

# Realizzazione di una pompa Raman ad impulso al femtosecondo ottenuto con il metodo dei prismi incrociati

Di Valeria Caprettini e Diego Di Battista

## **Il laboratorio Femtoscopy e cenni di tecnica Pump and Probe**

Il laboratorio Femtoscopy si propone di studiare quei fenomeni di trasformazione biologico molecolari che avvengono su scale temporali dell'ordine del femtosecondo ( $10^{-15}$ s). A tal fine si utilizza la tecnica di misurazione chiamata PUMP and PROBE. Con questa si investe il campione da analizzare con impulsi di "pompa", PUMP, innescando così una trasformazione nel campione stesso. Dopo un intervallo di tempo regolabile, il campione viene investito da un secondo impulso "sonda", PROBE, che consente di effettuare misure che ne rivelano le proprietà di interesse. Infatti monitorando l'impulso probe in funzione del ritardo temporale, si ottengono informazioni sul processo innescato dal pump con una risoluzione temporale fondamentalmente limitata solo alla durata degli impulsi.

Sappiamo che nell'immagine biologica la spettroscopia Raman offre molti vantaggi legati all'uso della luce visibile: il contributo dato dall'acqua allo spettro è piccolo e le sorgenti laser ultraveloci sono reperibili in questo range. Ma l'implementazione del pump and probe alla spettroscopia Raman tradizionale può essere utilizzata per indagare cambiamenti strutturali nell'ordine dei picosecondi; ora, se la risoluzione spettrale ottenibile è inversamente proporzionale alla durata dell'impulso a causa del limite di Fourier, sotto al picosecondo si perde gran parte delle informazioni sulla struttura del segnale Raman.

Per aggirare il problema si utilizza la tecnica FSRS (Femtosecond Stimulated Raman Spectroscopy), che consente di disaccoppiare risoluzione spettrale e temporale tramite l'impiego di un ulteriore impulso di probe. In questo caso quindi il probe è costituito da due impulsi, uno a banda stretta, detto di POMPA RAMAN, e uno la cui durata è dell'ordine del femtosecondo e di larghezza di banda sufficientemente grande da poter agire come campo Stokes per l'acquisizione dell'intero spettro vibrazionale, ottenuto mediante scattering stimolato (detto CONTINUUM di probe).

## Raman spontaneo, stimolato e FSRS

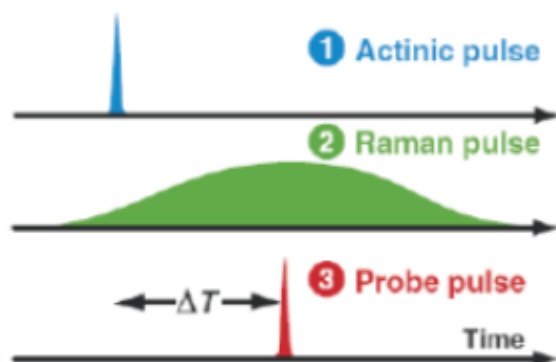


Figura 1: Durata relativa degli impulsi

Nel Raman spontaneo un fascio laser a frequenza  $\omega_P$  illumina il campione e i fotoni diffusi sono quindi dispersi in frequenza e opportunamente rilevati. In questo caso i fotoni Stokes  $\omega_S$  e anti-Stokes  $\omega_{AS}$  vengono generati nel campo di radiazione di punto zero. Le righe Stokes sono il risultato dello scattering anelastico della radiazione incidente, per cui la luce diffusa è spostata verso frequenze minori o maggiori (Stokes o antistokes) di una quantità pari alla frequenza della vibrazione molecolare nel campione,  $\omega_V$ . Con questa tecnica, però, è impossibile ottenere alti rapporti segnale-rumore con tempi di acquisizione brevi. Lo scattering Raman è un processo debole, facilmente nascosto dalla fluorescenza, inoltre bisogna tener conto del LIMITE DI FOURIER per cui è impossibile avere alte risoluzioni spettrali in reazioni che avvengono su tempi del picosecondo.

Invece, il Raman stimolato si verifica quando due fasci di luce, la pompa Raman  $\omega_P$  e lo Stokes probe a frequenza  $\omega_S$ , vanno ad incidere sul campione la cui frequenza vibrazionale  $\omega_V$  è pari alla differenza  $\omega_P - \omega_S$ . In questo caso l'emissione da parte del campione di fotoni a frequenza  $\omega_S$  è stimolata dal campo di probe, si ottengono quindi fotoni emessi collinearmente al probe. Questo permette di migliorare notevolmente il rapporto segnale-rumore e si ottengono valori più alti per l'intensità all'uscita del mezzo Raman rispetto al caso dello scattering spontaneo.

Nella tecnica FSRS, Femtosecond Stimulated Raman Spectroscopy, viene migliorata la classica pump and probe aggiungendo un terzo fascio di probe, un continuum, di durata dell'ordine del femtosecondo e di banda sufficientemente

larga da poter agire come campo Stokes per l'acquisizione dell'intero spettro vibrazionale del campione, ottenuto mediante scattering stimolato. La POMPA ATTINICA dà inizio al processo fotochimico di interesse, ma nella FSRS l'evoluzione del sistema è studiata, dopo un ritardo  $\Delta T$ , dai due impulsi probe responsabili dello scattering Raman stimolato: la pompa Raman (impulso 2 in Fig. 1.) e il continuum (impulso 3 in Fig. 1 ). In questo modo la risoluzione nel dominio delle frequenze è determinata principalmente dalla larghezza di banda del fascio di pompa Raman, oltre che, ovviamente, dallo spettrometro utilizzato; mentre la risoluzione temporale dipende dal ritardo tra il fascio di pump, la pompa attinica e il continuum.

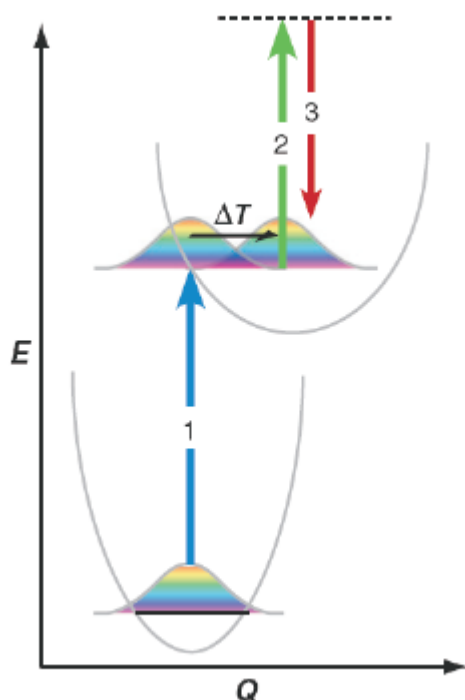


Figura 2: Schema dei livelli per un esperimento FSRS risolto in tempo

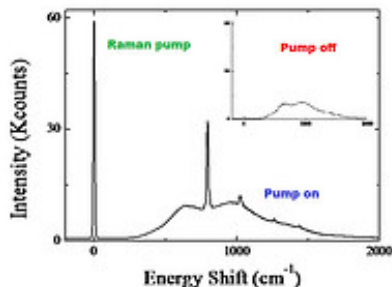


Figura 3: tipico spettro FSRS

## L'Apparato sperimentale

Viene utilizzato un laser marca Coherent costituito da un oscillatore e un amplificatore rigenerativo al titanio zaffiro (Ti:Sa) che emette impulsi al femtosecondo ( $\sim 50 fs$ ), a lunghezze d'onda di  $\lambda \sim 800 nm$  (IR), energie dell'ordine del  $mJ$ , con rate di ripetizione di  $1KHz$ .

Il fascio laser viene suddiviso in tre rami, uno per la realizzazione della pompa Raman, uno per la produzione del continuum di luce bianca tramite processi non lineari, ed il terzo per la pompa attinica.

Per quanto riguarda la pompa Raman è necessario utilizzare tecniche di filtraggio spettrale, tipicamente intorno ai  $15cm^{-1}$ , per ottenere un impulso che permetta di avere una buona risoluzione.

L'impulso ultrabreve di luce bianca e l'impulso a banda stretta, la pompa Raman, vengono fatti coincidere spazialmente e temporalmente sul campione.

La transizione Stokes del campione provoca un trasferimento efficiente di fotoni dalla pompa Raman al probe, per cui lo spettro Raman viene determinato dal guadagno netto dell'impulso probe, ovvero dal rapporto tra il probe in presenza della pompa e il probe in assenza della pompa:

$$Raman\ guadagno = \frac{Probe_{PUMPON}}{Probe_{PUMPOFF}}. \quad (1)$$

Noi abbiamo usato un fascio in uscita dall'OPA iniziale e l'abbiamo splittato nuovamente in due: uno stadio ad energia maggiore, ed uno da utilizzare come continuum.

- Il WLC (white light continuum), creato per scegliere le frequenze, viene generato focalizzando il fascio proveniente dal beam splitter su di un cristallo di zaffiro attraverso una lente. Viene poi fatto passare all'interno di una seconda lente per la collimazione e inviato su di un cristallo selenio-zinco dove avviene il fenomeno chiamato *chirp* per il quale tutte le frequenze all'interno del bianco si allontanano reciprocamente. Questo permette di selezionare quella frequenza utile che insieme all'altro ramo

del fascio ci darà, attraverso una DFG (difference frequency generation) finale, il verde in uscita. Il segnale così modificato viene focalizzato, assieme al segnale di pompa qui sotto descritto, su un cristallo BBO per l'amplificazione parametrica.

- Il fascio ad energia maggiore viene inviato su una linea di ritardo, formata da specchi dielettrici, e diretto su un cristallo BBO, tagliato adeguatamente perchè venga garantito il *phase matching*. Questo cristallo genera II armonica nel blu (pompa a 450 nm) e la fondamentale viene soppressa tramite un filtro passa-banda. Il segnale ottenuto viene quindi focalizzato subito prima di un nuovo cristallo non lineare dove si incontra con la luce bianca proveniente dal continuum.
- I due fasci si focalizzano nel secondo cristallo non lineare dove compiono DFG. La frequenza in uscita dal DFG è nel verde.

L'ultima parte del cammino ottico avviene nei prismi di compressione che ci permettono di ottenere quell'impulso ultracorto che manderemo come pompa Raman nel FSRS.

Infine la lettura di controllo del segnale avviene su spettrometro digitale per la determinazione dell'informazione in frequenza del segnale e sull'autocorrelatore per la determinazione della durata temporale.

In uscita dal nostro apparato vogliamo una pompa Raman sufficientemente energetica ( $\mu J$ ) e ampiamente tunabile in frequenza (350/500 nm) per il set up FSRS sviluppato nel laboratorio Femtoscopy del dipartimento di Fisica di questa università. Si tratta quindi di convertire gli impulsi al femtosecondo a banda larga ( $470 \text{ cm}^{-1}$ ) in uscita dalla sorgente laser, in impulsi di durata temporale dell'ordine dei picosecondi e di larghezza spettrale di  $\sim 10 - 15 \text{ cm}^{-1}$ , quindi utilizzabili per la spettroscopia vibrazionale.

## L'Obiettivo del nostro esperimento

L'obiettivo dell'esperimento è quello di costruire un set up costituito da un amplificatore parametrico composto di due stadi e un sistema di compressione spettrale tramite generazione di seconda armonica, che sotto opportune condizioni permette la conversione di impulsi energetici a banda larga in bande molto strette con efficienze molto maggiori di un semplice filtraggio spettrale nel quale molta energia viene persa.

Nel dominio temporale, il campo elettrico per un impulso Gaussiano con frequenza  $\omega_0$ , durata temporale  $\Delta t$ , e fase  $\theta(t)$ , può essere espresso da:

$$E(t) = \sqrt{A_t e^{-\ln 2 \left(\frac{2t}{\Delta t}\right)^2}} e^{-i(\omega_0 t - \theta(t))} + c.c. \quad (2)$$

dove c.c. è il complesso coniugato. In questa espressione,  $A_t$  è l'ampiezza dell'impulso,  $\omega_0$  il colore e  $\Delta t$  la durata minima dell'impulso e quindi la sua larghezza di banda.  $\theta(t)$  gioca un ruolo fondamentale per la determinazione della

durata dell'impulso. Ad ogni modo quando abbiamo a che fare con impulsi che attraversano materiali dispersivi, può essere problematico lavorare nel dominio temporale, visto che dovremmo risolvere un integrale di convoluzione non semplice; allora ricorriamo all'utilizzo della trasformata di Fourier che ci permette di passare al dominio delle frequenze e quindi a delle forme più semplici da trattare.

A questo punto l'equazione (2) diviene

$$E(\omega) = \sqrt{A_\omega e^{-\ln 2 \left(\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Delta\omega}\right)^2}} e^{-i\varphi_{Pulse}(\omega-\omega_0)}. \quad (3)$$

Ora  $\Delta\omega$  e  $\Delta t$  sono legate da una relazione di incertezza  $\Delta\omega\Delta t = 4\ln(2)$  e la fase spettrale  $\varphi(\omega)$  descrive la relazione tra le differenti componenti dell'impulso. Passando dalle frequenze angolari  $\omega$  a quelle lineari  $\nu$  chiamo l'incertezza  $\Delta\nu\Delta t = c_B$ , quindi, quando un impulso di input  $E_{in}(\omega)$  passa attraverso un mezzo dispersivo, l'output risultate acquisite una fase aggiuntiva data dal prodotto del campo entrante e la funzione di trasferimento del mezzo, come:

$$E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega)R(\omega)e^{-i\varphi_{Mater}(\omega-\omega_0)} \quad (4)$$

dove  $\varphi_{Mater}$  è la fase spettrale aggiuntiva dal materiale e  $R(\omega)$  è un fattore di scala per l'ampiezza che nei mezzi trasparenti vale 1.

Allora, è conveniente esprimere la fase spettrale come espansione di Taylor attorno alla frequenza di trasporto come mostrato di seguito:

$$\varphi(\omega - \omega_0) = \varphi_0 + \varphi_1(\omega - \omega_0) + \varphi_2 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{2} + \dots \quad (5)$$

Considerando che  $\varphi(\omega) = k(\omega)L$ , con  $k$  costante di propagazione ed  $L$  lunghezza del mezzo, e che la velocità di gruppo dell'onda nel mezzo è  $v_g = \frac{d\omega}{dk}$ , allora il secondo termine dell'espansione (proporzionale a  $\frac{1}{v_g}$ ) dà ritardo all'impulso, mentre il terzo termine ci dà la *dispersione del ritardo di gruppo* (GDD), proporzionale a  $\frac{d}{d\omega}\left(\frac{1}{v_g}\right)$ , anche conosciuta come *dispersione della velocità di gruppo* (GVD). Questa introduce un ritardo delle differenti componenti spettrali dell'impulso dipendentemente dalla loro frequenza; la GDD e la GVD sono legate dalla relazione  $\varphi_2(\omega) = k_2(\omega)L$ . Per il fine ultimo del nostro esperimento possiamo decidere di troncare lo sviluppo al quarto ordine, così da poter riscrivere la (4) come

$$E_{out}(\omega) = \sqrt{A_\omega e^{-\ln 2 \left(\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Delta\omega}\right)^2}} e^{-i(\varphi_2, Pulse + \varphi_2, Mat) \frac{(\omega-\omega_0)^2}{2}} \quad (6)$$

in modo che le fasi nel dominio delle frequenze siano semplicemente additive.

Per arrivare alla durata del nuovo impulso, è necessario trasformare nuovamente l'equazione nel dominio temporale:

$$E_{out}(t) = \sqrt{A'_t} e^{\frac{4(\ln 2)t^2}{2[\Delta t^2 + i4(\ln 2)\varphi_2]}} \quad (7)$$

dove  $\varphi_2$  è la somma della GDD del materiale, più il ritardo di gruppo dell'impulso. Al fine di ottenere la durata del nuovo impulso  $\Delta t_{out}$ , è necessario calcolare

l'intensità  $I_{out}(t)$ , e metterla in relazione alla formula generale per un impulso Gaussiano

$$e^{-\ln 2 \left(\frac{2t}{\Delta t}\right)^2} = e^{-\frac{4(\ln 2)t^2 \Delta t^2}{\Delta t^4 + 16(\ln 2)^2 \varphi_2^2}} \quad (8)$$

da cui

$$\Delta t_{out} = \frac{\sqrt{\Delta t^4 + 16(\ln 2)^2 \varphi_2^2}}{\Delta t} \quad (9)$$

e ancora

$$\varphi_2 = \frac{1}{4(\ln 2)} \sqrt{\left(\frac{c_B \Delta t}{\Delta \nu}\right)^2 + \left(\frac{c_B}{\Delta \nu}\right)^4} \quad (10)$$

dove  $\Delta \nu = c \Delta \lambda / \lambda^2$  e  $c_B$  è funzione del profilo dell'impulso; per un fascio Gaussiano vale 0.441.

Inoltre si può ricavare la  $GDV = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \left(\frac{d^2 n}{d\lambda^2}\right)$ , con  $n(\lambda)$  l'indice di rifrazione in funzione della lunghezza d'onda, e allora la GDD è semplicemente il prodotto di GDV per la lunghezza L del materiale. L'effetto della dispersione del segnale è visibile in Fig.4.

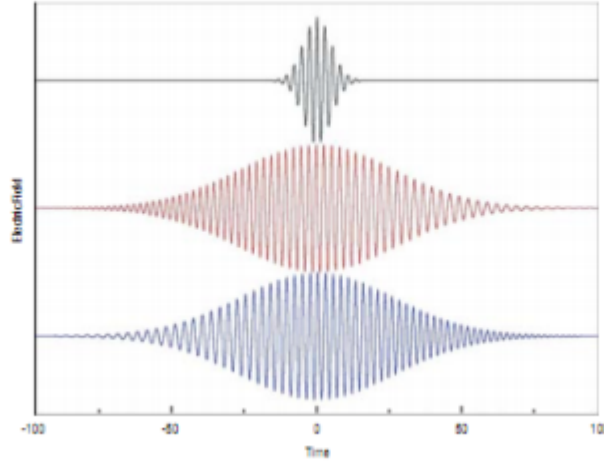


Figura 4: Gli effetti della GDD su un impulso di 100 nm di larghezza di banda.

## Il compressore a prismi incrociati

Per eliminare il fenomeno della dispersione del segnale esistono vari metodi sperimentali, uno tra tutti è il prisma di compressione. Il sistema di compressione è formato da quattro prismi; l'angolo all'apice di ogni prisma è uguale all'angolo di Brewster per una data lunghezza d'onda, essi sono disposti in modo che il raggio entri ed esca da ogni prisma proprio all'angolo di Brewster. Le perdite di riflessione in questo caso sono minimizzate dalla scelta della polarizzazione.

In generale, il primo prisma apre le frequenze del raggio, il secondo le collima, il terzo e il quarto fanno in modo che le frequenze vengano ricomprese e che l'uscita sia direzionalmente identica all'entrata.

Ciò che effettivamente permette la compressione è che in questo modo ogni frequenza compie un cammino ottico diverso regolato dalla geometria del prisma stesso. Il cammino ottico in funzione della lunghezza d'onda è:

$$P(\lambda) = 2l \cos \beta \quad (11)$$

dove  $l$  è la distanza tra tra gli apici dei primi 2 prismi e  $\beta$  è 'angolo di uscita del raggio dal primo prisma. La GDD introdotta dalla sequenza è data da

$$GDD_{PRISM} = \left(\frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\right) \frac{d^2 P(\lambda)}{d\lambda^2} \quad (12)$$

dove  $\lambda$  è la lunghezza d'onda della luce e  $c$  è la velocità della luce. Nell' eq. (11)  $\beta$  può essere espresso, dalle equazioni di Sellmeier per un dato materiale, in funzione dell'indice di rifrazione

$$\beta = -2 \frac{dn}{d\lambda} \Delta\lambda \quad (13)$$

con  $\beta$  relativamente piccolo, tanto da permetterci di scrivere uno sviluppo della (12) nella forma

$$GDD_{PRISM} = \left(\frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\right) [-4l \{2(\frac{dn}{d\lambda})^2\} + 4(\frac{d^2n}{d\lambda^2})(2D_{1/e^2})] \quad (14)$$

dove  $n$  è l'indice di rifrazione e  $D_{1/e^2}$  è il diametro del fascio a  $1/e^2$ .

Il primo termine è sempre negativo e dipende dalla separazione dei prismi. Il secondo termine è sempre positivo e dipende dal cammino ottico attraverso il prisma.

Quindi variando la separazione dei prismi e del cammino ottico, si può controllare il segno e il valore della dispersione introdotta.

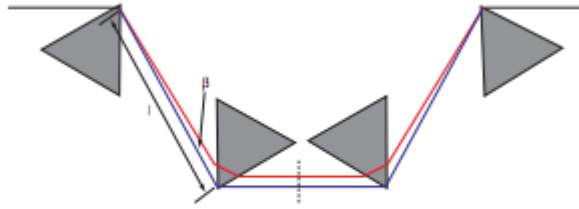


Figura 5: Schema di un compressore a quattro prismi



## Cristalli non lineari e l'OPA

L'ottica non lineare studia i fenomeni che avvengono come conseguenza della modifica delle proprietà ottiche di un materiale in presenza di luce. Il laser ha intensità sufficiente per rendere questi effetti significativi.

Considerando il momento di dipolo per unità di volume, quindi la polarizzazione  $\tilde{P}(t)$  di un materiale in funzione del campo ottico  $E(t)$ , si ha oltre alla classica forma lineare  $P(t) = \chi^{(1)}E(t)$ , con  $\chi^{(1)}$  la suscettività del materiale, una parte aggiuntiva NON LINEARE nei campi

$$P(t) = \chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \dots \quad (15)$$

dove compaiono termini di suscettività di ordine maggiori di 1 che sono responsabili degli effetti ottici non lineari.

L'equazione d'onda con cui lavoriamo è della forma

$$\nabla^2 E + \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (16)$$

dove ora la non omogeneità della polarizzazione corrisponde a termini di sorgente che generano delle frequenze (nuovi campi) altrimenti non osservabili.

I possibili processi al II ORDINE sono quelli generati da  $\tilde{P}^{(2)}(t) = \tilde{P}_{NON LINEARE}$  quando un mezzo, convenzionalmente chiamato  $\chi^{(2)}$ , è attraversato da un generico campo. Il campo allora sarà ben descritto dalla soluzione dell'equazione differenziale (16), come:

$$\tilde{E}(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c. \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \Rightarrow \tilde{P}^{(2)}(t) &= \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t) = \\ &= \chi [E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c.] \\ &\quad + 2\chi^{(2)} [E_1^* E_2 + E_1 E_2^*] \end{aligned} \quad (18)$$

Il risultato dello scambio di fotoni all'interno del materiale genera nuovi campi con nuove frequenze.

In particolare i termini  $E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t}$  sono responsabili della generazione di seconda armonica (SHG) dove i livelli tratteggiati corrispondono a livelli "virtuali" dati dalla combinazione degli autostati energetici dell'atomo e la frequenza del fotone entrante.

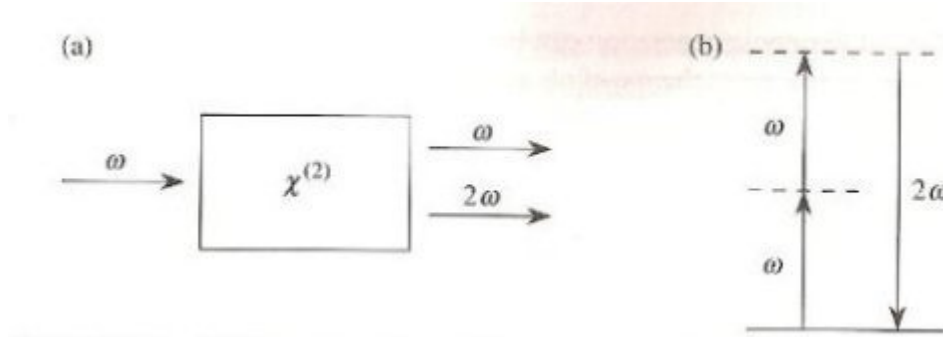


Figura 6: (a) Geometria della generazione di seconda armonica. (b) Diagramma dei livelli di energia descritti dalla SHG.

Il termine  $2E_1E_2e^{-i(\omega_1+\omega_2)t}$  è responsabile della generazione di frequenze somma (SFG), ed il termine  $2E_1E_2e^{-i(\omega_1-\omega_2)t}$  è responsabile della generazione di frequenze differenza (DFG).

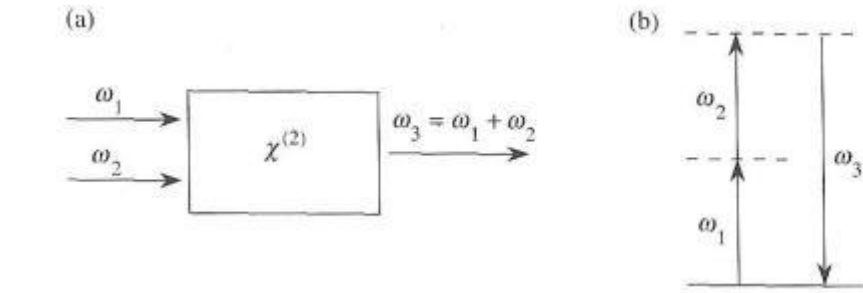


Figura 7: Sum-frequency generation. (a) Geometria d'interazione. (b) Descrizione dei livelli energetici.

La DFG è anche alla base dei dispositivi OPA (amplificatori parametrici) in grado di amplificare parametricamente una frequenza, la più bassa in energia, in entrata nel cristallo prendendo energia dal campo più intenso di pompa. Questo avviene quando l'atomo assorbe  $\omega_1$  (alta energia) e  $\omega_2$ ; quest'ultima frequenza stimola il decadimento nell'OPA, permettendo al sistema di rilasciare fotoni alla frequenza  $\omega_{out} = \omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ , con un'intensità più elevata.

L'intensità del segnale di uscita da un cristallo non lineare di lunghezza  $L$  nelle condizioni di DFG è della forma:

$$I_3 \propto \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (19)$$

con  $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$  dove  $k_1, k_2, k_3$  sono i vettori d'onda dei 3 campi in gioco.

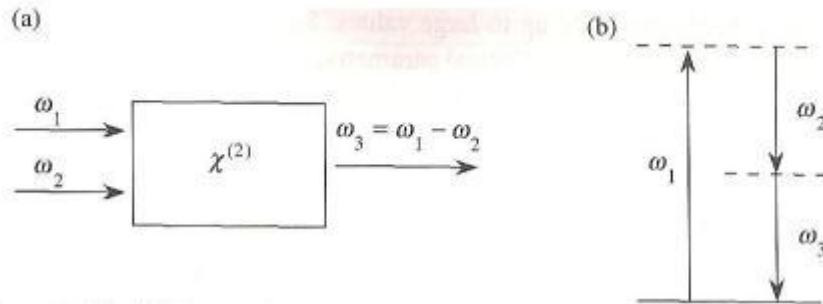


Figura 8: Difference-frequency generation. (a) Geometria d'interazione. (b) Descrizione dei livelli energetici.

Perchè si abbia intensità massima in uscita allora, essendo  $k = \frac{n\omega}{c}$ , dobbiamo imporre quella che viene chiamata la condizione di PHASE MATCHING

$$n_1\omega_1 + n_2\omega_2 = n_3\omega_3 \quad (20)$$

quindi dobbiamo opportunamente scegliere la direzione dei vettori d'onda  $k$  dei campi in entrata nel cristallo affinché venga garantita la condizione (20) e si ottenga il segnale desiderato.

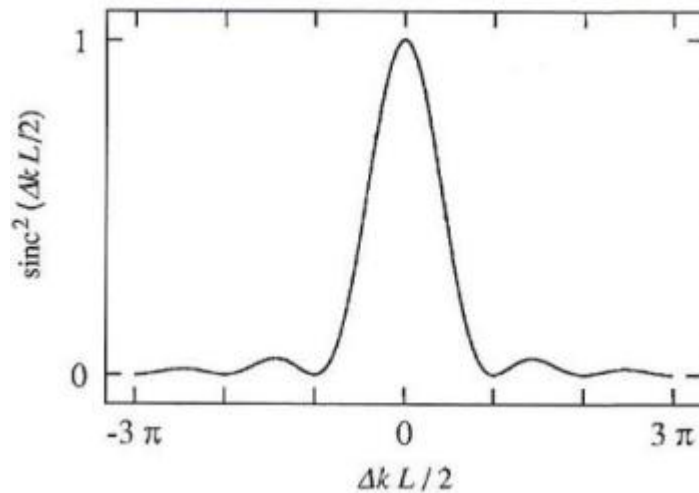


Figura 9: Intensità in uscita da un cristallo non lineare per DFG.

## L'Autocorrelazione

La caratterizzazione del profilo temporale dell'impulso laser è alla base dell'ottimizzazione e della misura dei segnali ultracorti. Uno dei metodi più utilizzati per la misura dei segnali corti è quello dell'autocorrelazione calcolata con l'autocorrelatore. Questo fa uso della trasformata di Fourier spazio-temporale del segnale e dalla funzione di correlazione dei campi in gioco.

Date due funzioni dipendenti dal tempo  $F(t)$  e  $F'(t)$ , se conosco già  $F'(t)$ , allora la misura

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} F'(t)F(t - \tau)dt \quad (21)$$

è definita come *funzione di correlazione* al primo ordine di  $F(t)$ .

Nel nostro caso per la determinazione dell'impulso, viene utilizzata l'autocorrelazione. L'autocorrelatore in pratica splitta in due il nostro segnale con un interferometro di Michelson ed ottiene  $E(t)$  ed  $E(t + \tau)$ . Questi segnali possono dunque essere comparati in un set up interferometrico in grado di costruire la funzione di correlazione al primo ordine che mi dà appunto  $E(t)$ , cioè la durata dell'impulso.

In verità si lavora con le intensità  $I(t) = \langle E(t)E^*(t) \rangle$  che sono gli osservabili effettivi che otteniamo in uscita dal nostro dispositivo. Cioè una misura interferometrica al primo ordine ci dà

$$I_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t) + E(t - \tau)|^2 dt \quad (22)$$

$$\Rightarrow I_1(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)dt + 2G_1(\tau) \quad (23)$$

dove  $G_1(\tau)$  è la funzione di correlazione al primo ordine. Per la stima di  $I(t)$  ci fermiamo al secondo ordine, della forma

$$I_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |[E(t) + E(t - \tau)]^2|^2 dt \quad (24)$$

osservabile che può essere ottenuto tramite l'utilizzo di un cristallo non lineare che mi genera seconda armonica. Infatti, per un cristallo lungo  $l$ , essendo

$$E_{2\omega}(t, l) = -cost \cdot E_{\omega}^2(t, \Delta\tau)l \quad (25)$$

con

$$E_{\omega}(t, \Delta\tau) = E_1(t) + E_2(t + \Delta\tau)e^{i\omega\Delta\tau} \quad (26)$$

risulta che

$$I_2(\tau) = |E_{2\omega}(t, l)|^2 = cost^2 |E_{\omega}^2(t, \Delta\tau)|^2 \quad (27)$$

forma consistente con quanto ci aspettavamo.  
 Infine quello che lo strumento calcola non è altro che la media

$$G_2(\tau) = \frac{\int I(t)I(t + \tau)dt}{\int I^2(t)dt} \quad (28)$$

che graficamente corrisponde alla Fig. 10

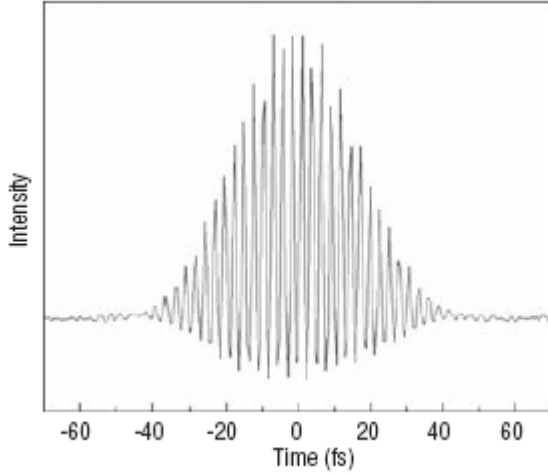


Figura 10: Spettro risultante dell'autocorrelazione

## Realizzazione della compressione

Il compressore costruito da noi per la compressione del fascio, non era composto da quattro prismi ma solamente da due, così da avere un set up più facile nell'individuare gli angoli di Brewster di ogni prisma. Il principio è lo stesso illustrato in precedenza, semplicemente il fascio passa due volte nei prismi come mostrato in Fig.11

Per costruirlo bisogna innanzi tutto calcolare la GDD responsabile dell'allungamento dell'impulso, e lo si può fare misurando lo spettro e l'ampiezza di autocorrelazione, per inserirli poi nell' eq. (10)

Si deve poi calcolare  $\Delta t = \frac{c_B \lambda^2}{c \Delta \lambda}$  corrispondente alla larghezza di banda misurata. Da questo e dalla lunghezza d'onda del fascio si può determinare il materiale dei prismi da utilizzare. Senza una trattazione rigorosa si può dire che il SF10, utilizzato da noi, può essere usato per impulsi di durata superiore a 50 fs e lunghezza d'onda più grande di 400 nm. Per impulsi più grandi di 25 fs e lunghezza d'onda più lunga di 380 nm avremmo preferito un LakL21, mentre per impulsi più brevi di 25 fs e lunghezze d'onda inferiori ai 380 nm avremmo usato silice fusa.

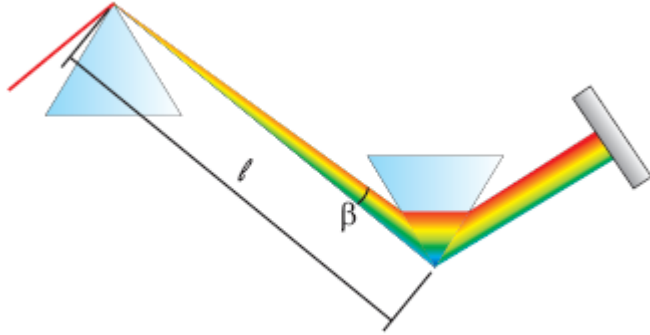


Figura 11: schema di un compressore a due prismi

Utilizzando la derivata prima e seconda dell'indice di rifrazione (riportiamo alcuni parametri per SF10 in tabella 1) e risolvendo l' eq. (14) si calcola la distanza necessaria tra i due prismi per bilanciare la GDD dell'impulso ad una data lunghezza d'onda.

Material	$\lambda$ (nm)	$n(\lambda)$	$dn/d\lambda$ ( $\mu\text{m}^{-1}$ )	$d^2n/d\lambda^2$ ( $\mu\text{m}^{-2}$ )	$d^3n/d\lambda^3$ ( $\mu\text{m}^{-3}$ )	GVD (fs <sup>2</sup> /mm)	TOD (fs <sup>3</sup> /mm)
SF10	400	1.778	-0.5434	5.946	-97.73	672.9	510.5
	450	1.757	-0.3346	2.899	-36.74	467.1	301.6
	500	1.743	-0.2253	1.632	-17.08	360.8	213.5
	550	1.734	-0.1610	1.006	-9.046	295.9	168.1
	600	1.727	-0.1202	0.6595	-5.237	251.9	141.5
	650	1.721	-0.09280	0.4527	-3.235	219.8	124.7
	700	1.717	-0.07367	0.3218	-2.100	195.2	113.6
	750	1.714	-0.05989	0.2352	-1.418	175.5	106.1
	800	1.711	-0.04970	0.1759	-0.9885	159.2	101.1
	850	1.709	-0.04201	0.1339	-0.7081	145.5	97.97

Tabella 1: parametri tipici per SF10

I prismi sono stati montati ognuno su una pedana piezoelettrica che permette una doppia rotazione; una parallela al tavolo ottico in modo da poter cercare sperimentalmente l'angolo di Brewster ottimale per l'ingresso del fascio in ognuno di essi, e l'altra perpendicolare al tavolo per poter variare la direzione del fascio, vedremo in seguito perché. Le pedane sono poi state fissate su

una guida metallica in modo da poter variare solo la distanza relativa tra i due prismi una volta trovata l'angolazione corretta del fascio entrante sugli stessi. Questa distanza deve essere quanto più possibile uguale a quella misurata nello step precedente. E' possibile sostituire la guida metallica con dei traslatori alla base di ogni prisma.

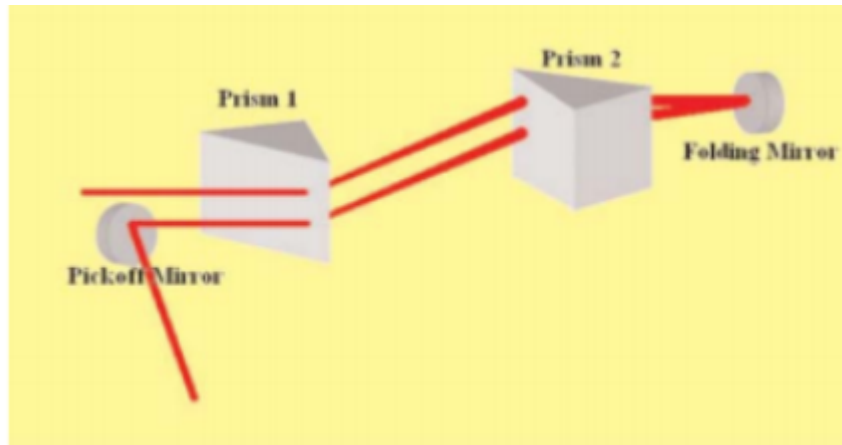


Figura 12: schema della compressione

Il cammino ottico deve passare all'interno del primo prisma, molto vicino al bordo e molto in alto. Uscendo ad un'angolazione differente deve intercettare il secondo prisma di nuovo all'angolo di Brewster. A questo punto bisogna fare molta attenzione che di nuovo il fascio entri abbastanza vicino al bordo come in precedenza e senza sbavature; inoltre c'è bisogno di abbassare il fascio uscente. In questo modo è possibile riallineare il fascio parallelamente al tavolo ottico ma ad una differente altezza con uno specchio posizionato in uscita dall'ultimo prisma. Questo specchio oltre a riallineare il fascio, lo rimanda nel prisma in modo che il cammino ottico venga ripercorso al contrario, senza che fascio iniziale e fascio finale si incrocino. E' molto importante che tra i due prismi i fasci viaggino parallelamente al tavolo ottico.

Vicino al primo prisma bisogna posizionare lo specchio di pickoff, in modo da prendere il fascio appena compresso e portarlo ad esempio all'autocorrelatore per misurare l'esito della compressione. Lo schema della compressione è mostrato in Fig. 12

Visto che l'autocorrelatore legge fasci in polarizzazione orizzontale, abbiamo posizionato una lamina di ritardo  $\lambda/2$  prima del compressore così da ruotare la polarizzazione del fascio da verticale a orizzontale.

## Risultati e conclusioni

Nel caso specifico dell'esperimento, i nostri dati erano una lunghezza d'onda  $\lambda = 540 \text{ nm}$ , affetta da  $\Delta\lambda$  di  $FWHM \simeq 13 \text{ nm}$ , come si vede in Fig.13.

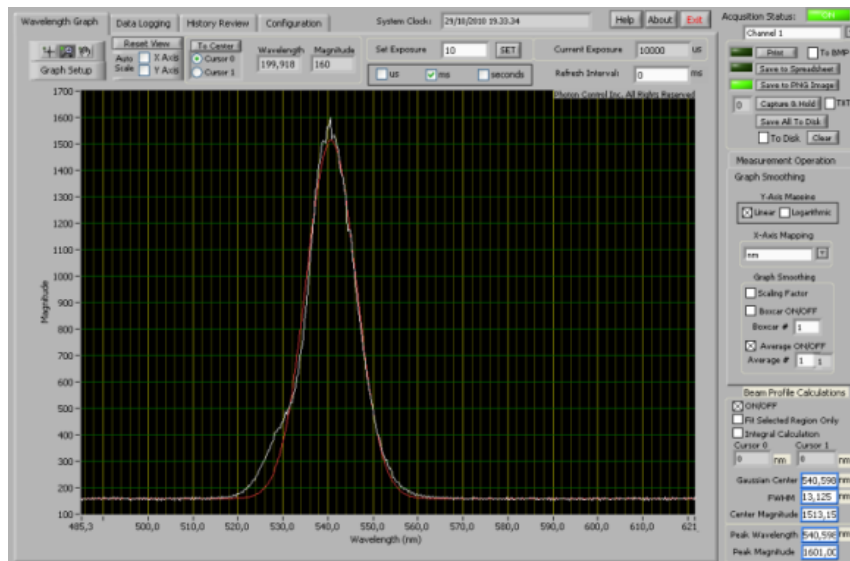


Figura 13: segnale in uscita dall'OPA utilizzato per verificare il funzionamento del compressore.

L'impulso da comprimere era lungo  $\Delta t = 135 \text{ fs}$  e l'energia in entrata al compressore era di  $3,24 \mu\text{J}$ , misurata con l'energy meter. Con questi parametri, e con prismi SF10 i cui angoli di Brewster misurano all'incirca  $\theta_B \simeq 60^\circ$ , la distanza ottimale tra le punte dei prismi è stata fissata a  $l = 11 \text{ cm}$ . Uno schema del set up finale di un compressore si può vedere in Fig. 14



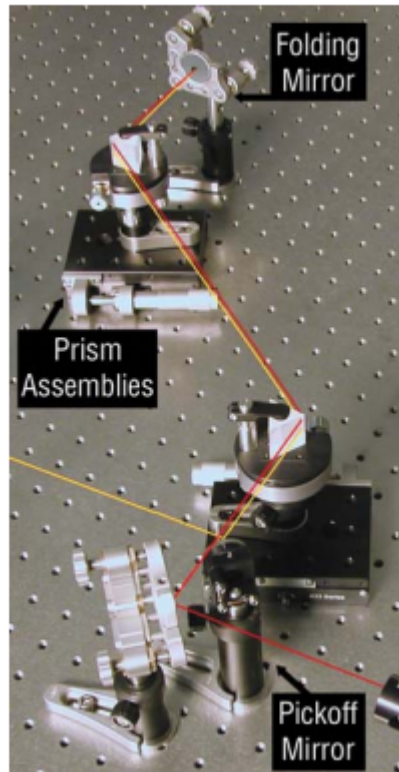


Figura 14: Set up sperimentale del compressore

Ciò che è stato misurato dopo la compressione del fascio, era un impulso della durata di  $\Delta t = 50 \text{ fs}$  e di energia pari a  $1,95 \mu\text{J}$ , risultato perfettamente in accordo con quanto desiderato.

## Riferimenti bibliografici

- [1] "Nonlinear optics" di Robert W. Boyd
- [2] "Prism Compressor For Ultrashort Laser Pulses" by Technology and Application Center Newport Corporation, [www.newport.com](http://www.newport.com)
- [3] "Generazione di impulsi tunabili al picosecondo per spettroscopia Raman risolta in tempo" di Michela Badioli [http://femtoscopia.phys.uniroma1.it/scopigno/static/TEACHING/others\\_theses/badioli.pdf](http://femtoscopia.phys.uniroma1.it/scopigno/static/TEACHING/others_theses/badioli.pdf)