La relazione $I(2\omega) \propto I^2(\omega)$ ci conferma che il segnale entrante nel fototubo è dovuto ad un fenomeno di ottica non lineare, più precisamente la generazione di seconda armonica.

5.2.2 Efficienza relativa con il BBO

Una volta che siamo sicuri di avere a che fare con la SHG possiamo fare i confronti fra le efficienze dei vari campioni. L'efficienza è definita come:

$$\varepsilon = \frac{I(2\omega)}{I(\omega)}$$


Per acquisire i vari dati bisogna procedere in questa maniera:

- massimizzare il segnale incidente ruotando opportunamente  il polarizzatore  (in caso, è possibile anche levarlo completamente);
- massimizzare il segnale di SH posizionando il campione esattamente nel fuoco del microscopio e regolandone l'inclinazione per indirizzare al meglio il raggio riflesso nel microscopio;
- cambiare il punto del campione su cui è valutata la SHG per poter apprezzare anche delle eventuali disomogeneità di efficienza tra i vari punti dello stesso campione;
- effettuare le prove sui tre campioni da analizzare.

Pur non essendo stato semplice riuscire a trovare regolazioni del laser che ci permettessero di avere un segnale incidente stabile per tutto il tempo necessario, siamo comunque abbastanza soddisfatti delle misure sui vari campioni poichè sono state prese una di seguito all'altra, in condizioni stabili di filtri utilizzati e di rumori di fondo. Siamo certi che fare dei rapporti relativi fra di loro sia abbastanza significativo.

Il senso di queste misure è di poter fare un confronto immediato fra le efficienze dei nostri vetri riferite all'efficienza assoluta della polvere di BBO.

Ovviamente non abbiamo potuto fare un confronto con i dati presi precedentemente poichè non potevamo avere un riscontro assoluto, per questo le misure sulle due polveri di KNS e di BBO sono state rifatte nelle condizioni fisiche in cui si trovava il nostro sistema in modo da poter farne un confronto relativo.

Diamo anche delle brevi informazioni sulla metodologia utilizzata per prendere le misure sui campioni KNS e BBO dal momento che si presentavano sottoforma di polvere. Questa polvere veniva messa su uno specchio metallico e pressata da un pezzo di vetro trasparente molto fine in modo da permettere di avvicinarsi alla polvere quanto bastava per tirarsi nel fuoco. Dal momento che il semplice vetro  ha la proprietà di assorbire i raggi ultravioletti con frequenze molto vicine a quelle della seconda armonica, abbiamo fatto una prova qualitativa per essere sicuri che quest'ultima non venisse filtrata. Togliendo il vetrino e mettendolo davanti al fototubo abbiamo verificato che esso era praticamente trasparente. Ovviamente, e questo lo si capisce anche dal grafico, utilizzando le polveri, a causa della conformazione poco regolare, le misure avranno uno scarto e una disomogeneità maggiori rispetto a quelle sui campioni solidi.

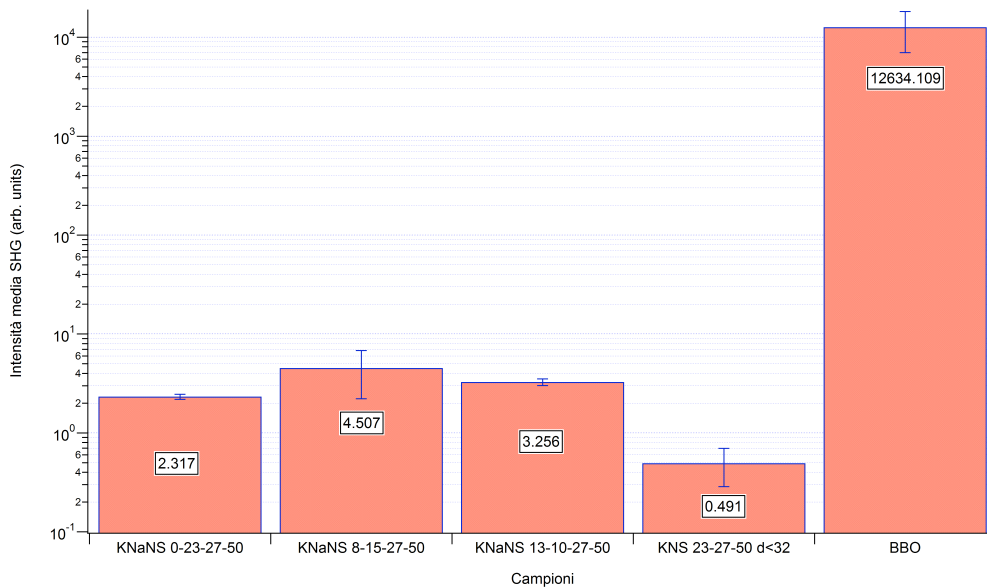


Figura 5.3: Istogramma delle efficienze di generazione di seconda armonica; come barra d'errore si è usata una deviazione standard


Da notare che il campione KNaNS 8-15-27-50 è quello più efficiente ma anche quello che presenta lo scarto maggiore. Lo dimostra la Tabella ??

Campione	Deviazione standard
KNaNS 0-23-27-50	0.136
KNaNS 8-15-27-50	2.296
KNaNS 13-10-27-50	0.251
KNS 23-27-50 d min 32	0.205

Di seguito è presentata una tabella con la percentuale di conversione dei campioni rispetto a quella del BBO

Dai grafici e dalle tabelle si può affermare che:

- tutti e tre i campioni di KNaNS sono più efficienti rispetto a quelli di





Campione	Efficienza di conversione rispetto al BBO (%)
KNaNS 0-23-27-50	0.018
KNaNS 8-15-27-50	0.036
KNaNS 13-10-27-50	0.026
KNS 23-27-50 d min 32	0.004

KNS;

- fra i campioni di KNaNS quello più efficiente è il KNaNS 8-15-27-50 che però presenta lo scarto maggiore;
- la superficie più regolare sembra essere quella del campione KNaNS 0-23-27-50;
- il rapporto con l'efficienza del BBO è molto piccolo.

Quando parliamo di disomogeneità, per dare un'idea della scala su cui è valutata, è utile fornire anche un'indicazione sul diametro dello spot nel fuoco del microscopio. Per farlo utilizziamo il metodo del *Knife Edge*.

Cambiamo il supporto del campione con un traslatore piezoelettrico che è uno strumento in grado di trasformare una tensione applicata in uno spostamento con una sensibilità di 0.01 μm . Su questo traslatore fissiamo una lama piatta (un taglierino, una lama ). Quando il raggio uscente dal microscopio batte con tutta la sua sezione sulla lama, viene completamente riflesso e indirizzato in un fotodiodo. Se noi spostiamo la lama in modo che una parte del raggio passi oltre e non venga riflessa, ovviamente il valore letto dal fotodiodo sarà inferiore. Nel grafico Figura ?? mettiamo  l'intensità riflessa in funzione della posizione della lama.

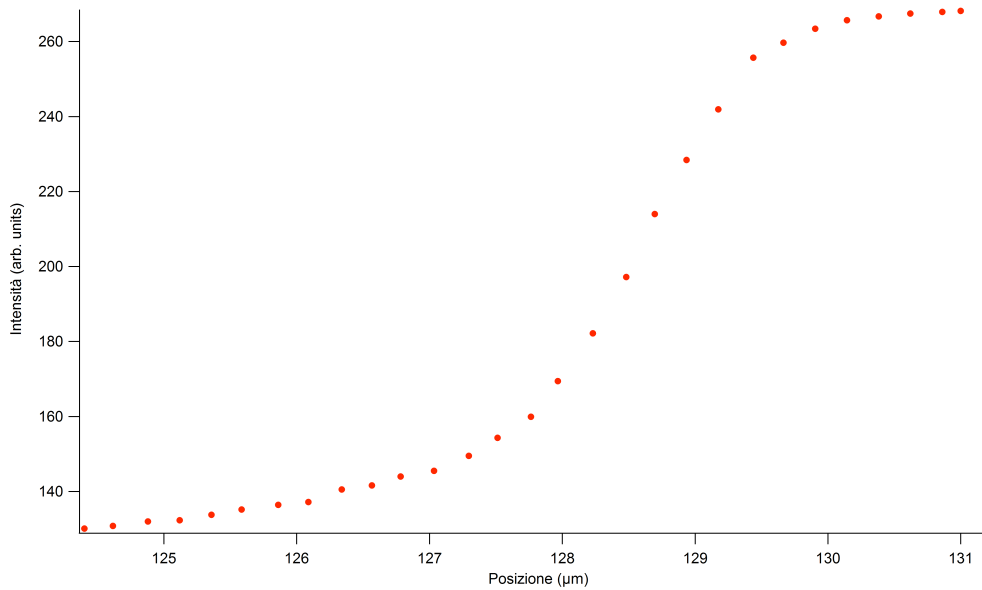


Figura 5.4: Intensità riflessa con il knife edge

Ora, per valutare il diametro dello spot, differenziando, otterremo una gaussiana (nel grafico in Figura ??) della quale valuteremo la larghezza.

La larghezza della gaussiana, nonchè diametro dello spot nel fuoco del microscopio, risulta essere

$$d = (1.56 \pm 0.08)\mu m$$

la validità di questo valore è confermata anche dalla (3.4). La disomogeneità riscontrata sui campioni è quindi dell'ordine del micrometro.

5.2.3 Probabile dipendenza dalla temperatura

Durante le misure sul campione KNaNS 0-23-27-50 con una frequenza di ripetizione del laser di 1.09MHz, si è notato che, dopo aver massimizzato il segnale di SH, esso, a fronte di una stabilità dell'intensità del raggio

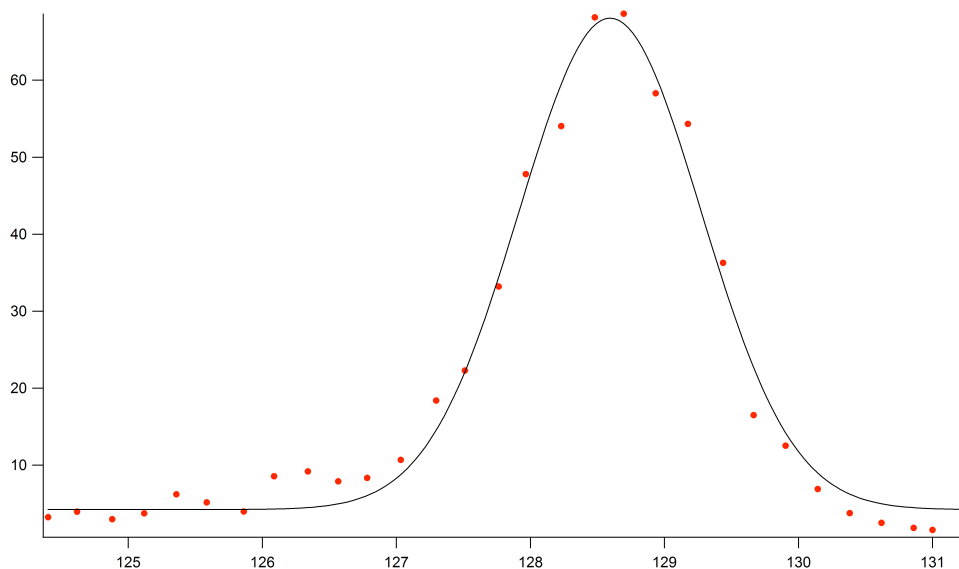


Figura 5.5: Variazione di intensità in funzione della posizione

incidente, aumentava. Allora abbiamo provato a prendere dei dati quantitativi sul fenomeno. Non appena massimizzata la produzione di SH, ogni 20s ne prendevamo il valore. Abbiamo fatto due prove sul campione KNaNS 0-23-27-50, una sul campione KNaNS 8-15-27-50 e una sul BBO.

Guardando il grafico in Figura ??, l'ipotesi che spiega questo fenomeno potrebbe essere che, lavorando ad una frequenza di ripetizione sufficientemente alta, l'energia media che assorbita dal campione è più elevata; per cui è lecito pensare che, localmente, il campione subisca un aumento di temperatura il quale, per qualche motivo, porta a un conseguente aumento dell'intensità di SH.

Per provare questa ipotesi, infatti, sul campione KNaNS 0-23-27-50, abbiamo diminuito la frequenza di ripetizione del laser per diminuirne l'energia media e, in effetti, non si è notato nessun aumento di intensità di SH. Le

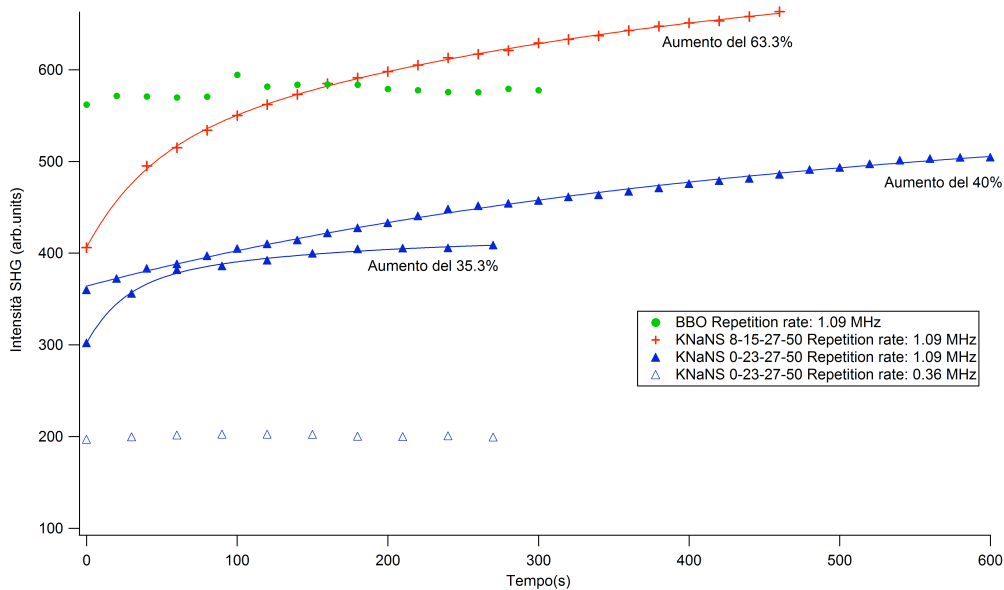


Figura 5.6: Dipendenza di SHG dal tempo

prove con diversa frequenza di ripetizione, sono state effettuate anche sulla polvere di BBO ottenendo, però, valori pressoché costanti nel tempo.

Volendo, però, avere dati più omogenei e riguardanti tutti e tre i campioni, abbiamo ripetuto le prove mantenendo inalterate le condizioni iniziali di raggio incidente. Utilizzando una frequenza di ripetizione di 1.09 MHz, abbiamo preso i dati ogni 30 s per un tempo di 6 min. Il risultato è mostrato in Figura ??.

Come si può notare, i valori iniziali di seconda armonica rispettano l'ordine di efficienza riportato in figura Figura ?? ma, nel tempo, a fronte di un aumento di intensità di SH per il campione KNaNS 0-23-27-50, abbiamo una diminuzione di intensità per i campioni KNaNS 8-15-27-50 e KNaNS 13-10-27-50. Questo fatto è difficilmente spiegabile poiché sembra contraddire il grafico precedente ma, a questo proposito, è utile fornire ulteriori particolari:

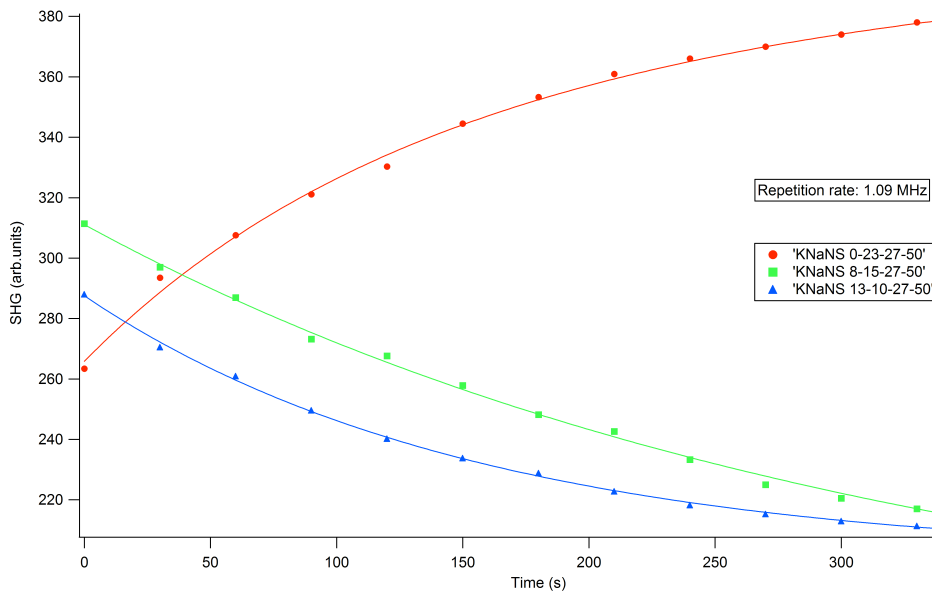


Figura 5.7: Dipendenza di SHG dal tempo

- se nel grafico in figura Figura ?? l'intensità del campione KNaNS 8-15-27-50 aumenta, pur lavorando con lo stesso repetition rate, nella prova successiva diminuisce. Ma bisogna considerare anche il fatto che, pur non avendo preso i dati, in diversi punti sulla superficie del campione, abbiamo riscontrato nuovamente un aumento di intensità di SH nel tempo. Sembra quindi che, per il campione KNaNS 8-15-27-50, il comportamento nel tempo dipenda dal punto su cui agisce il laser incidente. Forse non è un caso che proprio questo campione presenti delle disomogeneità di SHG più marcate che negli altri campioni.
- Per il campione KNaNS 13-10-27-50 è l'unica prova quantitativa che abbiamo a disposizione. Altre prove qualitative hanno però confermato questo comportamento.
- L'unica certezza sembra esserci sul campione KNaNS 0-23-27-50; infat-

ti, per ogni prova effettuata, anche su diversi punti della sua superficie, si nota sempre un aumento di SHG e questo aumento sembra tendere ad un valore molto superiore al valore di partenza degli altri due campioni. E si è certi anche del fatto che questo aumento dipenda dal repetition rate del laser con cui si lavora.

6. CONCLUSIONI

Per fare un riassunto di quanto detto, si può concludere dicendo che:

- I nuovi campioni KNaNS producono più seconda armonica rispetto a quelli precedenti di KNS anche se si è parecchio distanti dall'efficienza del BBO;
- il fenomeno dell'aumento d'intensità di SH nel tempo è molto interessante ma, il suo comportamento sui vari campioni è poco riproducibile ad eccezione di quello del campione KNaNS 0-23-27-50;

~~per quanto possa valere, i dati qui riportati sono confermati, almeno qualitativamente, anche dall'analisi ad occhio nudo in quanto, sui campioni, era possibile vedere, mediante l'uso di occhiali protettivi, un piccolo spot blu, e nemmeno troppo poco intenso.~~



BIBLIOGRAFIA

- [1] Luca Bignardi, *Second Harmonic Generation with ultra-short laser pulses in KNS ceramic glasses*
- [2] Hart.R.,J.W. Swanziger *et al.*, Applied physics letters 6, 85 (2004)
- [3] Murugan G.S., Varma K.B.R., Journal of Non-Crystalline Solids 279,1-13 (2001)
- [4] Xu X.W., T.C. Chang *et al.*, Journal of Crystal Growth, 225, 458-464 (2001)
- [5] Baudrier-Raybaut M., *et al.* Nature 432, 374-376 (2004)
- [6] Rosencher E., Vinter B. *Optoelectronics*, Cambridge, 2002
- [7] Yariv A., *Quantum electronics*, New York, 1989
- [8] Pernice P., Aronne A., *et al.* Journal of Non-Crystalline Solids 306, 238-248 (2002)

-
- [9] Shioya K., Komatsu T., *et al.* Journal of Non-Crystalline Solids 189, 16 (1995)
- [10] Sigaev V.N., Pernice P., Aronne A., *et al.* Journal of Non-Crystalline Solids 292, 59 (2001)
- [11] Skipetrov Sergey E., Nature 432, 285-286 (2004)
- [12] Miller R.C., Phys. Rev. 134, A1313-1319 (1964)
- [13] Dewey C.F., Hocker L.O., Appl. Phys. Lett. 26, 442-444 (1975)