



*Università degli Studi di Firenze*

---

Dipartimento di Fisica

Dottorato di Ricerca in Fisica XXI Ciclo

*Settore disciplinare: Fisica della Materia - FIS/03*

Realizzazione di una sorgente ad alta  
stabilità nel medio infrarosso  
con riferimento assoluto di frequenza  
per rivelazione sensibile di CO<sub>2</sub>

Tesi di Dottorato di

***Iacopo Galli***

*Supervisore*

***Dott. Giovanni Giusfredi***

*Coordinatore*

***Prof. Alessandro Cuccoli***

Firenze, Dicembre 2008



# Indice

Indice	iii
Elenco delle figure	vii
Elenco delle tabelle	ix
Lista delle abbreviazioni	xi
Introduzione	1
<b>1 Principi di funzionamento</b>	<b>5</b>
1.1 Il <i>cavity ring down</i> . . . . .	5
1.2 <i>Optical Frequency Comb Synthesizer</i> . . . . .	7
1.2.1 Schema di funzionamento dell'OFCS . . . . .	11
1.3 Generazione di frequenza differenza . . . . .	14
1.3.1 Formalismo della propagazione in un mezzo non lineare . .	15
1.3.2 Efficienza di generazione . . . . .	19
1.3.3 <i>Phase-matching</i> . . . . .	20
1.3.4 <i>Quasi-phase-matching</i> . . . . .	24
1.4 La molecola di CO <sub>2</sub> . . . . .	27
1.4.1 Livelli energetici rotazionali . . . . .	29
1.4.2 Livelli energetici vibrazionali . . . . .	30

1.4.3	Considerazioni sui livelli . . . . .	31
	Frequenze delle transizioni . . . . .	34
<b>2</b>	<b>Set-up sperimentale</b>	<b>37</b>
2.1	La cavità . . . . .	39
2.2	Il <i>comb</i> . . . . .	42
2.2.1	Il laser <i>mode-locked</i> . . . . .	43
	Messa in funzione del laser . . . . .	45
2.2.2	Allargamento dello spettro del laser Ti:Za . . . . .	48
2.2.3	Stabilità dell'OFCS . . . . .	50
2.3	Il cristallo PPLN . . . . .	52
2.3.1	temperatura di <i>quasi-phase-matching</i> . . . . .	53
2.4	I laser sorgente . . . . .	55
2.4.1	Il laser ECDL . . . . .	55
2.4.2	Il laser Nd:YAG . . . . .	58
	Misura della lunghezza d'onda dei laser . . . . .	61
2.5	Riferimento al OFCS . . . . .	61
2.6	Il rivelatore . . . . .	64
2.6.1	Velocità di risposta . . . . .	66
<b>3</b>	<b>Ottimizzazione del set-up sperimentale</b>	<b>69</b>
3.1	Generazione della radiazione infrarossa . . . . .	69
3.1.1	Le caratteristiche della radiazione IR . . . . .	75
3.2	Allineamento della cavità . . . . .	78
3.2.1	Accoppiamento della radiazione IR in cavità . . . . .	80
3.3	Sistema di acquisizione dati . . . . .	82
3.3.1	Digitalizzatore a 24 bit . . . . .	85

<b>4</b>	<b>Misure</b>	<b>89</b>
4.1	Il tempo di <i>cavity ring down</i> . . . . .	89
4.1.1	Stabilità reciproca tra la radiazione IR e la cavità . . . . .	91
4.2	Profilo di riga . . . . .	92
4.3	Primi test su $^{14}\text{CO}_2$ . . . . .	95
4.4	Misure con 2 AOM su Nd:YAG . . . . .	99
4.5	Cambio degli specchi ad alta riflettività . . . . .	103
4.5.1	Misura dell'accoppiamento . . . . .	103
4.5.2	Caratteristiche della cavità . . . . .	105
4.6	Caratteristiche spettrali della radiazione IR . . . . .	107
4.7	Sensibilità . . . . .	109
<b>5</b>	<b>Studio di nuove sorgenti IR</b>	<b>113</b>
5.1	Laser QCL . . . . .	114
5.2	DFG <i>intracavity</i> . . . . .	121
<b>6</b>	<b>Conclusioni e prospettive</b>	<b>129</b>
<b>A</b>	<b>Profili di riga</b>	<b>133</b>
<b>B</b>	<b>Non-linearità effettiva</b>	<b>135</b>
<b>C</b>	<b>DFG con fascio gaussiano focalizzato</b>	<b>139</b>
	<b>Bibliografia</b>	<b>143</b>
	<b>Lista delle pubblicazioni</b>	<b>149</b>
	<b>Ringraziamenti</b>	<b>155</b>



# Elenco delle figure

1.1	Schema di una cavità <i>Fabry-Perot</i> . . . . .	6
1.2	OFCS: sfasamento tra campo e involuppo . . . . .	9
1.3	OFCS: impulsi nel tempo e in frequenza . . . . .	10
1.4	Schema di funzionamento dell'OFCS . . . . .	12
1.5	Generazione di frequenza differenza . . . . .	15
1.6	Efficienza di generazione di frequenza differenza . . . . .	20
1.7	Evoluzione del fasore frequenza differenza . . . . .	26
1.8	Modi fondamentali di vibrazione della molecola di CO <sub>2</sub> . . . . .	29
1.9	Schema dei livelli rotazionali della CO <sub>2</sub> . . . . .	35
1.10	Intensità delle righe P e R della transizione (00 <sup>0</sup> 0 – 00 <sup>0</sup> 1) . . . . .	36
2.1	Schema del set-up sperimentale . . . . .	38
2.2	Struttura del <i>Fabry-Perot</i> . . . . .	41
2.3	Schema della cavità laser dell'OFCS . . . . .	43
2.4	Spettro del laser <i>mode-locked</i> . . . . .	47
2.5	Spettro della radiazione in uscita dalla PCF . . . . .	49
2.6	Cristallo PPLN . . . . .	53
2.7	Potenza Laser a semiconduttore . . . . .	56
2.8	Compensazione astigmatismo ECDL . . . . .	57
2.9	Nd:YAG tunabilità lunghezza d'onda . . . . .	59
2.10	Schema “doppio passaggio” per un AOM . . . . .	60

2.11	Circuito elettrico del preamplificatore del rivelatore . . . . .	65
2.12	Fondo del rivelatore IR . . . . .	67
2.13	Determinazione del valore di $C_F$ . . . . .	68
3.1	Misura del waist YAG . . . . .	71
3.2	Misura del waist ECDL . . . . .	73
3.3	Immagini del modo IR. . . . .	76
3.4	Immagini del modo IR con reticolo. . . . .	77
3.5	Misura del <i>waist</i> IR. . . . .	78
3.6	Esempio di lente . . . . .	79
3.7	Simulazione di segnale CRD . . . . .	83
3.8	Schema frequenze IR generate in funzione degli ordini trasmessi .	85
3.9	Residui nel limite della digitalizzazione . . . . .	86
3.10	Confronto tra residui . . . . .	87
4.1	Segnale di CRD . . . . .	90
4.2	Larghezza picco trasmissione . . . . .	92
4.3	Profilo della riga P44 della $^{13}\text{CO}_2$ . . . . .	93
4.4	Esempio di profilo di riga . . . . .	94
4.5	Scansione in frequenza intorno a P(20) del $^{14}\text{CO}_2$ . . . . .	96
4.6	Schema acquisizioni per $^{14}\text{CO}_2$ . . . . .	97
4.7	Misura di prova su $^{14}\text{CO}_2$ . . . . .	98
4.8	Misura di $\gamma$ nel tempo . . . . .	100
4.9	Misura di $\Delta\gamma$ . . . . .	101
4.10	Confronto digitalizzatore-oscilloscopio . . . . .	102
4.11	Singolo CRD con residui . . . . .	105
4.12	Spettro con modulazione su Nd:YAG . . . . .	108
4.13	Densità spettrale di rumore in frequenza . . . . .	110

5.1	Set-up frequenza assoluta QCL . . . . .	115
5.2	Profilo Doppler (00 <sup>0</sup> 1 – 00 <sup>0</sup> 0)P(30) . . . . .	116
5.3	Set-up Lamb <i>dip</i> QCL . . . . .	117
5.4	Lamb <i>dip</i> . . . . .	118
5.5	Densità di rumore QCL . . . . .	119
5.6	Misura di $\Delta\nu_{S-D}$ . . . . .	120
5.7	Schema della geometria del nostro laser Ti:Za . . . . .	122
5.8	Condizioni di stabilità per cavità Ti:Za . . . . .	123
5.9	Spettro del laser Ti:Za . . . . .	124
5.10	Schema della DFG in cavità . . . . .	126
6.1	Varianti isotopiche della CO <sub>2</sub> rivelabili . . . . .	131



# Elenco delle tabelle

1.1	Condizioni di <i>phase-matching</i> per i cristalli uniassiali . . . . .	23
1.2	Caratteristiche delle simmetrie del gruppo $D_{\infty h}$ . . . . .	28
1.3	Costanti rotazionali per lo stato vibrazionale fondamentale . . . . .	30
1.4	Costanti rotazionali per la molecola di $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$ . . . . .	36
2.1	Coefficienti di Sellmeier . . . . .	54
3.1	Waist YAG . . . . .	72
4.1	Confronto caratteristiche specchi . . . . .	106
6.1	Caratteristiche radiazione IR . . . . .	129
6.2	Caratteristiche cavità e sensibilità sul secondo . . . . .	130
B.1	Espressioni di $d_{eff}$ per cristalli uniassiali . . . . .	138



# Lista delle abbreviazioni

**AOM:** Modulatore acusto-ottico

**CRD:** *Cavity Ring Down*

**DDS:** *Direct-Digital-Synthesis*

**DFG:** Generazione di Frequenza differenza

**ECDL:** Laser a Diodo in Cavità Estesa

**FSR:** *Free Spectral Range*

**IR:** Infrarosso

**OFCS:** *Optical Frequency Comb Synthesizer*

**PCF:** *Photonic Crystal Fibers*

**PLL:** *Phase-Lock Loop*

**PPLN:** Niobato di Litio ( $\text{LiNbO}_3$ ) Periodicamente Polarizzato

**PZT:** Piezoelettrico

**QCL:** Laser a Cascata Quantica

**SFG:** Generazione di frequenza somma

**SHG:** Generazione di seconda armonica

**Ti:Za:** Titanio Zaffiro ( $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ )



# Introduzione

La spettroscopia laser è di particolare interesse perchè negli ultimi anni ha avuto uno sviluppo di applicazioni di vario genere, ad esempio il monitoraggio di gas prodotti in determinate zone come aree industriali o vulcaniche [1, 2, 3]. Grazie a sistemi sempre più sensibili è diventata un potente strumento per l'individuazione di molecole in gas grazie alla cosiddetta *finger print* (“impronta digitale”) molecolare, infatti nella regione compresa tra i 2 e 12  $\mu\text{m}$  si trovano le bande rotovibrazionali fondamentali di molte molecole semplici e da queste transizioni le molecole possono essere individuate. In particolare intorno a 4  $\mu\text{m}$  si trovano le transizioni più forti della molecola di  $\text{CO}_2$  che è la molecola di riferimento per questo lavoro. Inoltre, spettrometri ad alta sensibilità sono stati utilizzati per fare test di fisica fondamentale come la violazione di parità [4, 5], il postulato di simmetrizzazione [6], variazioni di costanti fondamentali come il rapporto fra la massa dell'elettrone e del protone [7].

L'importanza del medio infrarosso ha spinto lo studio di nuove sorgenti coerenti in tale regione spettrale; per esempio tra le sorgenti più recenti ci sono i laser a cascata quantica (QCL) [8]. Per queste sorgenti, finora non sono stati raggiunti i livelli di stabilità che si trovano nelle regione del visibile [9], grazie soprattutto a cavità ad altissima finezza [10].

Un altro tipo di sorgente nel medio infrarosso, che è stata ampiamente studiata e potenziata grazie alle nuove tecnologie, è quella che sfrutta le proprietà non lineari di un cristallo per generare frequenza differenza (DFG)[11].

In questo lavoro è stata realizzata una sorgente di tipo DFG sfruttando le proprietà non lineari di un cristallo di niobato di litio ( $\text{LiNbO}_3$ ) periodicamente polarizzato (PPLN), la polarizzazione serve per aumentare l'efficienza di generazione sfruttando il processo di *quasi-phase-matching*. Nel cristallo vengono mescolati un laser a semiconduttore accordabile in lunghezza d'onda tra 838 e 863 nm e un laser a stato solido Nd:YAG a 1064 nm per generare radiazione coerente tra 4 e 4.5  $\mu\text{m}$ . Sfruttando le ottime caratteristiche di questi laser è stato possibile tramite alcuni accorgimenti realizzare una sorgente con stabilità paragonabili a quelle dei laser nel visibile. Le ottime caratteristiche della radiazione generata per differenza ci hanno permesso di accoppiarla in una cavità ad alta finezza per realizzare uno spettrometro ad alta sensibilità basato sulla tecnica del *cavity ring down* [12, 13, 14].

Un'altra applicazione importante di uno spettrometro è l'utilizzo nella metrologia, ovvero la misura di frequenza assoluta; per il momento la regione spettrale del medio infrarosso è povera di riferimenti assoluti di frequenza. Questo indica l'importanza di realizzare uno strumento che abbia un riferimento assoluto, che permetta di misurare con buona precisione le frequenze delle transizioni molecolari.

La misura di frequenza assoluta è stata rivoluzionata con l'invenzione dell'*Optical Frequency Comb Synthesizer* (OFCS) che permette di conoscere la frequenza assoluta con una precisione relativa di  $\approx 10^{-12}$  [15, 16]. Questo strumento è dovuto principalmente al Prof. T.W.Hänsch (premio Nobel per la fisica 2005) e fornisce un riferimento assoluto di frequenze nel visibile. Di fatto l'OFCS collega direttamente una frequenza dell'ordine di centinaia di THz con lo standard primario di frequenza, che attualmente è l'orologio atomico al cesio che definisce il secondo. Attualmente sono stati realizzati *comb* che coprono una regione di frequenze fino a 2  $\mu\text{m}$  [17].

La nostra sorgente di radiazione coerente sfrutta due laser che emettono in

---

una regione di frequenze coperta da un unico OFCS reperibile in commercio (modello FC8003 Menlosystems GmbH). Questo ci ha permesso di riferire la frequenza assoluta dei due laser, in maniera tale da avere una sorgente di radiazione coerente con riferimento assoluto di frequenza nella regione del medio infrarosso. Tutto ciò rende il nostro spettrometro un sistema completo ed efficace per qualsiasi tipo di misura, sia metrologica che di rivelazione di molecole in stato gassoso.

L'idea che ci ha portato a sviluppare questo apparato strumentale è quella di avere uno spettrometro sufficientemente sensibile da rivelare la molecola di anidride carbonica formata con l'isotopo  $^{14}\text{C}$  del carbonio. Purtroppo nel corso dello sviluppo di questo sistema abbiamo incontrato vari problemi che limitavano la sensibilità, e che di volta in volta sono stati studiati e risolti. Al momento il limite di sensibilità raggiunto è tale da rivelare tutte le varianti isotopiche stabili della  $\text{CO}_2$ , ma non ancora sufficiente per rivelare quelle con l'isotopo  $^{14}\text{C}$ ; questo per cause ancora da accertare e in fase di studio. Questo non vuole essere una bocciatura per il sistema di rivelazione che ha ottime caratteristiche, ma soltanto un limite fisico imposto dalle circostanze.

La struttura di questa tesi è composta dal primo capitolo in cui sono riportate le principali conoscenze teoriche necessarie per comprendere la fisica che c'è in questo lavoro. Vengono affrontati i principi di funzionamento della tecnica *cavity ring down*, dell'*Optical Frequency Comb Synthesizer*, della generazione di frequenza differenziale e i livelli energetici della molecola di  $\text{CO}_2$ .

Nel secondo capitolo sono riportate le caratteristiche principali e il funzionamento dei componenti dell'apparato sperimentale. In primo luogo la cavità ad alta finezza e la sua struttura portante. Poi il laser *mode-locked* che è il cuore dell'OFCS, il cristallo di niobato di litio periodicamente polarizzato con il suo controllo in temperatura. Infine i laser utilizzati per la DFG e il rivelatore per la radiazione infrarossa.

L'ottimizzazione di alcuni aspetti fondamentali del set-up che hanno contribuito al miglioramento della sensibilità sono riportati nel capitolo tre. È ampiamente trattata la generazione della radiazione infrarossa di cui sono riportate le caratteristiche spaziali e i dati fondamentali per l'allineamento della cavità ad alta finezza. Abbiamo riportato anche il sistema di acquisizione che ha subito una modifica sostanziale in corso d'opera.

Nel quarto capitolo sono riportate le misure fondamentali per la caratterizzazione del sistema. Sono riportate le misure relative alla molecola di  $^{13}\text{CO}_2$  e un test sulla molecola di  $^{14}\text{CO}_2$ . Nel capitolo si trovano anche le caratteristiche inerenti al cambio degli specchi che compongono attualmente la cavità.

Durante questo lavoro sono state anche studiate altre sorgenti di radiazione infrarossa per un'eventuale sostituzione della attuale DFG, che ha come unico limite la scarsa potenza generata ( $\approx 80 \mu\text{W}$  @  $4.5 \mu\text{m}$ ). In particolare sono stati studiati i laser a cascata quantica (QCL) dimostrando la possibilità di riferirli al *comb* e di agganciarli debolmente al *Lamb dip* di una transizione della  $\text{CO}_2$ , per ridurre la grossa instabilità riscontrata. Abbiamo anche studiato e realizzato un nuovo sistema di DFG all'interno di una cavità laser; dai primi risultati ottenuti si prospetta come un'ottima alternativa alla DFG tradizionale avendo caratteristiche spettrali analoghe, ma molta più potenza generata. Lo studio di questi sistemi è riportato brevemente nel capitolo cinque.

Nell'ultimo capitolo sono riportate le caratteristiche principali di questo sistema che permettono un largo impiego sperimentale; inoltre si discute del suo ulteriore sviluppo, che potrebbe portarlo a una sensibilità tale da rivelare la  $^{14}\text{CO}_2$ .

# Capitolo 1

## Principi di funzionamento

### 1.1 Il *cavity ring down*

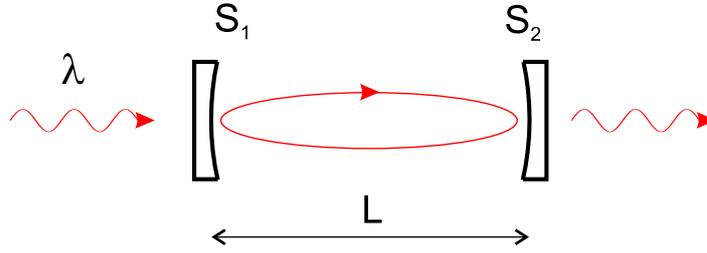
La tecnica del *cavity ring down* si basa sul decadimento esponenziale della luce in una cavità *Fabry-Perot* ad alta finezza che permette di avere un'elevata sensibilità [12, 13]. Originariamente questa tecnica nasce per la misura della riflettività di specchi ad alta riflettività [18, 19]. La possibilità di utilizzare questa tecnica per fare spettroscopia fu dimostrata da O'Keefe e Deacon [14] nel 1988 e tutt'oggi è una tecnica molto diffusa per misure di concentrazione.

Per comprendere il principio fisico che sta alla base della tecnica consideriamo un laser a una certa lunghezza d'onda  $\lambda$ , che sia risonante con un modo di una cavità composta da due specchi di riflettività  $R$  posti a distanza  $L$  (come schematizzato in figura 1.1). Se in un determinato istante ( $t = 0$ ) spengiamo il laser si ha che la potenza trasmessa per unità di tempo è data da

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P(t)}{\tau_0}$$

integrando si ha che la potenza rivelata in uscita in funzione del tempo è data da:

$$P(t) = P(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_0}\right)$$



**Figura 1.1:** Schema di una cavità *Fabry-Perot*: la cavità è composta da due specchi  $S_1$ ,  $S_2$  posti a distanza  $L$ .

con

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{c}{L}(1 - R + A) \quad (1.1)$$

dove  $\tau_0$  è la costante di decadimento della cavità vuota, dovuta alle perdite degli specchi e a eventuali altre perdite indicate con  $A$ . Se introduciamo nella cavità un mezzo assorbente, per esempio un gas che abbia una risonanza con la frequenza del laser, avremo un deterioramento della costante di decadimento. L'equazione (1.1) diventa

$$\frac{1}{\tau} = \frac{c}{L}(1 - R + A + \sigma nL)$$

dove  $\tau$  è la nuova costante di decadimento e dove abbiamo indicato rispettivamente con  $\sigma$  e  $n$  la sezione d'assorbimento e la densità del gas. Sottraendo otteniamo

$$\frac{1}{\tau} - \frac{1}{\tau_0} = c\sigma n$$

Conoscendo il valore di  $\sigma$  (si veda appendice A), ricavabile in funzione di lunghezza d'onda, temperatura, pressione e intensità di riga, possiamo determinare la densità  $n$ .

La minima assorbanza rivelabile rappresenta la sensibilità [20, 21] ed è data da

$$(\sigma nL)_{min} = \sqrt{2}(1 - R + A) \frac{\Delta\tau}{\tau_0}$$

dove  $\Delta\tau$  è l'incertezza sulla determinazione di  $\tau$ .

Allo stato attuale con questa tecnica è stato possibile ottenere una sensibilità di assorbanza  $\alpha L = 1.6 \cdot 10^{-10}$  in un secondo [22] ( $\alpha = \sigma n$ ) nella regione del vicino infrarosso ( $\sim 1030 \text{ nm}$ ).

## 1.2 *Optical Frequency Comb Synthesizer*

La difficoltà nel misurare in maniera assoluta frequenze ottiche ( $10^{14}\text{Hz}$ ) è legata alla mancanza di dispositivi in grado di contare direttamente oscillazioni a frequenze tanto elevate. Negli ultimi decenni una soluzione è stata quella di combinare standard di frequenza nelle microonde con metodi per ricondurre frequenze visibili nel dominio delle microonde o radiofrequenze, facilmente misurabili. Questo in genere si è ottenuto o con moltiplicazioni di frequenza dal basso o con divisioni dall'alto.

Lo standard primario di frequenza attualmente riconosciuto è l'orologio atomico al cesio che definisce il secondo, l'unità di misura del tempo nel Sistema Internazionale. Tale oscillatore è basato sulla frequenza a  $9.192\,631\,770 \text{ GHz}$  che connette le componenti iperfini  $F = 3$  e  $F = 4$  dello stato fondamentale dell'atomo di  $^{133}\text{Cs}$ . Il segnale di riferimento può oggi essere ricevuto dal sistema GPS, cui si aggancia un oscillatore locale.

Tutte le problematiche legate alla misura di frequenze ottiche partendo dalla regione delle microonde sono state risolte grazie all'invenzione dell'*Optical Frequency Comb Synthesizer* (OFCS) [15, 16], che ha sostituito l'intera catena con un solo anello. Questo strumento è dovuto principalmente al Prof. T.W.Hänsch (premio Nobel per la fisica 2005). Questo sistema utilizza laser *mode-locked* a femtosecondi con spettro allargato tramite fenomeni altamente non lineari in speciali fibre ottiche. Tale invenzione ha rivoluzionato la spettroscopia ottica di

alta precisione, collegando con un solo laser il dominio ottico agli standard nelle microonde.

Per capire come un treno di impulsi della durata di qualche femtosecondo abbia nello spazio delle frequenze una struttura “a pettine”, si può pensare che il campo all’uscita dalla cavità laser sia dato da un’onda fortemente modulata in ampiezza con una funzione periodica nel tempo di periodo  $T$ , determinato dalla lunghezza della cavità stessa e dalla velocità di gruppo dell’impulso; in particolare si può scrivere [24]:

$$E(t) = A(t)e^{-2\pi i\nu_c t} + c.c. = \sum_q A_q e^{-2\pi i(\nu_c + q\nu_r)t} + c.c. \quad (1.2)$$

dove  $\nu_c$  è la frequenza centrale di emissione,  $\nu_r = T^{-1}$  rappresenta la frequenza con cui vengono emessi gli impulsi e la funzione di modulazione di ampiezza  $A(t) = A(t - T)$  è stata scritta mediante la sua serie di Fourier, ovvero

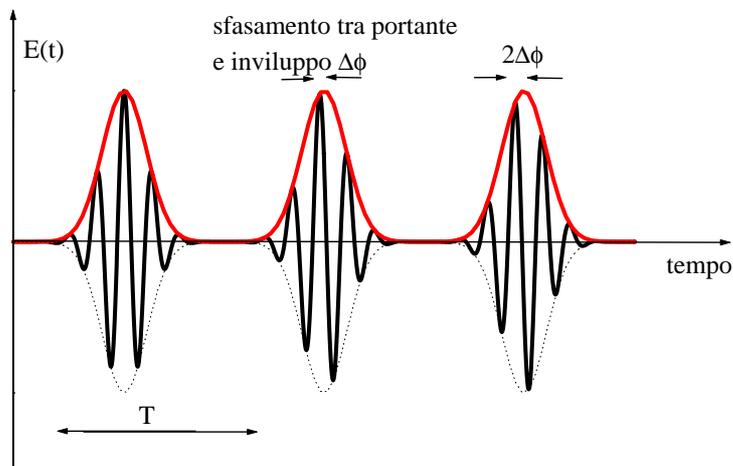
$$A_q = \frac{1}{T} \int_0^T A(t) e^{2\pi i q \nu_r t} dt$$

con  $q$  intero.

L’equazione (1.2) rappresenta lo spettro di  $E$ , costituito da un pettine di frequenze equispaziate della quantità  $\nu_r$ . È da notare che la (1.2) non costituisce una serie di Fourier, perché in generale  $E(t)$  non è periodico; in una cavità reale infatti c’è il fenomeno della dispersione per cui la velocità di gruppo differisce dalla velocità di fase; questo comporta uno sfasamento costante tra la portante e il suo involuppo tra un impulso e il successivo (vedi fig.(1.2)). Lo spettro di emissione è quindi costituito da un insieme discreto di frequenze date da

$$\nu_q = \nu_c + q\nu_r \quad (1.3)$$

Per identificare l’esatta posizione in frequenza di un qualunque modo non è perciò sufficiente specificare l’intero  $q$ , ma è necessario conoscere la frequenza centrale  $\nu_c$ .



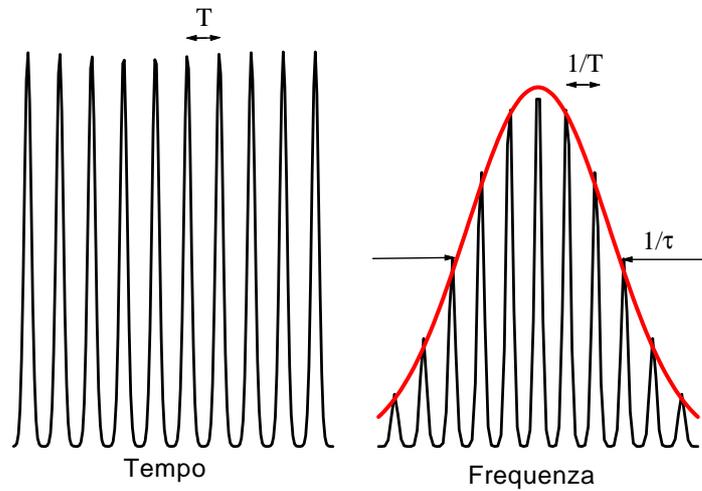
**Figura 1.2:** Effetto della dispersione in una cavità reale: tra un impulso e il successivo i massimi del campo elettrico e dell'involuppo sono sfasati di una quantità  $\Delta\phi$ .

L'equazione (1.3) rappresenta tutte le frequenze dei modi emessi da un laser impulsato. Dato che al crescere di  $|q|$  i coefficienti di Fourier  $A_q$  decrescono tendendo a zero, la larghezza di questo spettro è limitata proprio dalla copertura spettrale della trasformata di Fourier della funzione involuppo  $A(t)$ ; una buona misura di questa larghezza può essere data dall'inverso della durata di un singolo impulso (vedi fig.(1.3)).

Per uso metrologico si preferisce contare i modi a partire dalla frequenza di offset  $\nu_0$  scelta in maniera tale che  $0 < \nu_0 < \nu_r$ ; in questo modo le frequenze di emissione sono date da:

$$\nu_m = \nu_0 + m\nu_r \quad (1.4)$$

Se si sovrappone la radiazione di un laser in continua alla luce di un laser a femtosecondi, si ottiene una nota di battimento a una frequenza minore o



**Figura 1.3:** Nel dominio delle frequenze un treno di impulsi agganciati in fase si traduce in una serie di picchi molto stretti equispaziati la cui larghezza è data dall'inverso della durata di un singolo impulso.

al massimo uguale a  $\nu_r/2$ ; perciò si ha un collegamento diretto tra frequenze dell'ordine delle centinaia di THz e frequenze di 5-6 ordini di grandezza inferiori; valori tipici per  $\nu_r$  possono essere infatti quelli compresi tra 50 MHz e 1 GHz. Una volta che si ha un controllo diretto su  $\nu_0$  e  $\nu_r$ , e si è determinato l'intero  $m$ , un sistema di questo tipo costituisce un vero e proprio “righello ottico” per la misura delle frequenze.

Un sistema laser dal quale si ha naturalmente l'emissione di un treno di impulsi agganciati in fase, è un laser *mode-locked*. Il cuore del nostro OFCS è un laser a Ti:zaffiro che in modalità *mode-locked* emette un treno di impulsi della durata di circa 30 fs con uno spettro centrato intorno a 800 nm. Per ottenere il *mode-locking* è stata sfruttata una modulazione periodica delle perdite indotta per effetto Kerr [23] nel mezzo attivo. Per ottenere impulsi così corti, è necessa-

rio compensare la dispersione della velocità di gruppo, cioè la dipendenza della velocità di gruppo dalla lunghezza d'onda essenzialmente dovuta al cammino nel mezzo attivo; questo obiettivo viene raggiunto facendo in modo che lunghezze d'onda maggiori sperimentino un cammino ottico maggiore, ad esempio con una coppia di prismi in cavità. Nel nostro *comb* sono stati utilizzati speciali specchi detti *chirped* [25], sviluppati negli ultimi anni. Tali specchi hanno un rivestimento dielettrico a strati multipli molto complesso, con un cammino ottico dei singoli strati che non è costante, ma varia facendo sì che la penetrazione dell'onda dentro la struttura dello specchio abbia un andamento pressoché lineare in funzione della lunghezza d'onda.

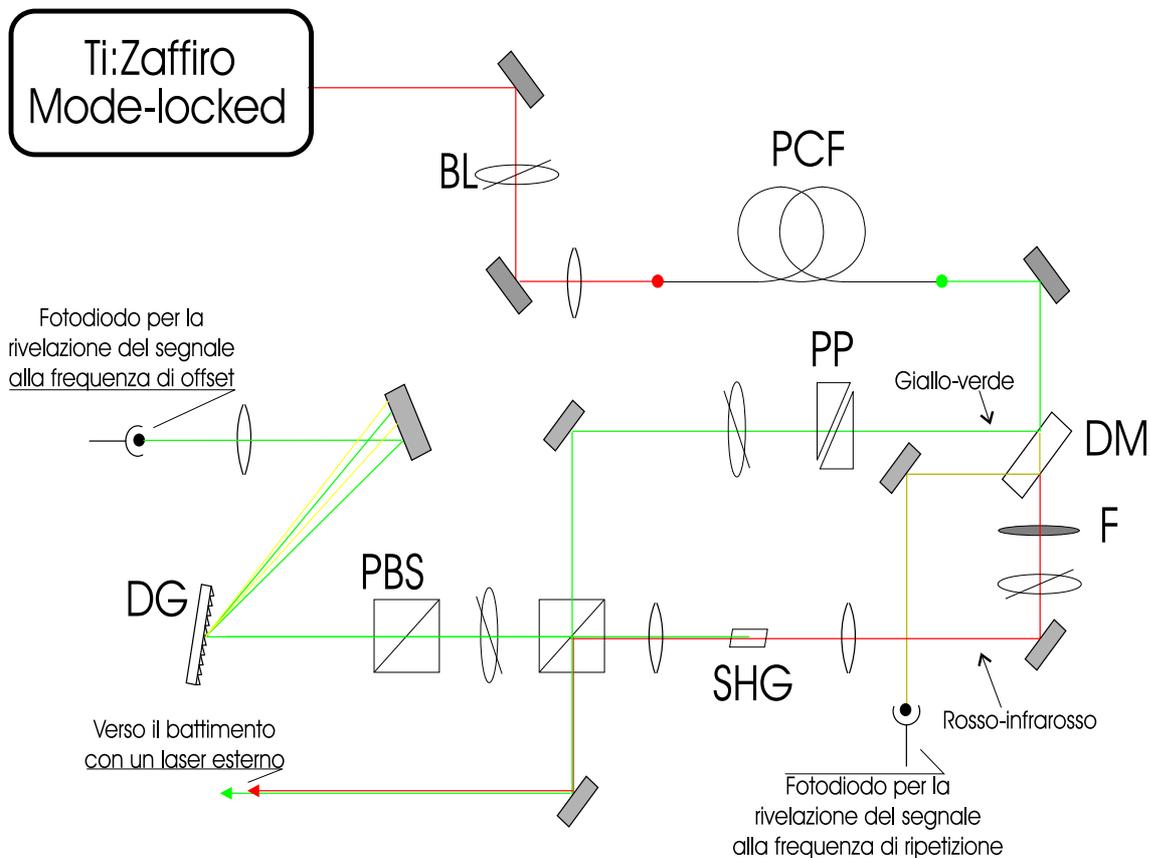
La copertura spettrale di un laser a femtosecondi può essere utilmente aumentata grazie alle *photonic crystal fibers* (PCF) [26]; tramite fenomeni non-lineari indotti dalle alte potenze di picco degli impulsi, una fibra di questo tipo genera uno spettro allargato fino a oltre un'ottava ottica e consente, oltre a un intervallo di frequenze misurabili più grande, un controllo diretto sulla frequenza di offset. Infatti dalla (1.4) sovrapponendo il modo  $2m$  con la seconda armonica del modo  $m$  si ottiene una frequenza di battimento

$$2\nu_m - \nu_{2m} = 2(\nu_0 + m\nu_r) - (\nu_0 + 2m\nu_r) = \nu_0. \quad (1.5)$$

Un OFCS in cui il controllo della frequenza di offset è ottenuto con questo metodo si dice *autoriferito*, in quanto non è necessario alcuno standard di frequenza al quale agganciare un dente del *comb* per determinare il parametro libero  $\nu_0$ .

### 1.2.1 Schema di funzionamento dell'OFCS

Lo schema ottico delle parti riguardanti la generazione dello spettro allargato oltre un'ottava ottica e la rivelazione dei segnali a frequenza  $\nu_0$  e  $\nu_r$  necessari alla stabilizzazione in frequenza del *comb* è mostrato in figura 1.4.



**Figura 1.4:** Schema ottico dell'OFCS: PCF fibra a cristallo fotonico, DM specchio dicroico, DG reticolo di diffrazione, PP coppia di prismi, SHG cristallo non-lineare per la generazione di seconda armonica, PBS cubo polarizzatore, BL lamina birifrangente, F filtro dicroico.

La radiazione emessa dal laser a femtosecondi viene iniettata in circa 34 cm di *photonic crystal fiber* tramite un obiettivo di accoppiamento, il fascio in uscita è nuovamente collimato con un obiettivo.

Lo specchio dicroico separa le parti giallo-verde e rossa-infrarossa dello spettro, che sono rispettivamente riflessa e trasmessa. Il fascio trasmesso così ottenuto è focalizzato in un cristallo non-lineare di KTP per la generazione di seconda armonica; si ottiene cioè la duplicazione in frequenza dei modi rossi-infrarossi

del *comb* che soddisfano la condizione di *phase matching*. Un filtro posto lungo il cammino della parte trasmessa dallo specchio diecrico, prima del cristallo di duplicazione, consente di eliminare la parte più verso il giallo di questa frazione trasmessa; questi modi, molto intensi, se non filtrati, potrebbero produrre degli effetti non desiderati di generazione di frequenza somma e differenza nel cristallo, togliendo efficienza al processo di duplicazione. Quindi, dopo la duplicazione, i cubi polarizzatori e le lamine birifrangenti permettono di ottenere la massima sovrapposizione delle polarizzazioni dei due campi elettrici (giallo-verde e rosso-infrarosso duplicato), incidenti insieme su di un reticolo di diffrazione; quest'ultimo ha la proprietà di trasferire il massimo di intensità non all'ordine 0 (riflessione speculare), ma all'ordine 1 di diffrazione (ovvero il reticolo si dice *blazed*). La parte duplicata insieme alla parte verde alla stessa lunghezza d'onda è inviata su un fotorecettore da 1 GHz: il segnale di battimento così ottenuto (come indicato dalla eq. (1.5)) è proprio alla frequenza di offset  $\nu_0$ . La funzione del reticolo è quella di disperdere angularmente la radiazione incidente: così i soli modi che contribuiscono al segnale vanno a finire sul rivelatore con un notevole miglioramento del rapporto segnale-rumore (SNR); la frangimento di un iride fra la lente e il fotodiodo consente di "ripulire" ulteriormente la radiazione dai modi che non contribuiscono al segnale, consentendo un ulteriore guadagno, sempre in termini di SNR. La coppia di prismi consente di inserire un ritardo variabile fra i due treni di impulsi che battono sul rivelatore (uno dei due prismi è montato su un traslatore): questo consente di far arrivare al rivelatore due impulsi sempre nello stesso istante, massimizzando il segnale.

La radiazione riflessa dalla faccia posteriore dello specchio diecrico (sostanzialmente gialla) viene invece inviata su un altro fotorecettore da 1 GHz; questo serve a ottenere, dal battimento di ciascun modo del *comb* con i due ad esso adiacenti, un segnale a frequenza  $\nu_r$ . In questo caso la presenza del reticolo ovviamente peggiorerebbe il SNR in quanto tutti i modi qui presenti contribuiscono

al segnale.

Una volta rivelate le due frequenze determinanti per la misura di frequenza assoluta è possibile stabilizzarle tramite un controllo sulla cavità del Ti:zaffiro. La frequenza  $\nu_r$  viene stabilizzata controllando il *Free Spectral Range* con un PZT su cui è montato un specchio piano della cavità. La frequenza  $\nu_0$  viene stabilizzata controllando la potenza di pompa del laser con un modulatore acusto-ottico. Le due frequenze vengono così agganciate a dei sintetizzatori riferiti a 10 MHz tramite un oscillatore al quarzo agganciato al segnale proveniente dallo standard primario ricevuto dal GPS.

Tutto il sistema è stabilizzato in temperatura grazie a un circolatore ad acqua, che ne mantiene la temperatura costante sui 20 gradi centigradi; in particolare sono raffreddate tutte le basi su cui sono montate le ottiche, la base del laser di pompa e il cristallo di Ti:zaffiro.

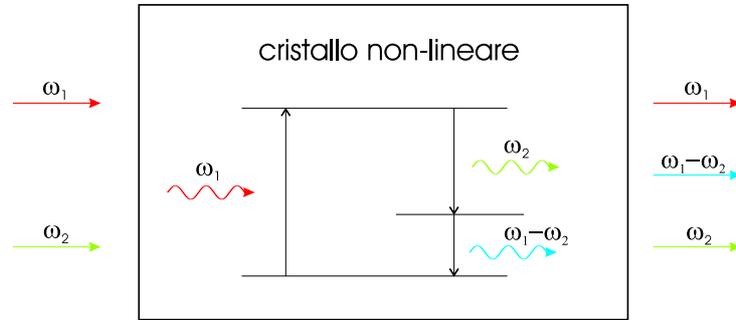
Per misurare la frequenza assoluta di un laser dopo aver fatto il battimento con il *comb* e misurato la frequenza di battimento, è sufficiente conoscere l'ordine  $m$  del dente con cui si è fatto il battimento. Nel nostro caso per individuare  $m$  utilizziamo un lambda-meter tarato, che ha un errore minore di  $\frac{\nu_r}{2}$ , per avere una misura grossolana della frequenza del laser in questione. Da tale misura, utilizzando l'equazione (1.4) è possibile calcolare  $m$  che ovviamente sarà approssimato a un intero. A questo punto conosciamo tutti gli elementi per la misura di frequenza assoluta del laser in questione.

### 1.3 Generazione di frequenza differenza

La conversione di frequenza è possibile nei cristalli ottici non lineari per i quali la polarizzazione dielettrica  $\mathbf{P}$  è data da

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi(\mathbf{E}) \mathbf{E} = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots] \quad (1.6)$$

dove  $\chi^{(i)}$  sono i coefficienti dello sviluppo in serie e  $\chi^{(1)}$  è la suscettività elettrica lineare. La propagazione di due onde monocromatiche con frequenza  $\omega_1$  e  $\omega_2$  in un mezzo con non linearità quadratica dà origine a un'onda con frequenza data dalla combinazione  $\omega_{\pm} = \omega_1 \pm \omega_2$ . Un caso particolare di questa combinazione è la generazione di seconda armonica (SHG) quando  $\omega_1 = \omega_2$  che dà origine a  $\omega_+ = 2\omega_1$ . Nel nostro caso siamo interessati alla generazione di frequenza per differenza (DFG), come mostrato schematicamente in figura 1.5.



**Figura 1.5:** Il cristallo non-lineare mescola, tramite un processo al secondo ordine, i due campi applicati alle frequenze  $\omega_1$  e  $\omega_2$  per generare un'onda alla frequenza differenza  $\omega_1 - \omega_2$ .

### 1.3.1 Formalismo della propagazione in un mezzo non lineare

In questa sezione ricaviamo quali sono le espressioni che regolano i processi non lineari con particolare attenzione alla generazione di frequenza differenza. Partendo dalle leggi di Maxwell

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D} \quad (1.7)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{H} \quad (1.8)$$

e tenendo presente che

$$\mathbf{D} = \epsilon_o \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (1.9)$$

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (1.10)$$

con opportune ipotesi possiamo ricavare l'equazioni che regolano l'interazioni non lineari. Consideriamo un mezzo quadraticamente non lineare, scriviamo la polarizzazione come somma di due elementi, uno lineare e uno quadratico con il campo elettrico:

$$\mathbf{P} = \epsilon_o \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \quad (1.11)$$

$$\mathbf{P}_{NL} = 2\epsilon_o \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \quad (1.12)$$

dove è stata usata la notazione classica [11]

$$\chi_{ijk}^{(2)} \equiv 2d_{ijk} \quad (1.13)$$

Sostituendo le varie espressioni si ottiene che l'equazione (1.7) diventa

$$\nabla \times \mathbf{H} = \sigma \mathbf{E} + \epsilon \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}_{NL} \quad (1.14)$$

con

$$\epsilon \equiv \epsilon_o [1 + \chi^{(1)}] \quad (1.15)$$

Applicando la funzione rotore ad entrambi i membri dell'equazione (1.8), utilizzando l'identità vettoriale

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$$

e prendendo nel caso più semplice  $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ , otteniamo

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu\sigma \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} + \mu\epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} + \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{NL} \quad (1.16)$$

Assumiamo per semplicità che il vettore di polarizzazione non lineare  $\mathbf{P}_{NL}$  sia parallelo al campo elettrico  $\mathbf{E}$ , quindi possiamo scrivere l'equazione (1.16) in forma scalare

$$\nabla^2 E = \mu\sigma \frac{\partial}{\partial t} E + \mu\epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} E + \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} P_{NL} \quad (1.17)$$

Consideriamo un campo dovuto a tre onde piane propaganti lungo l'asse  $z$  con frequenza  $\omega_{1,2,3}$  [27]

$$e(z, t) = e_1(z, t) + e_2(z, t) + e_3(z, t) \quad (1.18)$$

con

$$\begin{aligned} e_1(z, t) &= E_1(z)e^{i(k_1z - \omega_1t)} \\ e_2(z, t) &= E_2(z)e^{i(k_2z - \omega_2t)} \\ e_3(z, t) &= E_3(z)e^{i(k_3z - \omega_3t)} \end{aligned} \quad (1.19)$$

sostituendo l'equazione (1.18), utilizzando le (1.19), nell'equazione delle onde (1.17) si trova che, nei termini legati a  $P_{NL}$ , ci sono termini che oscillano alle frequenze  $\omega_{1,2,3}$  più altri oscillanti a frequenze date  $\omega_i \pm \omega_j$  con  $i \neq j = 1, 2, 3$ . I termini legati a  $P_{NL}$  sono:

$$\begin{array}{ll} \epsilon_o d_{2\omega_1} E_1^2 e^{2i(k_1z - \omega_1t)} & \epsilon_o d_0 |E_1|^2 \\ \epsilon_o d_{2\omega_2} E_2^2 e^{2i(k_2z - \omega_2t)} & \epsilon_o d_0 |E_2|^2 \\ \epsilon_o d_{2\omega_3} E_3^2 e^{2i(k_3z - \omega_3t)} & \epsilon_o d_0 |E_3|^2 \\ 2\epsilon_o d_{\omega_1 + \omega_2} E_1 E_2 e^{i[(k_1 + k_2)z - (\omega_1 + \omega_2)t]} & 2\epsilon_o d_{\omega_1 - \omega_2} E_1 E_2^* e^{i[(k_1 - k_2)z - (\omega_1 - \omega_2)t]} \\ 2\epsilon_o d_{\omega_1 + \omega_3} E_1 E_3 e^{i[(k_1 + k_3)z - (\omega_1 + \omega_3)t]} & 2\epsilon_o d_{\omega_1 - \omega_3} E_1 E_3^* e^{i[(k_1 - k_3)z - (\omega_1 - \omega_3)t]} \\ 2\epsilon_o d_{\omega_2 + \omega_3} E_2 E_3 e^{i[(k_2 + k_3)z - (\omega_2 + \omega_3)t]} & 2\epsilon_o d_{\omega_2 - \omega_3} E_2 E_3^* e^{i[(k_2 - k_3)z - (\omega_2 - \omega_3)t]} \end{array}$$

In generale queste oscillazioni non saranno sincrone quindi non produrranno nessun effetto. Se, per esempio, abbiamo che

$$\omega_1 = \omega_3 - \omega_2 \quad (1.20)$$

allora il termine

$$2\mu\epsilon_o d \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_3 E_2^* e^{i[(k_3 - k_2)z - (\omega_3 - \omega_2)t]} \quad (1.21)$$

che oscilla alla frequenza  $\omega_1$  che può essere interpretato come una sorgente di un'onda a frequenza  $\omega_1$ ; praticamente si ha un passaggio di potenza dai campi  $E_2, E_3$  verso  $E_1$ .

Assumendo di essere nel caso in cui l'equazione (1.20) sia valida possiamo riscrivere l'equazione (1.17) per la frequenza di oscillazione  $\omega_1$

$$\nabla^2 e_1 = \mu_1 \sigma_1 \frac{\partial}{\partial t} e_1 + \mu_1 \epsilon_1 \frac{\partial^2}{\partial t^2} e_1 + 2\mu_1 \epsilon_o d \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_3(z) E_2^*(z) e^{i[(k_3 - k_2)z - (\omega_3 - \omega_2)t]} \quad (1.22)$$

Dall'espressione del campo  $e_1$  si trova che

$$\begin{aligned} \nabla^2 e_1 &= \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_1(z) e^{i(k_1 z - \omega_1 t)} \\ &= \left[ -k_1^2 E_1(z) + 2ik_1 \frac{d}{dz} E_1(z) \right] e^{i(k_1 z - \omega_1 t)} \end{aligned} \quad (1.23)$$

dove abbiamo assunto che

$$\left| k_1 \frac{d}{dz} E_1(z) \right| \gg \left| \frac{d^2}{dz^2} E_1(z) \right| \quad (1.24)$$

Usando l'equazione (1.20) e (1.22) e prendendo  $\partial/\partial t = -i\omega_1$  otteniamo

$$\begin{aligned} &\left[ -k_1^2 E_1(z) + 2ik_1 \frac{d}{dz} E_1(z) \right] e^{i(k_1 z - \omega_1 t)} \\ &= -\left( i\omega_1 \mu_1 \sigma_1 + \omega_1^2 \mu_1 \epsilon_1 \right) E_1(z) e^{i(k_1 z - \omega_1 t)} \\ &\quad - 2\omega_1^2 \mu_1 \epsilon_o d E_3(z) E_2^*(z) e^{i[(k_3 - k_2)z - \omega_1 t]} \end{aligned} \quad (1.25)$$

Sapendo che

$$k^2 = \omega^2 \mu \epsilon$$

possiamo riscrivere l'equazione (1.25), dopo aver moltiplicato tutto per  $e^{-i(k_1 z - \omega_1 t)}/2ik_1$ , come

$$\frac{d}{dz} E_1 = -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_1}{\epsilon_1}} E_1 + \frac{i\omega_1 d_1}{cn_1} E_3 E_2^* e^{i(k_3 - k_2 - k_1)z} \quad (1.26)$$

e, analogamente, per i campi  $\omega_2$  and  $\omega_3$  troviamo

$$\frac{d}{dz} E_2^* = -\frac{\sigma_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_2}{\epsilon_2}} E_2^* + \frac{i\omega_2 d_2}{cn_2} E_3^* E_1 e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z} \quad (1.27)$$

$$\frac{d}{dz} E_3 = -\frac{\sigma_3}{2} \sqrt{\frac{\mu_3}{\epsilon_3}} E_3 + \frac{i\omega_3 d_3}{cn_3} E_2 E_1 e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z} \quad (1.28)$$

Queste sono le equazioni basilari per la descrizione dei processi non lineari al secondo ordine. Da notare che i campi sono accoppiati l'un l'altro tramite il coefficiente  $d$ .

### 1.3.2 Efficienza di generazione

Prendendo in esame solo l'equazione (1.26), consideriamo per semplicità di calcolo che  $\mu_{1,2,3} \equiv \mu_o$  e che l'assorbimento sia trascurabile ( $\sigma_{1,2,3} = 0$ ), con queste ipotesi l'equazione diventa

$$\frac{d}{dz} E_1 = \frac{i\omega_1 d_1}{cn_1} E_3(z) E_2^*(z) e^{i\Delta k' z} \quad (1.29)$$

dove

$$\Delta k' \equiv k_3 - k_2 - k_1 \quad (1.30)$$

A questo punto consideriamo anche che lo svuotamento dei campi  $E_2, E_3$  verso  $E_1$  sia trascurabile<sup>1</sup> (quindi si possono considerare costanti in funzione di  $z$ ) e che il campo iniziale a frequenza  $\omega_1$  sia zero; integrando l'equazione (1.29) troviamo che alla fine del mezzo di lunghezza  $l$  si ha

$$E_1(l) = \frac{i\omega_1 d_1}{cn_1} E_3 E_2^* \frac{e^{i\Delta k' l} - 1}{i\Delta k'}$$

Considerando che i tre fasci sono interagenti in una sezione  $A$  e tenendo presente la relazione che lega la potenza per unità di superficie al campo

$$I \equiv \frac{P}{A} = \frac{\epsilon_o c n}{2} |E|^2$$

si trova che l'efficienza di conversione è

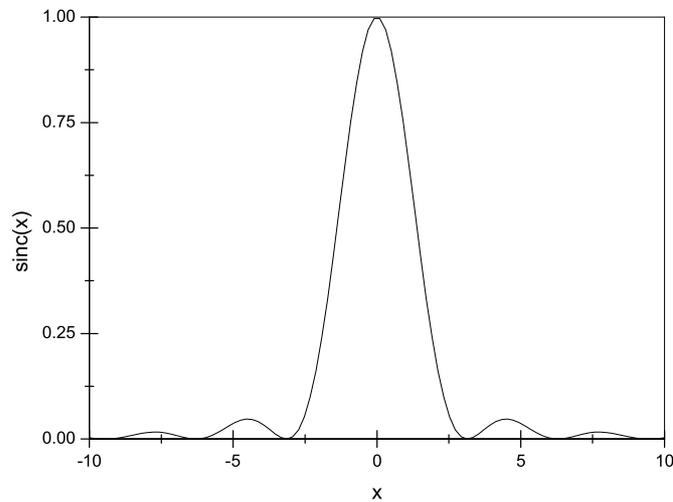
$$\eta_{pw}(A, l) \equiv \frac{P_1}{P_2 P_3} = \frac{8\pi^2}{\epsilon_o c} \frac{d_1^2}{\lambda_1^2 n_1 n_2 n_3} \frac{l^2}{A} \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k' l}{2} \right) \quad (1.31)$$

dove

$$\text{sinc}(x) \equiv \frac{\sin x}{x}$$

---

<sup>1</sup>questa condizione è soddisfatta nella maggior parte degli esperimenti.



**Figura 1.6:** La potenza della radiazione generata per differenza ha una dipendenza da  $x = \Delta k' l / 2$  secondo la funzione  $\text{sinc}(x)$ .

### 1.3.3 *Phase-matching*

Dall'equazione(1.31) è evidente che la massima efficienza si ha quando  $\Delta k' = 0$ , ovvero

$$k_2 + k_1 = k_3 \quad (1.32)$$

perché la funzione  $\text{sinc}(x)$  ha un massimo per  $x=0$  (come mostrato in figura 1.6), questa condizione è detta *phase-matching*. Da notare che, se  $\Delta k' \neq 0$ , a parte l'andamento oscillatorio, l'efficienza del processo di generazione decresce al crescere di  $\Delta k' l / 2$ . La ragione fisica è che l'onda generata può andare fuori fase rispetto alla polarizzazione che la genera, quindi si avrà che l'onda generata in un piano  $z_2$  del cristallo si troverà non in fase con quella che, generata in un piano  $z_1$ , arriva a  $z_2$ . Questo porta a una interferenza fra le onde prodotte, che è descritta proprio dal fattore  $\text{sinc}^2(\Delta k' l / 2)$ .

Un'altra grandezza importante è la lunghezza di coerenza ( $l_c$ ) che è data dalla

distanza tra il picco principale e il primo nodo della funzione  $\text{sinc}(x)$

$$l_c \equiv \frac{2\pi}{\Delta k'} = \frac{2\pi}{k_3 - k_2 - k_1}$$

Questo parametro è importante perchè fornisce un'idea della lunghezza massima del cristallo che viene usato per la generazione. In condizioni ordinarie questa lunghezza non supera i  $100 \mu\text{m}$ , a causa del fatto che l'indice di rifrazione cresce con  $\omega$ . Nella pratica vengono usati materiali birifrangenti sfruttando il fatto che la luce risente di un indice di rifrazione diverso a seconda di come è diretta la polarizzazione.

Nei mezzi isotropi la polarizzazione indotta è legata al campo elettrico tramite la costante dielettrica  $\epsilon$ , che in questo caso è uno scalare; la polarizzazione indotta e campo elettrico sono dunque paralleli e la costante dielettrica non dipende dalla direzione del campo applicato. Nei cristalli anisotropi, invece, la relazione che lega le componenti della polarizzazione lineare indotta al campo elettrico applicato può essere scritta come

$$\begin{aligned} P_x &= \epsilon_0 \chi_{11} E_x \\ P_y &= \epsilon_0 \chi_{22} E_y \\ P_z &= \epsilon_0 \chi_{33} E_z \end{aligned} \tag{1.33}$$

dove  $x$ ,  $y$  e  $z$  sono gli *assi dielettrici principali* del cristallo. Una delle conseguenze più importanti di questa anisotropia dielettrica è il fenomeno della *birifrangenza*, nel quale la velocità di fase di un'onda elettromagnetica che si propaga nel cristallo in una data direzione dipende dalla sua direzione di polarizzazione. Ponendo  $\epsilon_{jj} = \epsilon_0(1 + \chi_{jj})$ , con  $j = 1,2,3$ , possiamo definire l'indice di rifrazione  $n_x$  relativo all'asse  $x$  del cristallo come

$$n_x^2 = \frac{\epsilon_{11}}{\epsilon_0} \tag{1.34}$$

e analogamente per gli altri assi. Nel caso di un cristallo *uniassiale*, cioè un cristallo con un singolo asse di simmetria detto *asse ottico*, la situazione è più

semplice. Prendendo l'asse di simmetria come asse  $z$ , abbiamo evidentemente  $\epsilon_{11} = \epsilon_{22}$ . Un'onda che si propaga nel cristallo può sperimentare quindi due indici di rifrazione diversi  $n_o$  ed  $n_e$  detti indice di rifrazione *ordinario* e *straordinario* rispettivamente.

Possiamo scrivere

$$k_j \equiv k(\omega_j) = \frac{\omega_j}{c} n_j$$

dove naturalmente  $n_j \equiv n(\omega_j)$ . Allora, fissata la direzione di propagazione e la polarizzazione dei campi incidenti sul cristallo, la condizione (1.32) si riscrive come

$$\omega_1 n(\omega_1) + \omega_2 n(\omega_2) = \omega_3 n(\omega_3) \quad (1.35)$$

dove, lo ricordiamo,  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . In generale, nei materiali trasparenti alle frequenze di interesse l'indice di rifrazione in una data direzione aumenta con  $\omega$ , questo rende irraggiungibile la condizione di *phase-matching* (1.35) quando sia l'onda  $\omega_3$  che le onde  $\omega_1$  e  $\omega_2$  abbiano tutte la stessa polarizzazione. Infatti, con facili passaggi, la (1.35) può essere riscritta come segue:

$$n(\omega_3) - n(\omega_2) = [n(\omega_1) - n(\omega_2)] \frac{\omega_1}{\omega_3} \quad (1.36)$$

Poiché  $\omega_3 > \omega_1$ , per soddisfare la precedente equazione deve essere

$$n(\omega_1) - n(\omega_2) > n(\omega_3) - n(\omega_2)$$

da cui si ottiene che  $n(\omega_1) > n(\omega_3)$ ; evidentemente impossibile dato che  $n$  aumenta con la frequenza.

La (1.35) può essere invece soddisfatta quando l'onda a più alta frequenza e le altre due sono di diverso tipo. Per raggiungere la condizione di *phase-matching* è necessario che l'onda alla frequenza maggiore,  $\omega_3$ , sia polarizzata nella direzione associata al minore dei due indici di rifrazione. Nel caso di cristalli uniassiali, un'onda polarizzata perpendicolarmente al piano individuato dal vettore di propagazione  $\mathbf{k}$  e l'asse ottico è detta avere *polarizzazione ordinaria*: questa onda

vede l'indice di rifrazione ordinario  $n_o$ . Un'onda polarizzata nel piano che contiene  $\mathbf{k}$  e l'asse ottico, invece, si dice che ha *polarizzazione straordinaria*: questa onda vede un indice di rifrazione straordinario  $n_e(\theta)$  che dipende dall'angolo  $\theta$  tra l'asse ottico e il vettore  $\mathbf{k}$  secondo la relazione [28]

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} + \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} \quad (1.37)$$

È possibile raggiungere il *phase-matching* scegliendo un angolo  $\theta$  tale che  $n_e(\theta)$  soddisfi la condizione  $\Delta k = 0$ . Nel 1965 Midwinter e Warner [29] individuarono due tipi di *phase-matching*: il *phase-matching di tipo I* in cui le due onde a frequenza minore hanno la stessa polarizzazione, e quello *di tipo II* quando invece hanno polarizzazioni ortogonali. La tabella (1.1) riassume queste due condizioni di *phase-matching* per cristalli uniassiali. Nel caso di cristalli uniassiali negativi, ad esempio, come il  $LiNbO_3$ , si può avere *phase-matching* solo se l'onda  $\omega_3$  ha polarizzazione straordinaria.

	Uniassiali positivi ( $n^e > n^o$ )	Uniassiali negativi ( $n^e < n^o$ )
Tipo I	$n_3^o\omega_3 = n_1^e\omega_1 + n_2^e\omega_2$	$n_3^e\omega_3 = n_1^o\omega_1 + n_2^o\omega_2$
Tipo II	$n_3^o\omega_3 = n_1^o\omega_1 + n_2^e\omega_2$	$n_3^e\omega_3 = n_1^e\omega_1 + n_2^o\omega_2$

**Tabella 1.1:** Condizioni di *phase-matching* per i cristalli uniassiali

In tutto questo discorso si deve tener conto di un fattore importante: quando l'angolo  $\theta$  è diverso da 0 o da  $90^\circ$ , il vettore di Poynting  $\mathbf{S}$  e il vettore di propagazione dell'onda  $\mathbf{k}$  non sono in generale paralleli per i raggi straordinari. Come conseguenza raggi ordinari e straordinari con vettori di propagazione paralleli divergeranno rapidamente nel propagarsi nel cristallo. Questo effetto è detto di *walkoff* e limita la sovrapposizione spaziale dei due campi applicati, abbassando così l'efficienza di conversione del processo non-lineare. Per molti cristalli, ad

esempio il  $LiNbO_3$ , gli indici di rifrazione dipendono fortemente dalla temperatura [30]. È quindi possibile raggiungere la condizione di *phase-matching* tenendo  $\theta$  fisso a  $90^\circ$  e variando la temperatura del cristallo. In questo modo si evita il processo indesiderato di *walkoff*. Una breve trattazione per la dipendenza degli indici di rifrazione dalla temperatura per il  $LiNbO_3$  è riportata nel paragrafo 2.3.1.

### 1.3.4 Quasi-phase-matching

Nel nostro caso abbiamo utilizzato una tecnica alternativa per ottenere generazione di frequenza differenza, che ha il nome di *quasi-phase-matching* [32]. Questa tecnica sfrutta un cristallo birifrangente trattato in modo tale da invertire periodicamente la direzione di uno dei suoi assi principali. Questo fa sì che, per una appropriata orientazione del cristallo e per una determinata direzione di polarizzazione delle onde interagenti, il fattore  $d_i$  responsabile dell'interazione (si vedano equazioni (1.26),(1.27),(1.28)) risulti modulato periodicamente.

Supponiamo che  $d$  sia periodico di periodo  $\Lambda$ , sviluppando in serie

$$d(z) = d_{bulk} \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m e^{-im\frac{2\pi}{\Lambda}z} \quad (1.38)$$

e sostituendo nell'equazione (1.29) si trova

$$\frac{d}{dz}E_1 = \frac{i\omega_1 d_{bulk}}{cn_1} E_3 E_2^* \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m e^{i(k_3 - k_2 - k_1 - m\frac{2\pi}{\Lambda})z} \quad (1.39)$$

A questo punto il *phase matching* sarà soddisfatto quando

$$k_3 - k_2 - k_1 - m\frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \quad (1.40)$$

con  $m$  intero. Definiammo

$$K \equiv m\frac{2\pi}{\Lambda} \quad (1.41)$$

$$\Delta k \equiv \Delta k' - K \quad (1.42)$$

così la condizione (1.40) diventa  $\Delta k = 0$ . Trascurando i termini che non soddisfano il *quasi-phase-matching* (il loro contributo tende a zero su distanze maggiori della lunghezza di coerenza) possiamo riscrivere la (1.39) come

$$\frac{d}{dz} E_1 = \frac{i\omega_1 a_m d_{bulk}}{cn_1} E_3 E_2^* e^{i(k_3 - k_2 - k_1 - m \frac{2\pi}{\Lambda})z} \quad (1.43)$$

$$a_m = \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda \frac{d(z)}{d_{bulk}} e^{im \frac{2\pi}{\Lambda} z} dz \quad (1.44)$$

Prendendo in esame un semplice caso di periodicità spaziale dove  $d(z)$  passa da  $d_{bulk}$  a  $-d_{bulk}$  ogni  $\Lambda/2$  e prendendo<sup>2</sup>  $m = 1$  si trova che

$$d_{eff} = a_1 d_{bulk} = \frac{2}{\pi} d_{bulk} \quad (1.45)$$

In principio questa configurazione potrebbe dare la stessa efficienza del *phase-matching*, a patto di avere una più grande lunghezza di interazione.

Per comprendere meglio l'idea di base del *quasi-phase-matching* notiamo che i punti in cui si inverte il segno del fattore di interazione

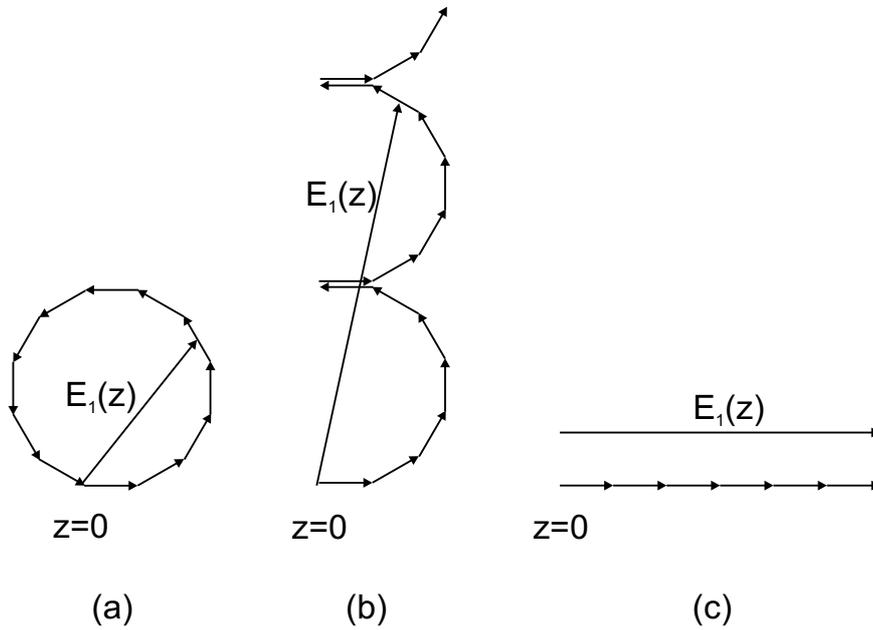
$$z = q \frac{l_c}{2} \quad q = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$$

sono quelli in cui si ha il processo inverso nel caso del *non phase-matching*. In questo modo si ha sempre una crescita del campo. Questo è meglio comprensibile visualizzando l'interazione nel piano dei complessi. Analizzando nello specifico la generazione per differenza, dividiamo la lunghezza di interazione  $l$  in piccoli segmenti di lunghezza  $\Delta z$  tale che  $\Delta k' \Delta z \ll \pi$  e scriviamo l'incremento di  $E_1(z)$  dovuto all'interazione nel segmento  $\Delta z$  centrato in  $z$ :

$$\Delta E_1(z) = \frac{i\omega_1 d(z)}{cn_1} E_3 E_2^* e^{i\Delta k' z} \Delta z \quad (1.46)$$

Aggiungendo vettorialmente l'incremento  $\Delta E_1$  otteniamo il diagramma mostrato in figura 1.7.

<sup>2</sup>Con un opportuno valore di  $\Lambda$  si può ottenere  $m = 1$ .



**Figura 1.7:** Evoluzione del fasore  $E_1(z)$  nel caso di *non-phase-matching* (a), *quasi-phase-matching* (b) e *phase-matching* in un mezzo birifrangente ( $\Delta k' = 0$ ) (c).

Nel primo caso il fasore cresce fino a un massimo in  $z = \pi/\Delta k'$ , per poi decrescere fino a zero in  $z = 2\pi/\Delta k'$ . Nel secondo caso, quando siamo a  $z = \pi/\Delta k'$ , il coefficiente d'interazione cambia segno (grazie alla periodicit  del mezzo) e di conseguenza  $E_1$  cresce monotonamente anche se con un *rate* pi  piccolo rispetto al terzo caso dove   rappresentato il *phase-matching* in un mezzo birifrangente.

Questa tecnica   estremamente vantaggiosa, sia per la semplicit  di realizzazione, sia per la pi  alta efficienza di conversione che permette di ottenere. Infatti, scegliendo opportunamente il periodo dell'inversione dei domini si pu  realizzare qualunque interazione all'interno dell'intervallo di trasparenza del materiale, in pratica si elimina completamente la dipendenza dalla birifrangenza. Questo permette di scegliere la stessa polarizzazione e la stessa direzione di propagazione per tutte le onde interagenti, le onde sono dunque tutte ordinarie o tutte

straordinarie eliminando così anche il fenomeno indesiderato di *walkoff*. L'efficienza di conversione ottenibile è molto più elevata rispetto al *phase-matching* birifrangente poiché, nonostante il coefficiente non-lineare efficace sia apparentemente ridotto del fattore  $2/\pi$ , il *quasi-phase-matching* permette di utilizzare gli elementi diagonali della matrice  $d$ , con valori maggiori di quelli fuori diagonale. Nel nostro caso ad esempio le tre onde interagenti hanno tutte polarizzazione lungo l'asse ottico del cristallo, sono cioè tutte straordinarie, nel processo viene coinvolto il coefficiente  $d_{33}$  che, nel caso del  $LiNbO_3$ , è circa 7 volte maggiore del  $d_{31}$ . Nella tabella B.1 sono riportate le espressioni per  $d_{eff}$  in funzione del tipo di interazione; per il nostro cristallo che appartiene al gruppo  $C_{3v}$  si hanno i seguenti valori massimi [31]:

$$|d_{I-}| = 3.76 \pm 0.38 \text{ pm/V} \quad (1.47)$$

$$|d_{II-}| = |d_{oe}| = 2.10 \pm 0.21 \text{ pm/V} \quad (1.48)$$

mentre per il *quasi-phase-matching* otteniamo

$$|d_{eff}| = \frac{2}{\pi} |d_{33}| = 17.3 \pm 1.7 \text{ pm/V} \quad (1.49)$$

Poiché l'efficienza del processo è proporzionale a  $d_{eff}^2$ , il *quasi phase-matching* assicura una potenza circa 20 volte maggiore per il fascio infrarosso generato.

In fine, bisogna notare, che questa tecnica oltre che avere vantaggi di efficienza ha anche vantaggi di tipo pratico rispetto al *phase-matching*. Infatti permette di avere una banda più larga di frequenze di lavoro semplicemente cambiando la temperatura del cristallo, inoltre, come già detto, essendo una geometria collineare non ci sono problemi di *walkoff*.

## 1.4 La molecola di CO<sub>2</sub>

Inizialmente vediamo classicamente la struttura vibrazionale della molecola, dopodichè aggiungeremo la parte quantistica. La molecola di CO<sub>2</sub> è una molecola

$D_{\infty h}$	$I$	$2C_{\infty}^{\phi}$	$2S_{\infty}^{\phi}$	$\infty C_2$	$\infty \sigma_v$	$\sigma_h$	$i$	$ l_i $	$\nu_i$	simmetria
$\Sigma_g^+$	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	0	$\nu_1$	$x^2 + y^2; z^2$
$\Sigma_u^+$	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	0	$\nu_3$	$z$
$\Sigma_g^-$	+1	+1	+1	-1	-1	+1	+1	0		$J_z$
$\Sigma_u^-$	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	0		
$\Pi_g$	+2	+2 cos $\phi$	-2 cos $\phi$	0	0	-2	+2	+1		$(J_x, J_y); (xz, yz)$
$\Pi_u$	+2	+2 cos $\phi$	+2 cos $\phi$	0	0	+2	-2	+1	$\nu_2$	$(x, y)$
$\Delta_g$	+2	+2 cos 2 $\phi$	+2 cos 2 $\phi$	0	0	+2	+2	+2		$(x^2 - y^2, xy)$
$\Delta_u$	+2	+2 cos 2 $\phi$	-2 cos 2 $\phi$	0	0	-2	-2	+2		
...	...	...	...	...	...	...	...	...		

**Tabella 1.2:** Caratteristiche delle simmetrie del gruppo  $D_{\infty h}$ .

lineare simmetrica appartenente al gruppo  $D_{\infty h}$  (vedi tabella 1.2).

Ci sono tre modi fondamentali di vibrazione,  $\nu_1$ ,  $\nu_2$ , e  $\nu_3$ , che sono associati con la specie  $\Sigma_g^+$ ,  $\Pi_u$ , e  $\Sigma_u^+$ , rispettivamente (Figura 1.8). La specie  $\Pi_u$  rappresenta una doppia degenerazione vibrazionale, solitamente indicate con  $\nu_{2a}$  e  $\nu_{2b}$  che si hanno nel piano del foglio e in quello perpendicolare al foglio. Solitamente lo stato viene rappresentato con i numeri quantici vibrazionali  $|v_1, v_2^{l_2}, v_3\rangle$ .

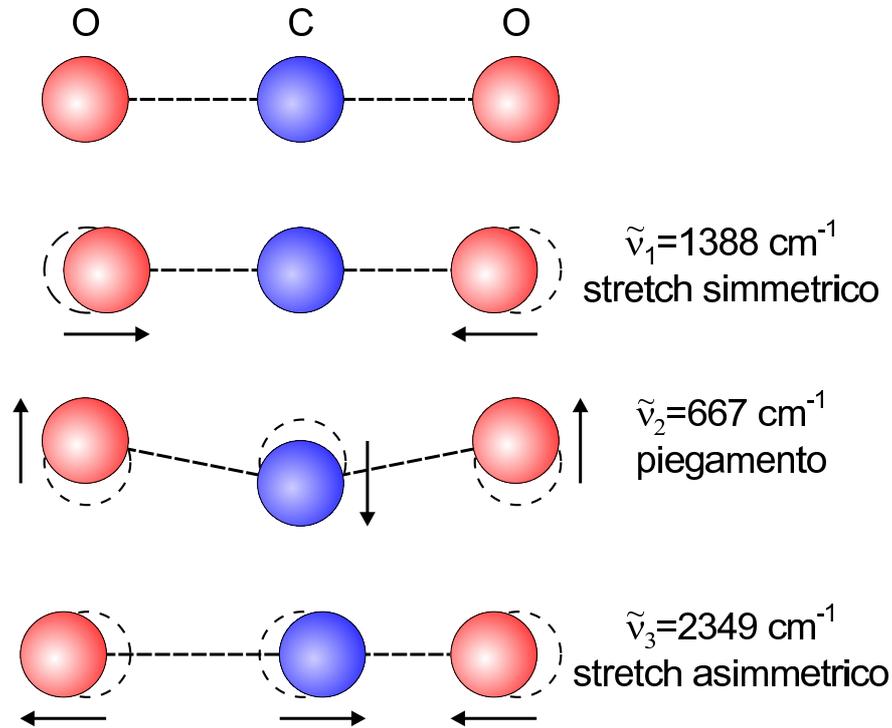
Il potenziale  $V$  e l'energia cinetica  $T$  espresse in termini di coordinate cartesiane sono

$$\begin{aligned}
 V &= \frac{1}{2} \sum_{ij} k'_{ij} q'_i q'_j \\
 &= \frac{1}{2} [k_1 q_1^2 + k_2 (q_{2a}^2 + q_{2b}^2) + k_3 q_3^2]
 \end{aligned} \tag{1.50}$$

$$\begin{aligned}
 T &= \frac{1}{2} \sum_{ij} (m'^{-1})_{ij} p'_i p'_j \\
 &= \frac{1}{2} \left[ \frac{p_1^2}{m_1} + \frac{p_{2a}^2 + p_{2b}^2}{m_2} + \frac{p_3^2}{m_3} \right]
 \end{aligned} \tag{1.51}$$

dove  $k_{ij}$  e  $(m^{-1})_{ij}$  sono, rispettivamente, il tensore di elasticità e l'inverso del tensore di massa. Le frequenze dei modi normali possono essere espresse come

$$\nu_i = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_i}{m_i}} \tag{1.52}$$



**Figura 1.8:** Modi fondamentali di vibrazione della molecola di CO<sub>2</sub> con rispettive frequenze centrali.

Si deve notare che il concetto di modi normali vale per oscillazioni infinitamente piccole, in realtà le oscillazioni non saranno infinitamente piccole e quindi si avranno delle oscillazioni più o meno anarmoniche. In altre parole, oltre ai termini quadratici, devono essere introdotti altri termini di ordine più alto nel potenziale. Questo darà luogo a una espressione per l'energia che non sarà più una semplice somma di termini indipendenti, corrispondenti ai singoli modi normali di vibrazione, ma ci saranno termini legati a due o più modi normali.

### 1.4.1 Livelli energetici rotazionali

L'Hamiltoniana di una molecola lineare [33] è

$$H_r = hB_v \mathbf{J}^2 \quad (1.53)$$

dove  $\mathbf{J}$  è il momento angolare adimensionale e il pedice  $v$  indica la dipendenza della costante  $B$  dal particolare stato vibrazionale, tale dipendenza è data da

$$B_v = B_o - \sum_i \alpha_i \left( v_i + \frac{d_i}{2} \right) \quad (1.54)$$

dove  $v_i$  sono i numeri quantici di vibrazione,  $d_i = 1$  la sua degenerazione e  $\alpha_i$  una costante. I livelli energetici sono dati da

$$\frac{E_r(J)}{h} = B_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2 + H_v J^3(J+1)^3 + L_v J^4(J+1)^4 \quad (1.55)$$

I termini  $D_v$ ,  $H_v$ , e  $L_v$  sono dovuti alla non rigidità della molecola (distorsione centrifuga). Anche per questi termini vale una relazione tipo l'equazione (1.54). Per avere un'idea degli ordini di grandezza riportiamo in tabella 1.3 le costanti rotazionali dello stato vibrazionale fondamentale.

costante	valore
$B_0$	$\sim 11.70$ GHz
$D_0$	$\sim 3.997$ kHz
$H_0$	$\sim 0.131$ mHz

**Tabella 1.3:** Costanti rotazionali per lo stato vibrazionale fondamentale della molecola di  $CO_2$

### 1.4.2 Livelli energetici vibrazionali

Nell'approssimazione armonica l'equazione di Schrödinger può essere risolta con tre equazioni disaccoppiate nelle coordinate normali, i livelli sono

$$\frac{E_v(v_i)}{h} = \sum_i \nu_i \left( v_i + \frac{d_i}{2} \right) \quad (1.56)$$

dove  $\nu_i$  è la frequenza dell' $i$ -esimo modo normale di vibrazione. Introducendo termini che tengono conto dell'anarmonicità dell'oscillazione si ottiene

$$\frac{E_v(v_i, l_i)}{h} = \sum_i \left\{ \nu_i \left( v_i + \frac{d_i}{2} \right) + \sum_j \left[ x_{ij} \left( v_i + \frac{d_i}{2} \right) \left( v_j + \frac{d_j}{2} \right) + g_{ij} l_i l_j \right] \right\} \quad (1.57)$$

Il primo termine della somma è l'energia associata alle oscillazioni armoniche della molecola e  $v_i$ , come già detto, il numero quantico vibrazionale corrispondente. I termini nella seconda sommatoria sono elementi correttivi, piccoli rispetto al primo, il secondo tiene conto dell'anarmonicità delle oscillazioni, dove le  $x_{ij}$  sono appunto le costanti di anarmonicità, mentre il terzo termine è un contributo aggiuntivo all'energia per i modi degeneri dove  $g_{ij}$  è una costante dello stesso ordine di  $x_{ij}$ . In questa equazione  $d_i$  assume il valore 1 se il modo vibrazionale  $i$ -esimo è non degenero, 2 se tale modo ha una degenerazione doppia. Al modo  $i$ -esimo è associato il numero quantico  $l_i$  che è nullo se il modo è non degenero, mentre assume i valori  $v_i, v_i - 2, v_i - 4, \dots, 1$  o 0 se c'è degenerazione. Per modi non degeneri  $g_{ij} = 0$ .

### 1.4.3 Considerazioni sui livelli

Per calcolare le frequenze che possono essere emesse o assorbite da una molecola dobbiamo tener conto di alcune regole di selezione, ottenute valutando gli elementi di matrice del momento di dipolo elettrico sugli stati iniziale e finale della molecola. Possiamo avere spettri puramente rotazionali (tipicamente nella regione delle microonde e dell'infrarosso lontano) solo se la molecola possiede un momento di dipolo permanente diverso da zero, mentre è possibile avere spettri rotovibrazionali (nella regione dell'infrarosso) se il momento di dipolo varia nella transizione dallo stato iniziale a quello finale. La molecola  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  ha momento di dipolo permanente nullo, quindi lo spettro puramente rotazionale non è di-

rettamente osservabile. È possibile invece osservare lo spettro rotovibrazionale quando si abbia, durante l'oscillazione della molecola, una variazione periodica del momento di dipolo. Come abbiamo già visto (vedi figura 1.8) ci sono tre possibili modi vibrazionali, uno simmetrico,  $\nu_1$ , e gli altri due asimmetrici. Durante un'oscillazione del modo simmetrico il momento di dipolo della molecola resta identicamente nullo, dunque questo modo è *inattivo nell'infrarosso*, cioè non si osserva alcun assorbimento (o emissione) diretta nell'infrarosso. Gli altri due modi portano invece a una variazione periodica del momento di dipolo e sono quindi *attivi nell'infrarosso*. Indichiamo lo stato ad energia maggiore col pedice  $u$  e quello con energia minore con  $l$ : considerando transizioni fra stati non degeneri (stati  $\Sigma$ ), per una transizione vibrazionale  $\Delta v = v_u - v_l = \pm 1$  possiamo passare dal livello rotazionale  $J_u$  a quello  $J_l$  secondo la regola

$$\Delta J = J_u - J_l = \pm 1 \quad (1.58)$$

Le righe corrispondenti a transizioni  $\Delta J = +1$  formano la *branca R*, quelle corrispondenti a  $\Delta J = -1$  la *branca P*. L'intensità delle righe rotazionali è diversa per i diversi valori di  $J$ , il peso statistico dello stato  $J$  è infatti proporzionale al numero di sottolivelli degeneri ( $2J + 1$ ) e al fattore di Boltzmann  $\exp[-E_r(J)/k_B T]$  che regola la popolazione del livello.

L'autofunzione complessiva della molecola può essere scritta, in prima approssimazione, come prodotto di una autofunzione relativa allo stato elettronico,  $\psi_e$ , una relativa allo stato vibrazionale,  $\psi_v$ , e una relativa a quello rotazionale,  $\psi_r$ :

$$\psi = \psi_e \psi_v \psi_r \quad (1.59)$$

Per quanto riguarda lo stato elettronico possiamo assumere che, a temperatura ambiente, si trovi sempre nello stato fondamentale; questa ipotesi è pienamente giustificata dal fatto che il salto di livello elettronico tra lo stato fondamentale e il primo livello eccitato si trova a frequenze ottiche (dell'ordine di  $10^5 \text{ cm}^{-1}$ ),

mentre  $k_B T/h$  a temperatura ambiente è dell'ordine di  $200 \text{ cm}^{-1}$ . Le autofunzioni rotazionali sono le armoniche sferiche, quelle vibrazionali dipendono solo dalla distanza internucleare e sono molto simili alle autofunzioni dell'oscillatore armonico; l'anarmonicità dell'oscillazione infatti introduce una asimmetria, anche se di norma molto piccola.

Un livello rotazionale è detto *positivo* o *negativo* a seconda che l'autofunzione totale resti inalterata o cambi segno in seguito a una riflessione di tutte le particelle (elettroni e nuclei) rispetto all'origine (operazione di *inversione*). Lo stato elettronico fondamentale di ogni molecola è simmetrico, cioè l'autofunzione corrispondente  $\psi_e$  resta inalterata da qualunque operazione di inversione; questo vale anche per i livelli vibrazionali totalmente simmetrici (indicati con  $\Sigma^+$ ). In queste condizioni la proprietà di simmetria discussa dipende solo dall'autofunzione rotazionale  $\psi_r$ , dunque si ha che i livelli rotazionali con numero quantico  $J$  pari sono positivi, quelli con  $J$  dispari negativi. Per transizioni di dipolo elettrico vale una importante regola di selezione: livelli positivi si combinano solo con livelli negativi (e viceversa). Quindi transizioni di dipolo elettrico tra due livelli positivi o tra due livelli negativi sono proibite.

Per tutte le molecole del gruppo  $D_{\infty h}$  i livelli rotazionali oltre ad essere positivi o negativi sono anche *simmetrici* o *antisimmetrici* rispetto allo scambio di tutte le particelle identiche. L'autofunzione totale del sistema, tralasciando lo spin nucleare, può restare inalterata o cambiare segno quando siano scambiate le posizioni dei nuclei identici; nel primo caso il livello è detto *simmetrico*, nell'altro *antisimmetrico*. Per tutti i livelli vibrazionali simmetrici rispetto a una inversione (ad esempio i livelli  $\Sigma_g^+$ ) i livelli rotazionali positivi sono simmetrici, quelli negativi antisimmetrici; l'opposto vale per i livelli vibrazionali antisimmetrici, ad esempio di tipo  $\Sigma_u^+$ .

Per il postulato di simmetrizzazione della meccanica quantistica si ha che per nella molecola di  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  i livelli antisimmetrici sono assenti. Questo perché la

molecola ha due nuclei di  $^{16}\text{O}$  identici che, essendo bosoni, devono lasciare inalterata la funzione d'onda complessiva per scambio. Dato che la funzione d'onda elettronica e quella nucleare (il nucleo di  $^{16}\text{O}$  ha spin  $S=0$ ) sono simmetriche, anche la funzione d'onda rotazionale deve essere simmetrica; quindi tutti i livelli antisimmetrici sono assenti.

Le transizioni che andiamo a stimolare per osservare le righe di assorbimento a lunghezze d'onda tra i  $4.2 \mu\text{m}$  e i  $4.5 \mu\text{m}$  sono transizioni rotovibrazionali tra la banda vibrazionale fondamentale  $(0, 0^0, 0)$  e quella eccitata  $(0, 0^0, 1)$ , che coinvolgono cioè il modo di oscillazione asimmetrico  $\nu_3$ . La banda vibrazionale  $(0, 0^0, 0)$  appartiene al gruppo  $\Sigma_g^+$ : per quanto detto sopra i livelli rotazionali con  $J$  pari sono positivi e simmetrici, gli altri sono assenti. La banda eccitata  $(0, 0^0, 1)$  è invece del tipo  $\Sigma_u^+$ , quindi per essa sono i livelli rotazionali con  $J$  pari, positivi e antisimmetrici, ad essere assenti. Lo schema di questi livelli è mostrato in figura (1.9), dove sono riportate alcune delle possibili transizioni<sup>3</sup>.

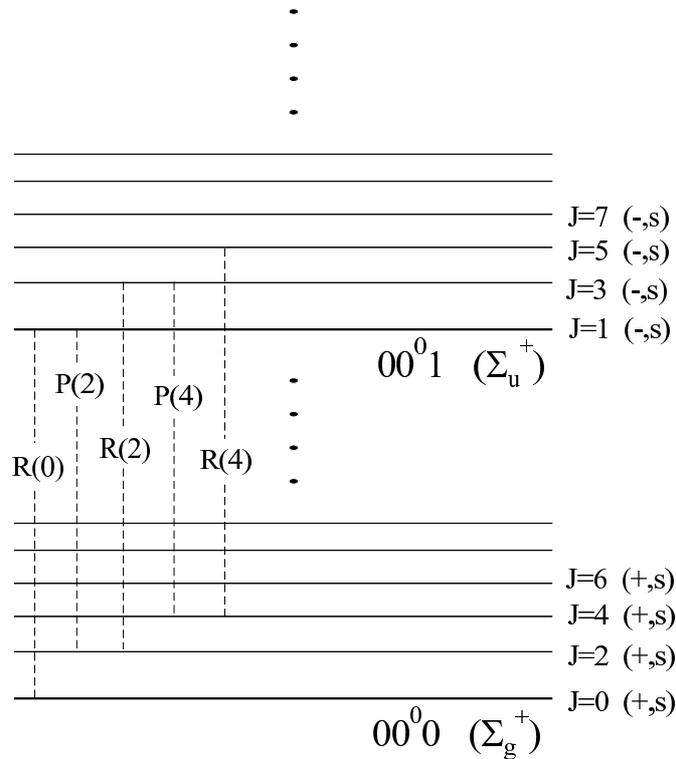
### Frequenze delle transizioni

Per conoscere le frequenze delle righe delle molecole esiste un *database* di nome Hitran [35] dove si trovano le frequenze delle righe che possono essere calcolate o misurate. Questo *database* fornisce, oltre alla frequenza della riga, anche una serie di ulteriori informazioni quali l'intensità della riga, i livelli coinvolti, gli errori sui dati ecc.

Nel nostro caso siamo interessati alla molecola  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$  che purtroppo non è compresa nel suddetto catalogo perché è rara e non stabile. Per individuare le frequenze dello stato vibrazionale fondamentale della molecola abbiamo utilizzato l'equazione (1.55) dato che si conoscono i parametri  $B$  e  $D$  per  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$  perché sono stati misurati [36]; i valori utilizzati per il calcolo delle frequenze sono riportati in tabella 1.4.

---

<sup>3</sup>Uno schema completo dei livelli vibrazionali si può trovare in Herzberg [34].

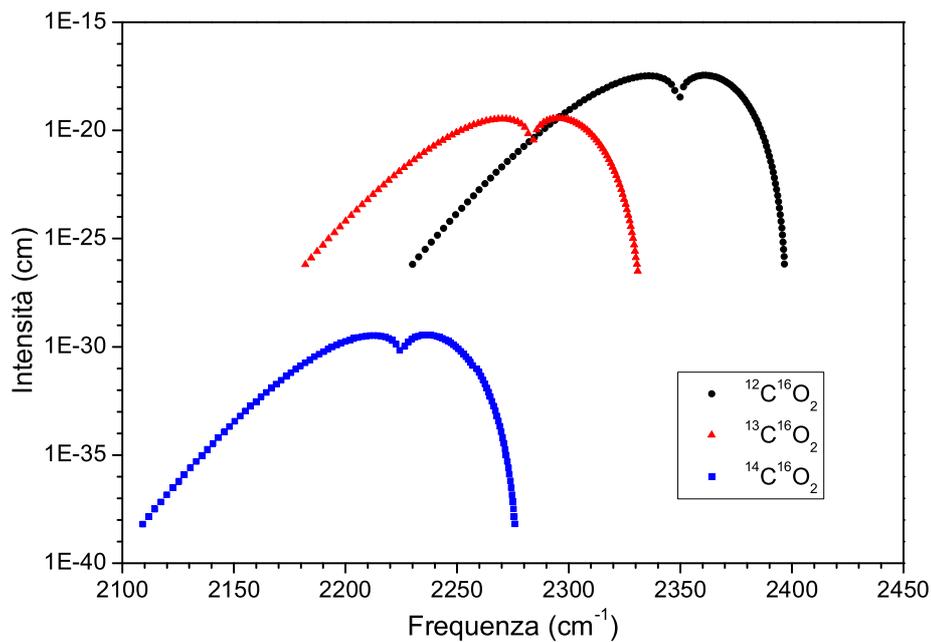


**Figura 1.9:** Schema dei livelli rotazionali per le bande vibrazionali  $(0, 0^0, 0) - (0, 0^0, 1)$ . I simboli tra parentesi indicano le caratteristiche del livello rotazionale: + sta per positivo, - per negativo ed  $s$  per simmetrico. Le rette verticali indicano alcune possibili transizioni

Per quanto riguarda l'intensità di riga abbiamo supposto che la differenza tra quella delle  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  e  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$  dovuta alla differente massa fosse trascurabile e abbiamo semplicemente riscalato per l'abbondanza naturale. Nella figura 1.10 sono riportate l'intensità delle righe P e R della transizione  $(00^0 0 - 00^0 1)$  per le molecole  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ ,  $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$  e  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$  in funzione della loro frequenza.

costante	valore
$B_0$	$0.39025278 \text{ cm}^{-1}$
$D_0$	$0.000000133 \text{ cm}^{-1}$
$B_3$	$0.387390283 \text{ cm}^{-1}$
$D_3$	$0.000000132837 \text{ cm}^{-1}$

**Tabella 1.4:** Costanti rotazionali per gli stati vibrazionali  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$ , l'indice 0 si riferisce allo stato fondamentale  $|0,0^0,0\rangle$ , mentre l'indice 3 si riferisce al primo stato eccitato  $|0,0^0,1\rangle$ .



**Figura 1.10:** Intensità delle righe P (parte destra dei punti) e R (parte sinistra dei punti) della transizione  $(00^0 - 00^0_1)$  in funzione della loro frequenza. I valori sono forniti dal *database Hitran* per quanto riguarda le molecole  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  e  $^{13}\text{C}^{16}\text{O}_2$  mentre per la molecola  $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$  sono state calcolate.

## Capitolo 2

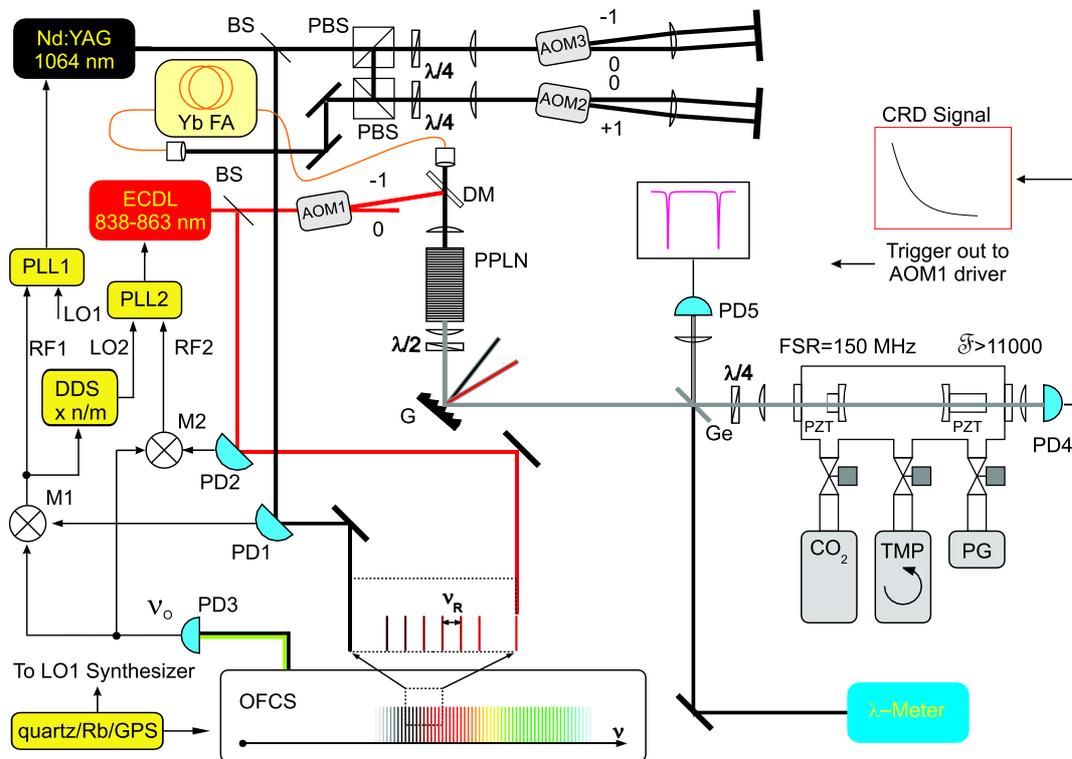
### Set-up sperimentale

In questo capitolo analizzeremo i dettagli dell'apparato sperimentale. Come vedremo nel corso di questa tesi, il set-up è il risultato finale di un lavoro di miglioramento per aumentare la sensibilità della tecnica *cavity ring down* nella regione di frequenze centrate intorno ai  $4.5 \mu\text{m}$ . Lo schema generale dell'apparato sperimentale è mostrato in figura 2.1. I due laser sorgente, un laser a  $1064 \text{ nm}$  (Nd:YAG) e un laser a semiconduttore a  $860 \text{ nm}$  (ECDL), sono riferiti al *comb* (OFCS) tramite un aggancio in fase (PLL). Il laser Nd:YAG viene fatto passare attraverso due modulatori acusto-ottici<sup>1</sup> (AOM) in cascata (il cui scopo è quello di cambiare la frequenza del laser) e poi accoppiato nella fibra ottica d'ingresso dell'amplificatore a Itterbio (Yb FA). Il laser ECDL passa attraverso un AOM che di fatto serve per interrompere la luce e dare origine al segnale di *cavity ring down*. I due laser vengono poi sovrapposti attraverso un specchio dicroico<sup>2</sup> sul cristallo di Niobato di Litio polarizzato periodicamente (PPLN), per generare la radiazione infrarossa (IR) a  $4.5 \mu\text{m}$ . La luce IR viene mandata sulla cella a tenuta di vuoto con la cavità per il *cavity ring down*. Come si vede dalla figura,

---

<sup>1</sup>Il modulatore acusto-ottico è un oggetto che sfrutta una onda acustica all'interno di un cristallo per diffrangere la luce e cambiarne la frequenza.

<sup>2</sup>Lo specchio dicroico permette il passaggio del laser a  $1064 \text{ nm}$  e riflette il laser a  $860 \text{ nm}$ .



**Figura 2.1:** Schema del set-up sperimentale. AOM: modulatori acusto-ottici, OFCS: *optical frequency comb synthesizer*, PD1,2,3: fotodiodi a valanga, PD4,5: rivelatori fotovoltaici per IR, G: reticolo di diffrazione,  $\lambda/2/4$ : lamine birifrangenti, DM: specchio dielettrico, PBS: cubo polarizzatore, BS: *beam splitter*, M1,2: mixer, PLL: loop aggancio in fase, Yb FA: amplificatore in fibra a Itterbio, Ge: filtro di germanio.

la radiazione IR viene separata dai laser sorgente tramite un reticolo di diffrazione e un filtro di germanio; il filtro è anche utilizzato per rivelare il segnale in riflessione dalla cavità e per la misura della frequenza dei due laser con un lambda-meter.

## 2.1 La cavità

Gli specchi di cui si parla in questo paragrafo sono stati sostituiti durante questo lavoro di tesi (come vedremo più avanti nel paragrafo 4.5.2). Resta il fatto che molte misure sono state fatte con specchi non più in uso e quindi vale la pena riportare alcuni dati importanti relativi alle loro caratteristiche.

La nostra cavità ad alta finezza per il *cavity ring down* consiste di due specchi sferici con un raggio di curvatura di  $R_s = 6$  m e con una riflettività  $R$  tale che  $1 - R < 2 \cdot 10^{-4}$  (dati del costruttore). Con questa riflettività otteniamo una finezza [37] data da

$$F = \frac{\pi\sqrt{R}}{1 - R} > 15700 \quad (2.1)$$

I due specchi sono posti a una distanza di  $L=1$  m corrispondente a un *Free Spectral Range* di

$$FSR = \frac{c}{2L} = 150 \text{ MHz}$$

dove  $c$  è la velocità della luce. Per definizione la finezza di una cavità *Fabry-Perot* è data dal rapporto tra il *Free Spectral Range* e la larghezza totale a metà altezza (FWHM) del profilo di Airy della cavità stessa. Conoscendo FSR e  $F$  si può stimare la larghezza del picco di trasmissione della nostra cavità, troviamo che

$$FWHM = \frac{FSR}{F} < 10 \text{ kHz} \quad (2.2)$$

Per questi *Fabry-Perot* ad alta finezza un dato fondamentale è la dimensione del *waist*<sup>3</sup> ( $w_0$ ) del modo longitudinale; nel nostro caso il  $w_0$  si trova nel punto intermedio fra i due specchi a causa della simmetria della cavità. Questo dato è importante perché fornisce le dimensioni spaziali che deve avere il fascio laser per

---

<sup>3</sup>In un fascio gaussiano si intende per raggio o *spot size* ( $w$ ), la distanza dall'asse centrale di propagazione a cui l'ampiezza è ridotta a 1/e di quella al centro; un cerchio di raggio  $w$  contiene circa l'86.5% della potenza totale. Per *waist* ("cintura") si intende la dimensione del raggio minimo ovvero il raggio di cintura.

essere accoppiato nella cavità. Per determinare  $w_0$  si può utilizzare l'espressione che regola la propagazione del raggio di curvatura ( $r$ ) del fronte d'onda di un fascio gaussiano

$$r(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{\pi n w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right] \quad (2.3)$$

dove  $z$  è la distanza dal punto in cui si trova  $w_0$  lungo la direzione di propagazione del fascio,  $n$  è l'indice di rifrazione del mezzo e  $\lambda$  la lunghezza d'onda. Imponendo la condizione che il fronte d'onda abbia un raggio di curvatura pari al raggio di curvatura degli specchi per  $z$  corrispondente alla posizione degli specchi (nel nostro caso  $z = L/2$ )

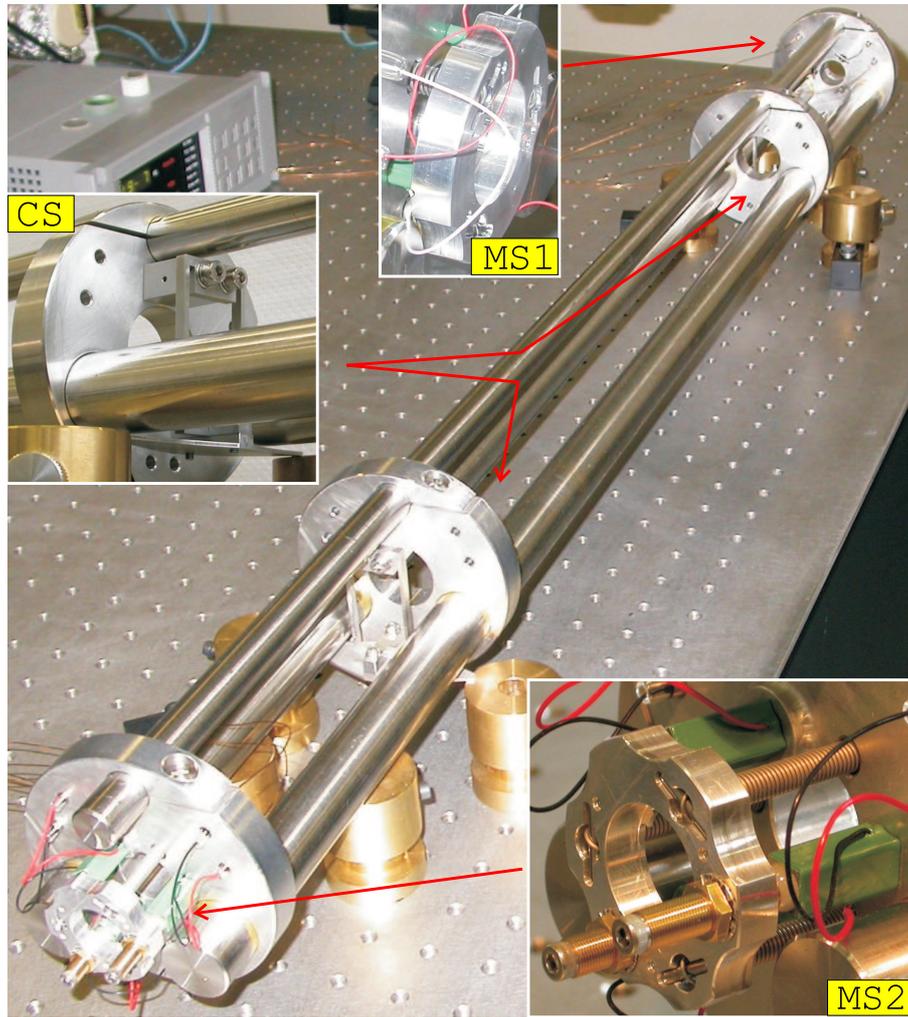
$$r(z) = R_s \text{ con } z = \frac{L}{2} \quad (2.4)$$

utilizzando la (2.3) e risolvendo per  $w_0$  si ottiene

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda L}{2\pi n} \sqrt{\frac{2R_s}{L} - 1}} \quad (2.5)$$

Da questa equazione ricaviamo la dimensione del *waist* per la cavità, con  $R_s=6$  m,  $L=1$  m,  $n=1$  e  $\lambda=4500$  nm troviamo  $w_0= 1.54$  mm.

Gli specchi sono montati su due supporti in alluminio appositamente disegnati per essere poi fissati a un disco d'acciaio tramite tre molle a tirare e tre PZT a spingere. Il supporto del primo specchio (MS1 in figura 2.2), che è quello di ingresso per la luce, non ha alcun tipo di regolazione se non la corsa dei PZT stessi; questo per evitare di introdurre instabilità meccaniche. I PZT sono di dimensioni 2x3x5 mm con un'estensione massima di 7  $\mu$ m e sono utilizzati soltanto per fare una scansione della cavità (1 FSR $\approx$ 80 V). Il supporto del secondo specchio (MS2 in figura 2.2), che è quello di uscita per la luce, ha due viti che permettono di cambiare l'inclinazione, più i PZT che in questo caso sono più grandi dei precedenti. Le dimensioni dei PZT sono 7x7x18 mm con un'estensione massima di 30  $\mu$ m; questi sono utilizzati per ottimizzare finemente l'allineamento della cavità (si veda il paragrafo 3.2). I dischi su cui sono fissati i supporti per



**Figura 2.2:** Struttura del *Fabry-Perot*. Nei tre dettagli si vedono i supporti per gli specchi (MS1,MS2) e il particolare sostegno per tutta la struttura (CS).

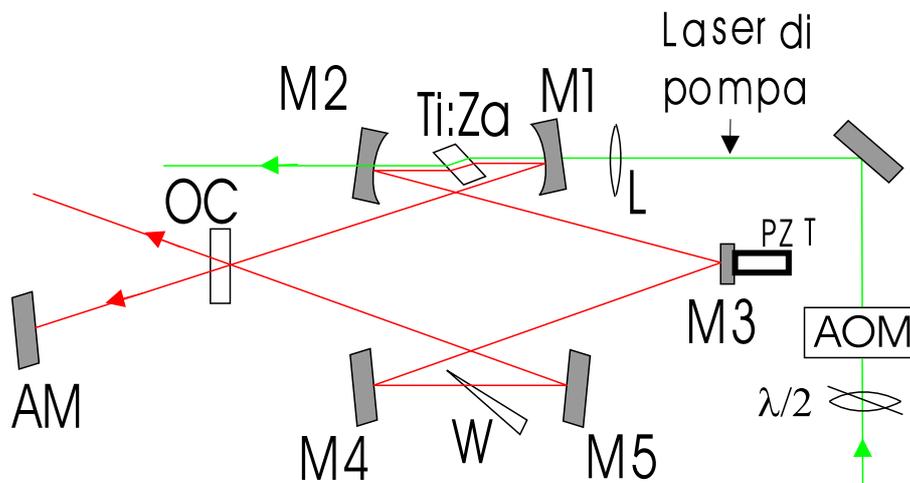
gli specchi sono sorretti da tre barre di Invar che hanno un basso coefficiente di dilatazione termica. Nella figura 2.2 è riportato una foto con alcuni dettagli della struttura della cavità. La cavità è stata progettata e costruita cercando di ottenere una buona stabilità meccanica e un buon isolamento dalle vibrazioni meccaniche. Inoltre, grazie alle barre di Invar, è stata ridotta al minimo la variazione della distanza fra gli specchi a causa delle instabilità termiche. I dischi possono

scorrere lungo le barre e grazie a ciò è stato possibile regolare quasi esattamente a 1 m la distanza fra gli specchi. Oltre ai due dischi che sostengono gli specchi ce ne sono altri due che servono per sostenere tutta la struttura all'interno di una cella a tenuta di vuoto dove si immette il gas per la misura. Su questi ulteriori supporti sono stati fissati due appositi sostegni (CS nella figura 2.2) il cui disegno è stato studiato per smorzare le vibrazioni provenienti dall'esterno. La frequenza di taglio di questi supporti è di circa 20 Hz.

La cella a tenuta è costituita da un tubo di acciaio sulle cui estremità sono state saldate delle flange conflat, su quest'ultime sono fissate le finestre in fluoruro di calcio per permettere il passaggio del laser. Lungo i fianchi di questo tubo ci sono saldati una serie di raccordi conflat dove sono attaccati i vari misuratori di pressione, la pompa turbo per fare il vuoto e il tubo per immettere il gas nella cella.

## 2.2 Il *comb*

Il *comb* è uno strumento che ha rivoluzionato le misure di frequenza assolute nella regione ottica, infatti non solo ha notevolmente semplificato il sistema di misura ma ha anche migliorato la precisione. Il punto fondamentale è che, collegando frequenze ottiche con frequenze nelle micronde con un unico passaggio, si riesce a migliorare la precisione di misura rendendo la misura stessa relativamente semplice. Inoltre misurando direttamente la frequenza anziché la lunghezza d'onda, come viene fatto in alcuni casi, si dispone di standard primari facilmente reperibili. Dalla costruzione del primo *comb* sono passati vari anni e ci sono stati forti sviluppi in questo campo (basta dare un'occhiata al sito del produttore) e adesso esistono *comb* in fibra che a differenza del nostro (che è uno dei primi messi in commercio) sono più semplici da utilizzare. Resta il fatto che la parte fondamentale di questo strumento è un laser in modalità *mode-locked*. In questo



**Figura 2.3:** Schema della cavità laser dell'OFCS a Ti:Za: L lente di focalizzazione del laser di pompa, M1-M5 specchi chirped (di cui M1 e M2 sferici e piani gli altri), OC specchio di uscita, W cuneo di vetro per la regolazione della frequenza di offset, AM specchio ausiliario (presente solo durante la procedura di allineamento), AOM modulatore acusto-ottico. M3 è montato su un piezoelettrico (PZT) per permettere l'aggancio del *repetition rate* ( $\nu_r$ ); W, L, M2 e M5 sono provvisti di un traslatore con vite micrometrica.

paragrafo vedremo brevemente le principali caratteristiche del nostro *comb*.

### 2.2.1 Il laser *mode-locked*

Nel paragrafo 1.2 abbiamo visto dal punto di vista teorico come un treno di impulsi possa fornire un righello di frequenze e nel paragrafo 1.2.1 abbiamo spiegato i principi di funzionamento del *comb*. Vediamo adesso in dettaglio il laser che costituisce la parte fondamentale del nostro *comb* e il suo funzionamento.

Il laser è il modello Gigajet20 della Gigaoptics dove il mezzo attivo è un cristallo di titanio-zaffiro lungo 2,4 mm e la cavità è costituita da sei specchi in configurazione ad anello come mostrato in figura 2.3. Il cristallo è pompato da un

laser modello Verdi-V8 della Coherent Inc alla potenza di 5,8 W a 532 nm. Il fascio di pompa esce dal laser con polarizzazione verticale, occorre una lamina  $\lambda/2$  per ruotare la polarizzazione di  $90^\circ$ , in quanto il mezzo attivo è tagliato all'angolo di Brewster<sup>4</sup>; dopodiché attraversa un modulatore acusto-ottico, pilotato da una radiofrequenza a 40 MHz, che serve per l'aggancio in fase della frequenza di offset  $\nu_0$ . Infine il fascio viene foccheggiato nel cristallo con una lente piano convessa di focale 30 mm . I due specchi sferici hanno un raggio di curvatura di 30 mm e tutti gli specchi sono *chirped*, tranne lo specchio di uscita ( $R=0,98$ ). Un sottile cuneo di vetro è inserito in cavità per controllare la frequenza di offset su tutto il range tra 0 e 1 GHz circa. Non sono presenti elementi per una selezione fine di lunghezza d'onda, per permettere al maggior numero possibile di modi di oscillare, lo spettro emesso in funzionamento in continua (CW) è determinato dunque solo dalla banda di guadagno del mezzo attivo e degli elementi ottici presenti in cavità (specchi e cuneo). Oltre al modo di funzionamento CW il laser può oscillare sia in regime di *mode-locking* e *Q-switching* a seconda dell'allineamento della cavità. In condizioni ottimali il modo della radiazione emessa è  $TEM_{00}$ <sup>5</sup> e questo ha un'importanza fondamentale per una buona iniezione della radiazione laser nella PCF. La traslazione dello specchio M5 non varia sensibilmente la potenza media emessa, e permette di variare il *free spectral range* della cavità senza compromettere l'allineamento. Lo specchio ausiliario (AM) ha l'importante funzione di agevolare la procedura di allineamento della cavità; infatti in un laser ad anello (in continua) la radiazione circola in entrambi i sensi ed esce quindi dallo specchio di uscita (OC) in due direzioni angolarmente ben distinte. In queste condizioni, c'è una grossa fluttuazione di potenza in ciascuna di queste due di-

---

<sup>4</sup>Il taglio all'angolo di Brewster serve per minimizzare le perdite per riflessione: quando un'onda elettromagnetica incide su una superficie di interfaccia fra due mezzi all'angolo di Brewster, si ha che la parte riflessa è solo quella polarizzata perpendicolarmente al piano d'incidenza.

<sup>5</sup>Modo fondamentale del fascio gaussiano.

rezioni, dovuta alla competizione tra l'emissione stimolata verso l'una o l'altra, questo rende molto difficile l'allineamento quando si rivela solo la potenza di uno dei due fasci; l'inserimento di uno specchio ausiliario fuori cavità, permette di inviare, tramite riflessione speculare sullo specchio di uscita (OC), quasi tutta la potenza emessa in una sola direzione, facilitando l'allineamento del laser, quando opera in modo continuo.

### Messa in funzione del laser

Per la messa a punto del funzionamento del laser la prima cosa da fare è l'ottimizzazione dell'allineamento in continua, per fare ciò bisogna massimizzare la potenza di emissione sfruttando la sovrapposizione delle due direzioni di funzionamento tramite lo specchio ausiliario AM. Visto che in cavità non ci sono elementi che selezionano la lunghezza d'onda ci sono molti modi che riescono a oscillare e questo è estremamente importante perché favorisce l'accoppiamento di molti modi nel passaggio da regime da continuo a impulsato.

Una volta raggiunto un buon allineamento con il laser in funzionamento CW si deve cercare di far partire la modalità *mode-locked*. Il traslatore montato sullo specchio curvo M2 permette di accorciare la distanza fra i due specchi curvi per portare la cavità in una posizione in cui è favorito il *mode-locking*. Infatti avvicinare i due specchi porta la cavità in un punto che sta al margine della zona di stabilità, a causa della dipendenza di quest'ultima da vari fattori geometrici [38, 39] tra cui la distanza fra gli specchi curvi. In pratica la distanza percorsa dallo specchio M2 (vedi figura 2.3) dalla posizione in cui si cerca il buon allineamento in continua a quella in cui è favorito il *mode-locking* è di circa 0,05 mm; una ulteriore traslazione della stessa quantità fa cessare del tutto l'oscillazione laser. A questo punto una piccola perturbazione<sup>6</sup> può creare le condizioni per

---

<sup>6</sup>Nella cavità è previsto un sistema di perturbazione costituito da un motorino che fa vibrare lo specchio M3.

l'accoppiamento dei modi e quindi l'inizio del funzionamento impulsato. Quando ciò avviene l'effetto Kerr fa sì che l'oscillazione laser si autosostenga (preferibilmente in una sola direzione di emissione) e in tali condizioni, la potenza media emessa nella direzione di uscita diviene più stabile rispetto al funzionamento CW (su tempi brevi). Una volta avviata la modalità *mode-locked* basta un piccolo aggiustamento della posizione dello specchio per ottimizzare la potenza; l'ottimizzazione della potenza è importante per avere il massimo allargamento dello spettro da parte della fibra a cristalli fotonici. Nella figura 2.4 sono riportati gli spettri del laser Ti:Za acquisiti con un monocromatore [40] nei due regimi di funzionamento; si noti come nel regime *mode-locked* lo spettro sia notevolmente più largo rispetto al regime in continua. Dalla figura si vede anche che le frequenze del massimo di emissione non sono le stesse. Ciò è dovuto all'effetto detto *mode-pulling*: i modi continuo e impulsato "sperimentano" ciascuno una cavità diversa, quindi la  $\omega_c$  della (2.6) cambia passando da CW a *mode-locked* [41].

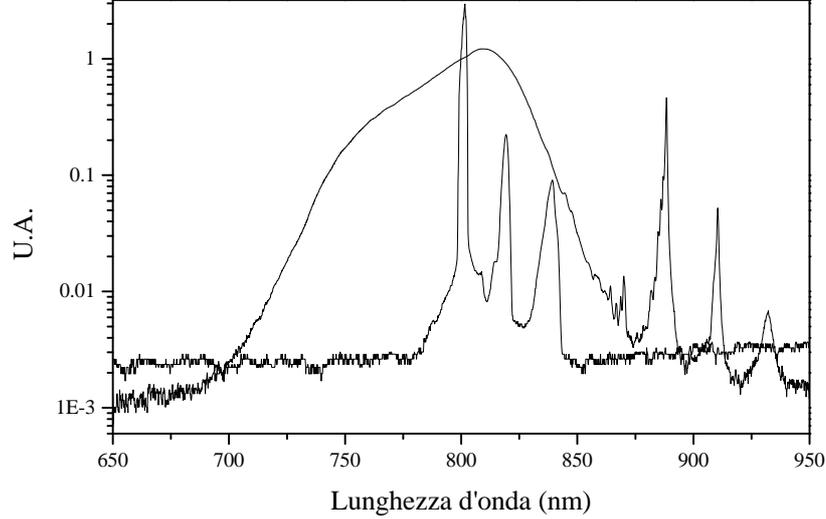
Vediamo brevemente come il laser *mode-locked* fornisce un righello di frequenze. Sotto l'ipotesi semplificatrice che in continua il laser emetta su una sola frequenza e supponendo che la forma temporale dell'impulso sia di tipo gaussiano, il campo in uscita dalla cavità può essere scritto come:

$$E(t) = E_0 \sum_{k=-N}^N A_k(t) e^{-i\omega_k t} + c.c. \quad (2.6)$$

$$A_k(t) = e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{t-kT}{\tau} \right)^2} \quad (2.7)$$

Nella (2.7),  $T$  rappresenta il tempo di transito dell'impulso in cavità, mentre  $2\tau\sqrt{\ln 2}$  è la larghezza a metà altezza dell'impulso, assunta convenzionalmente come durata temporale dell'impulso stesso. Nella (2.6)  $N$  conta il numero di impulsi che escono dal laser e lo faremo perciò tendere a infinito. Per vedere l'effetto del regime impulsato nel dominio delle frequenze calcoliamo la trasformata di Fourier

$$\mathcal{E}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) e^{i\omega t} dt$$



**Figura 2.4:** Confronto fra gli spettri continuo e impulsato del laser a Ti:Za: in regime continuo lo spettro è largo circa 50 nm mentre in regime *mode-locked* lo spettro del laser si estende tra 700 e 900 nm.

Ponendo  $\delta = \omega - \omega_c$ , si ottiene:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\omega) &= E_0 \sqrt{\frac{2}{\pi}} \tau e^{-\frac{1}{2} \delta^2 \tau^2} \sum_{k=-N}^N e^{i \delta k T} \\ &= E_0 \sqrt{\frac{2}{\pi}} \tau e^{-\frac{1}{2} \delta^2 \tau^2} \frac{\sin[(2N-1) \frac{\delta T}{2}]}{\sin(\frac{\delta T}{2})} \end{aligned} \quad (2.8)$$

La (2.8) rappresenta (al tendere di  $N$  all'infinito) una serie di picchi di larghezza nulla, la cui ampiezza decresce in maniera gaussiana rispetto alla frequenza centrale  $\omega_c$ . Nel caso reale occorre considerare la larghezza di riga finita del laser, esprimibile tramite una funzione  $G(t)$  nel dominio temporale, di cui  $\mathcal{G}(\omega)$  è la trasformata di Fourier. La (2.6) si modifica perciò semplicemente nella

$$E(t) = E_0 \sum_{k=-N}^N A_k(t) G(t) + c.c.$$

Nel limite in cui  $N$  tende a infinito, la  $A(t)$  è effettivamente periodica e in accordo

con l'espressione (1.2) si ha:

$$\mathcal{A}(\omega) = \sqrt{2\pi} \sum_q A_q \delta(\omega - q\omega_r)$$

L'espressione per  $\mathcal{E}(\omega)$  si ricava invece dal prodotto di convoluzione fra le trasformate di Fourier di  $A(t)$  e  $G(t)$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} E_0 \mathcal{A}(\omega) \otimes \mathcal{G}(\omega) + c.c. \\ &= E_0 \sum_q A_q \mathcal{G}(\omega - q\omega_r) \end{aligned}$$

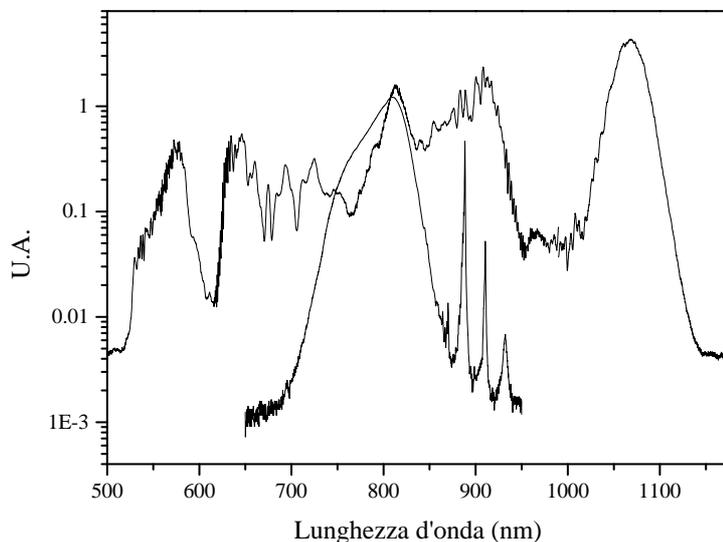
ovvero la forma di riga del laser è riprodotta a intervalli costanti pari a  $\omega_r$ . Ovviamente si può facilmente verificare che se  $G(t) = e^{-i\omega_c t}$ , dalla precedente espressione si ottiene lo stesso risultato della (2.8).

### 2.2.2 Allargamento dello spettro del laser Ti:Za

Come abbiamo già accennato lo spettro del laser *mode-locked* viene ampliato fino a coprire un'ottava tramite una fibra a cristalli fotonici. Queste fibre, di recente realizzazione e sviluppo, hanno un *core* di diametro dell'ordine di  $1 \div 2 \mu\text{m}$ ; questo permette di avere un'elevata densità di potenza per unità di volume e quindi la generazione di fenomeni fortemente non-lineari. È stato dimostrato in vari lavori [42] che il *comb* che esce dalla fibra ha le stesse caratteristiche di stabilità e spaziatura in frequenza di quello generato direttamente dalla cavità. A potenze elevate, infatti, il processo non lineare dominante è il *mixing a quattro onde*, per cui si generano nuove frequenze secondo la semplice formula

$$\nu_{gen} = \nu_a + \nu_b - \nu_c \quad (2.9)$$

dove  $\nu_a$ ,  $\nu_b$  e  $\nu_c$  sono frequenze accoppiate in fibra. Se queste sono esprimibili mediante la (1.4) si ha che la spaziatura e l'offset di tutte le possibili  $\nu_{gen}$  continuano ad essere  $\nu_r$  e  $\nu_0$ . Inoltre la particolare struttura del *core* stesso, cioè



**Figura 2.5:** Spettro della radiazione in uscita dalla PCF. Sono presenti lunghezze d'onda che vanno dal verde (520 nm) al vicino infrarosso (1140 nm), in frequenza questo corrisponde a una larghezza di circa 310 THz, ovvero più di un'ottava ottica. Lo spettro fornisce la regione di frequenze assolute misurabili con il nostro *comb*. Per confronto è stato riportato anche lo spettro in uscita dal laser *mode-locked*.

una parte centrale di vetro circondata da buchi riempiti di aria, a simmetria esagonale, conferisce alla fibra proprietà dispersive analoghe a quelle degli specchi *chirped*, in questo modo si creano nuove frequenze con processi non-lineari, poiché si riesce, grazie alle proprietà dispersive sopra citate, a soddisfare la condizione di *phase matching*, per molti dei modi emessi dal laser a femtosecondi. In figura 2.5 è riportato lo spettro del laser che esce dalla fibra PCF dove si vede che la copertura spettrale copre un'ottava permettendo così di avere un *comb* autoriferito (si veda il paragrafo 1.2, equazione (1.5)). Questo spettro ci fornisce la regione di frequenze assolute che si possono misurare con il nostro *comb*.

### 2.2.3 Stabilità dell'OFCS

Abbiamo visto che le frequenze dei denti del *comb* sono tutte espresse tramite due parametri fondamentali:  $\nu_0$  e  $\nu_r$  (si veda equazione (1.4)). Questo fa capire quanto è importante la stabilità di questi due parametri, soprattutto di  $\nu_r$ , visto che la sua incertezza si propaga con un fattore dell'ordine di  $10^5$  (questo l'ordine di grandezza di  $m$  per il nostro *comb*). Infatti una volta che è stato ottenuto un segnale di battimento tra il *comb* e un laser esterno, la precisione della misura di frequenza è legata, oltre ovviamente all'affidabilità della frequenza da misurare, alla stabilità nel tempo dei due parametri. È importante capire quanto tali parametri siano determinanti nell'incertezza finale di una misura assoluta di frequenza, cioè sapere a priori se il *comb* è più o meno stabile della frequenza laser che si vuole misurare. Nel nostro caso, il *comb* viene utilizzato come riferimento di frequenza a cui agganciare i due laser sorgente, utilizzati per la generazione di frequenza differenza; quindi quello che è importante è la stabilità su tempi lunghi.

Per stabilizzare le frequenze dei due parametri, si usano dei sintetizzatori a cui vengono agganciate in fase le frequenze rivelate; la rivelazione di  $\nu_0$  e  $\nu_r$  è stata già descritta nel paragrafo 1.2.1. Per quanto riguarda  $\nu_r$ , l'aggancio viene effettuato con un controllo elettronico che agisce sulla tensione del PZT montato sullo specchio M3 della cavità; mentre per  $\nu_0$  il controllo elettronico agisce sul modulatore acusto ottico che modula la potenza di pompa permettendo un controllo più fine della frequenza rispetto al cuneo W. Il cuneo serve solo per spostamenti grossolani della frequenza per riportare l'offset nel punto giusto di aggancio visto che l'elettronica è ottimizzata per lavorare a 80 MHz.

I due sintetizzatori di frequenza sono riferiti a un segnale a 10 MHz derivato dal segnale GPS. Il segnale a 10 MHz viene fornito da un oscillatore al quarzo che garantisce una stabilità su tempi brevi di  $3 \cdot 10^{-13}$  in 1s (dati del costruttore). Il

quarzo è a sua volta agganciato a un segnale a 10 MHz prodotto da un orologio al rubidio che è agganciato in fase al segnale GPS. Il segnale GPS garantisce la stabilità su tempi lunghi ( $1 \cdot 10^{-13}$  in un giorno), mentre l'orologio al rubidio colma il gap temporale di stabilità tra il secondo e il giorno ( $< 3 \cdot 10^{-12}$  in 100 s). Questo rende confrontabili misure effettuate a distanze di tempo dell'ordine anche di anni in quanto si ha la garanzia che lo standard di frequenza sia rimasto in calibrazione. Infatti la funzione principale del ricevitore GPS è quella di garantire il collegamento con uno standard primario, costituito da un orologio atomico al cesio.

In conclusione si ha che la precisione e la stabilità del nostro *comb* dipendono soltanto dalla qualità del sistema di aggancio. Per conoscere le caratteristiche del nostro sistema di riferimento di frequenza abbiamo mandato tutta l'apparecchiatura a fare dei test di stabilità e precisione all'Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica (I.N.R.I.M.). La grandezza che solitamente si usa per caratterizzare un riferimento di frequenza è la *varianza di Allan* [43]. Se si esegue il campionamento di una frequenza è possibile stimare la varianza utilizzando la seguente espressione

$$\sigma_y^2(\tau, m) = \frac{1}{m-1} \sum_{k=1}^{m-1} \frac{(\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_k)^2}{2} \quad (2.10)$$

dove  $\bar{y}_k$  è la misura acquisita,  $m$  è il numero di misure che si ha a disposizione e  $\tau$  il tempo di campionamento. Dalle misure di *varianza di allan* eseguite al I.N.R.I.M. è venuto fuori che la stabilità del nostro sistema è  $6 \cdot 10^{-13}$  sul secondo e che la accuratezza relativa sulla misura di frequenza è  $2 \cdot 10^{-12}$ .

Abbiamo già detto che il segnale fornito dal sistema quarzo+GPS è utilizzato come riferimento esterno per i sintetizzatori. In particolare la maggior parte di tale segnale (90% circa) è usata come riferimento esterno per il sintetizzatore che controlla  $\nu_r$ , ed è prelevata direttamente dall'uscita del quarzo per poter garantire che sia un segnale il più possibile "pulito" in frequenza. La parte restante del segnale, viene invece amplificata e successivamente divisa in tre parti uguali con

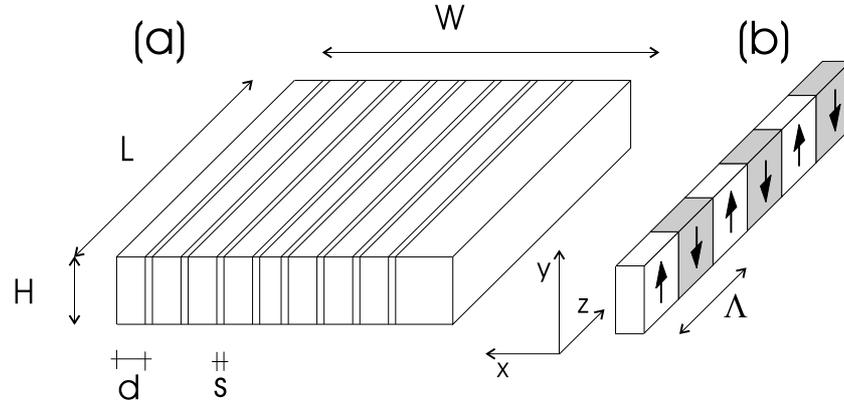
un divisore di ampiezza, che non introduce ritardi di fase tra le tre uscite. Una di queste viene duplicata in frequenza e filtrata con un passa-banda a 20 MHz e costituisce l'oscillatore di riferimento per l'aggancio in fase della frequenza di offset  $\nu_0$ . Le altre due sono usate invece come riferimento esterno per altri sintetizzatori o contatori di frequenza.

## 2.3 Il cristallo PPLN

Il cristallo di niobato di litio ( $\text{LiNbO}_3$ ) è uno dei cristalli più utilizzati per il *quasi-phase-matching* grazie al suo elevato valore di  $d_{33} \approx 27$  pm/V, inoltre nella nostra regione di lunghezze d'onda è sufficientemente trasparente. Il cristallo è di per sé birifrangente di tipo uniassiale, cambiando la polarizzazione periodicamente possiamo ottenere le condizioni di *quasi-phase-matching*.

Per cambiare il segno della polarizzazione basta applicare un campo elettrico di opportuna intensità e direzione lungo l'asse ottico del cristallo. Per fare ciò viene usata una tecnica fotolitografica standard per creare un reticolo di elettrodi dove applicare il campo. In figura 2.6 è riportato lo schema con le misure del nostro cristallo (figura a) e come cambia il segno della polarizzazione per ottenere il *quasi-phase-matching* (figura b).

Per ottenere un buon *quasi-phase-matching* un parametro che rimane libero è la temperatura, infatti l'indice di rifrazione cambia in funzione della temperatura e per dilatazione termica varia sensibilmente la distanza  $\Lambda$ . Per questo motivo abbiamo messo il cristallo all'interno di un fornello stabilizzato in temperatura tramite un elemento Peltier controllato elettronicamente. Inoltre il supporto meccanico per il fornello è un traslatore x-y-z che permette anche rotazioni intorno all'asse y e z.



**Figura 2.6:** Schema del cristallo PPLN. (a) Il cristallo è un parallelepipedo con dimensioni  $L=50$  mm  $W=10$  mm  $H=1$  mm, ci sono 9 canali con differente periodo, ognuno di larghezza  $d=1$  mm (tranne l'ultimo  $d=1.6$  mm) separati da uno spessore di materiale non polarizzato  $s=0.05$  mm; i periodi  $\Lambda$  variano da 21.4 a 23.0  $\mu\text{m}$ . (b) singolo canale dove le frecce rappresentano la polarizzazione che determina il segno di  $\chi^{(2)}$  con periodicità  $\Lambda$ , l'asse ottico del cristallo è diretto lungo l'asse  $x$ .

### 2.3.1 temperatura di *quasi-phase-matching*

Nella generazione di frequenza per processi non lineari, una volta scelte le lunghezze d'onda, per massimizzare l'efficienza esiste una temperatura ottimale in funzione del periodo  $\Lambda$  scelto. La determinazione della temperatura ottimale è importante perché tale valore potrebbe essere troppo grande o piccolo da ottenere con semplici mezzi in laboratorio; questo incide fortemente sulla scelta del periodo  $\Lambda$  che deve essere realizzato sul cristallo, visto che in commercio non sono reperibili tutti i valori.

Per determinare la temperatura ottimale di *quasi-phase-matching*  $T_{qpm}$  sfruttiamo l'equazione di Sellmeier:

$$n_e^2(\lambda, T) = a_1 + b_1 t^2 + \frac{a_2 + b_2 t^2}{l^2 - (a_3 + b_3 t^2)^2} + \frac{a_4 + b_4 t^2}{l^2 - a_5^2} - a_6 l^2 \quad (2.11)$$

parametro	Valore
$a_1$	5.35583
$a_2$	0.100473
$a_3$	0.20692
$a_4$	100
$a_5$	11.34927
$a_6$	$1.5334 \cdot 10^{-2}$
$b_1$	$4.629 \cdot 10^{-7}$
$b_2$	$3.862 \cdot 10^{-8}$
$b_3$	$-8.9 \cdot 10^{-9}$
$b_4$	$2.657 \cdot 10^{-5}$

**Tabella 2.1:** Coefficienti di Sellmeier per  $LiNbO_3$  [44].

dove la dipendenza dalla temperatura e lunghezza d'onda sono contenute nelle variabili

$$t^2 \equiv \frac{T^2 - T_o^2}{1 \text{ K}^2}, \quad T_o \equiv 24.5 \text{ }^\circ\text{C} \quad (2.12)$$

$$l \equiv \frac{\lambda}{1 \text{ } \mu\text{m}} \quad (2.13)$$

e i coefficienti numerici sono riportati in tabella 2.1. Quindi la condizione di *quasi-phase-matching* può essere scritta

$$\frac{n_e(\lambda_1, T_{qpm})}{\lambda_1} - \frac{n_e(\lambda_2, T_{qpm})}{\lambda_2} - \frac{n_e(\lambda_3, T_{qpm})}{\lambda_3} - \frac{1}{\Lambda(T_{qpm})} = 0 \quad (2.14)$$

tenendo conto che deve valere la seguente espressione

$$\frac{1}{\lambda_1} = \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}$$

Per trovare  $T_{qpm}$  bisogna risolvere l'equazione (2.14) in cui è presente una dipendenza dalla temperatura anche in  $\Lambda(T_{qpm})$ , per tenere conto di questa dipendenza

sfruttiamo la relazione [45]

$$\Lambda(T) = \Lambda(T_o)[1 + \alpha(T - T_o) + \beta(T - T_o)^2], \quad T_o \equiv 25 \text{ }^\circ\text{C} \quad (2.15)$$

dove i coefficienti  $\alpha$  e  $\beta$  valgono

$$\alpha = 1.54 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$$

$$\beta = 5.3 \cdot 10^{-9} \text{ K}^{-2}$$

Con i suddetti valori ed equazioni abbiamo realizzato un foglio di calcolo per ottenere la temperatura ottimale di *quasi-phase-matching* in funzione delle lunghezze d'onda e  $\Lambda$ . In questo modo possiamo determinare quale periodo di polarizzazione reperibile in commercio sia più adatto alle nostre esigenze.

## 2.4 I laser sorgente

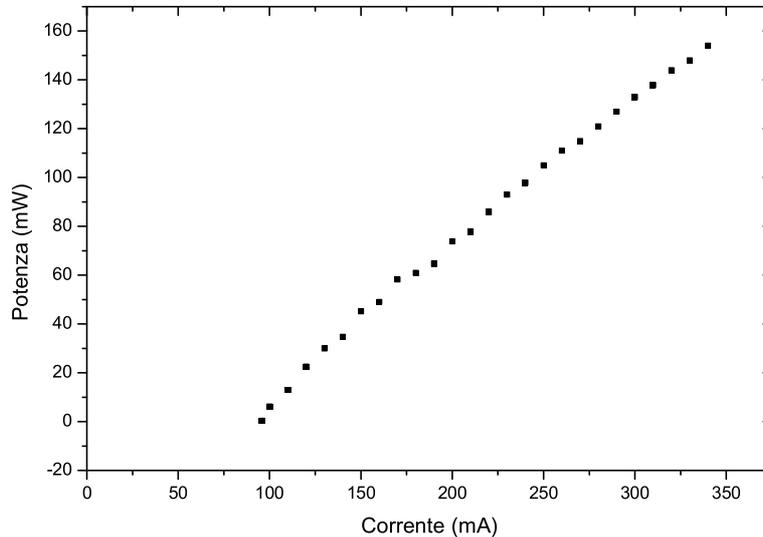
I laser che abbiamo utilizzato come sorgente per la generazione di frequenza differenza sono un laser a semiconduttore in cavità estesa (ECDL) utilizzato come *pump* e un laser Nd:YAG con cavità ad anello monolitica non piana utilizzato come *signal*<sup>7</sup>.

### 2.4.1 Il laser ECDL

All'inizio di questo lavoro il laser utilizzato come segnale di *pump* era un laser a diodo in cavità estesa con una potenza di  $\approx 90$  mW a una lunghezza d'onda di 860 nm. Questo laser è stato sostituito a causa della sua particolare instabilità che rendeva difficile l'aggancio al OFCS.

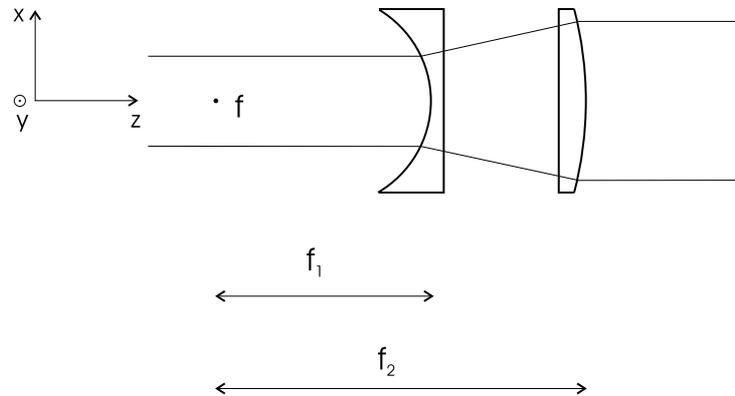
---

<sup>7</sup>Nei processi nonlineari di generazione di frequenza con tre lunghezze d'onda, si usa la nomenclatura di *pump*, *signal* e *idler* rispettivamente per la frequenza più alta, intermedia e più bassa.



**Figura 2.7:** Potenza del laser a semiconduttore in funzione della corrente alla lunghezza d'onda di  $\approx 861.7$  nm. La corrente di soglia è 96 mA

Il nuovo laser a semiconduttore è un Toptica DL100L la cui stabilizzazione viene fatta tramite un *feedback* dato da un reticolo di diffrazione (cavità estesa). La lunghezza d'onda può essere variata tra 838 nm e 863 nm cambiando l'angolo di inclinazione del reticolo; nel nostro caso abbiamo che il laser è stato ottimizzato per lavorare a 861.7 nm. Per ottimizzare l'allineamento del reticolo si deve massimizzare la potenza emessa e di conseguenza abbassare la soglia di funzionamento del laser. In figura 2.7 è riportata la potenza in funzione della corrente alla lunghezza d'onda di esercizio. La frequenza del laser può essere modulata tramite un PZT sul reticolo che modula l'inclinazione del reticolo con una scansione massima di 22 GHz e una banda dell'ordine delle decine di kHz. La modulazione ad alta frequenza è fatta attraverso la corrente con un accoppiamento a fet (posto in parallelo al diodo laser) con una banda di decine di MHz.



**Figura 2.8:** Schema della compensazione dell'astigmatismo del laser ECDL mediante una coppia di lenti cilindriche in configurazione confocale. La lente cilindrica di focale  $f_2$  ( $f_1$ ) permette di convergere (divergere) il fascio solo nella direzione orizzontale, lasciando inalterata la direzione verticale che nello schema è perpendicolare al foglio. Le due lenti sono poste a una distanza tale che i due fuochi coincidano, in questo modo il rapporto di compressione è dato da  $f_1/f_2$ . La scelta della lente divergente è dovuta solo al minor ingombro del telescopio rispetto a due lenti convergenti.

Come la maggior parte dei laser a semiconduttore il profilo spaziale del fascio è fortemente astigmatico, per compensare l'astigmatismo abbiamo utilizzato una coppia di lenti cilindriche in configurazione telescopica confocale. Infatti, conoscendo il rapporto di astigmatismo fra le due componenti spaziali del *waist* è possibile compensarlo utilizzando un telescopio con lo stesso fattore di ingrandimento sulla direzione desiderata. Nel nostro caso abbiamo utilizzato una lente convergente di focale  $f_2=50$  mm e una divergente di focale  $f_1=-12.7$  mm per stringere la dimensione orizzontale del fascio; in figura 2.8 è mostrato lo schema di funzionamento del telescopio che abbiamo utilizzato.

La compensazione dell'astigmatismo è utile non solo dal punto di vista pratico di avere un fascio collimato e relativamente rotondo, ma anche per ottimizzare il

*matching* sul cristallo PPLN con il segnale *signal*, che è perfettamente gaussiano in quanto proviene da una fibra ottica.

Una volta compensato l'astigmatismo il fascio attraversa un isolatore ottico<sup>8</sup> dopo di che viene fatto passare attraverso il modulatore acusto-ottico (AOM1) che serve per interrompere la luce e ottenere il segnale di *cavity ring down*. Il telescopio e l'isolatore non sono riportati in figura 2.1.

### 2.4.2 Il laser Nd:YAG

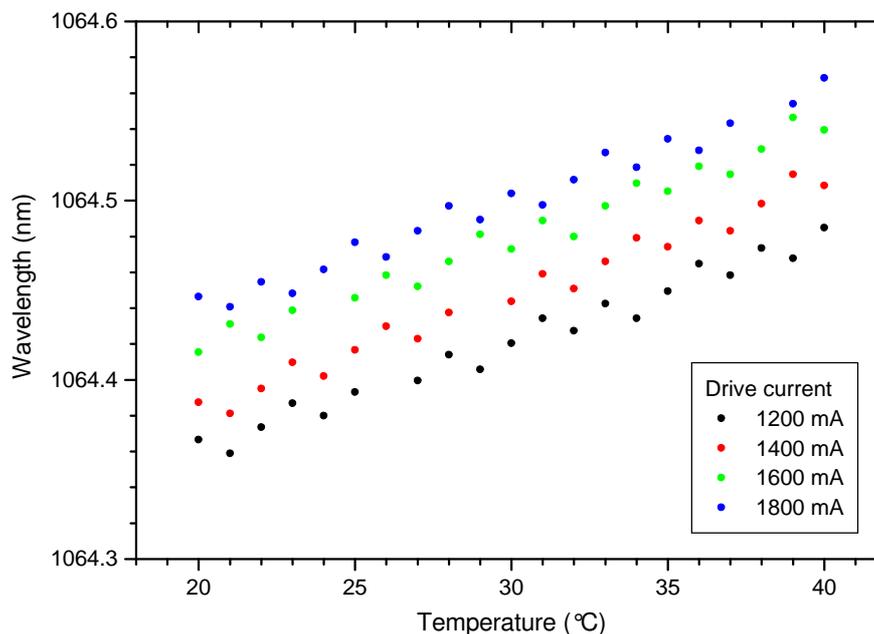
Il laser utilizzato come *signal* è il modello Mephisto 800 della Innolight che emette circa 800 mW alla lunghezza d'onda di 1064.47 nm. La lunghezza d'onda può essere cambiata tramite un PZT, che agisce sul cristallo monolitico che costituisce la cavità [46], con un range dell'ordine di 100 MHz e con una banda massima di  $\approx 100$  kHz. Un ulteriore modulabilità della frequenza è data dalla temperatura di stabilizzazione della cavità, che permette di avere un range di scansione più grande rispetto al PZT con la differenza che la modulabilità non è continua ma ci sono dei salti di modo e la banda d'aggancio massima è dell'ordine di 1 Hz. In figura 2.9 è stata riportata la lunghezza d'onda (misurata con il lambda-meter) in funzione della temperatura per quattro valori diversi della corrente di alimentazione. La caratteristica fondamentale di questo laser è quella di avere uno spettro con una larghezza<sup>9</sup> dell'ordine di 1 kHz su scale di tempi di 100 ms, che come vedremo più avanti sarà fondamentale per ottenere una radiazione IR relativamente stretta.

La potenza del laser è amplificata da un amplificatore in fibra a Itterbio con una potenza massima di 5 W. Il laser, prima di essere accoppiato nella fibra d'ingresso dell'amplificatore, viene fatto passare attraverso due modulatori

---

<sup>8</sup>l'isolatore è importante per i laser a diodo per evitare *feedback* che potrebbero alterare la stabilità.

<sup>9</sup>la larghezza intrinseca di un laser è data dalla formula di Schawlow-Townes [47]

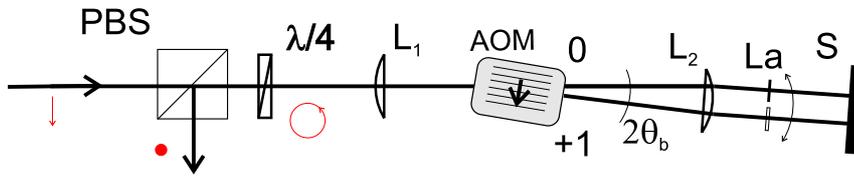


**Figura 2.9:** Lunghezza d’onda del laser Nd:YAG in funzione della temperatura, nel grafico sono riportati i punti sperimentali per valori diversi della corrente di pompa.

acusto-ottici posti in cascata (come mostrato in figura 2.1). I modulatori sono allineati nella configurazione cosiddetta a “doppio passaggio”, che consiste nel far ripassare attraverso il modulatore il fascio diffratto in modo tale da tornare esattamente su se stesso. Nel nostro caso abbiamo fatto sì che entrambi gli ordini (diffratto e non diffratto) tornino esattamente su se stessi, in maniera tale che entrambi possano essere accoppiati nella fibra<sup>10</sup>. Questo tipo di allineamento è riportato schematicamente nella figura 2.10 con una breve descrizione.

Gli AOM sono pilotati con una radio frequenza a 224.859 MHz fornita da un sintetizzatore riferito al segnale a 10 MHz. Questa frequenza di modulazione è esattamente i  $3/2$  del *free spectral range* della cavità in modo tale che le frequenze

<sup>10</sup>questo nel caso dell’AOM2 come si vede dalla figura 2.1, per l’AOM3 vale comunque la stessa cosa, perché entrambi gli ordini devono essere allineati per attraversare l’AOM2.



**Figura 2.10:** Schema di allineamento “doppio passaggio” per un modulatore acusto-ottico. La luce polarizzata linearmente orizzontale (freccia rossa) attraversa il cubo polarizzatore PBS. Una lamina birifrangente ( $\lambda/4$ ) rende circolare la polarizzazione e la lente  $L_1$  focalizza il fascio nel centro del cristallo del AOM. Il cristallo ha un angolo di incidenza ottimale per massimizzare la potenza diffratta ( $\theta_b$ ), a seconda del verso d’inclinazione dell’AOM e da come viaggia l’onda acustica, possiamo diffrangere la luce sull’ordine  $+1$  oppure  $-1$ ; in questo caso l’onda acustica si propaga come indicato dalla freccia nel AOM e quindi il cristallo risulta allineato per diffrangere sull’ordine  $+1$ . La lente  $L_2$ , che ha il fuoco nel centro del cristallo, rende paralleli i fasci uscenti e lo specchio S posto perpendicolarmente alla direzione dei fasci li riflette indietro su se stessi. I fasci riflessi vengono nuovamente diffratti dall’AOM tornando esattamente sulla direzione di andata. La luce che riattraversa la lamina viene polarizzata linearmente verticale e quindi riflessa dal cubo. Una volta ottimizzato l’allineamento, per fare in modo che la potenza diffratta sia esattamente la metà di quella incidente è sufficiente regolare la potenza dell’onda acustica che pilota l’AOM. La è la lametta per selezionare l’ordine diffratto da utilizzare.

IR generate siano separate esattamente di 3 FSR. Così facendo si ha che quando la radiazione IR generata con un qualsiasi modo diffratto è risonante con la cavità, cambiando la posizione delle lamette si ottiene sempre una frequenza risonante con la cavità.

### Misura della lunghezza d'onda dei laser

La misura della lunghezza d'onda dei laser è importante perché serve per sapere a quale dente del *comb* stiamo agganciando il laser per poterne determinare la frequenza assoluta. Infatti come abbiamo visto nel paragrafo 1.2.1 per determinare il parametro  $m$  basta conoscere la frequenza con un errore minore di  $\frac{\nu_r}{2}$ .

Per misurare la frequenza dei nostri laser utilizziamo un lambda-meter (modello WA-1500 della Burleigh) che sfrutta un interferometro di Michelson e un laser a HeNe stabilizzato come riferimento; questo strumento ha una accuratezza assoluta di  $\pm 1 \cdot 10^{-7}$  che ci permette di determinare il parametro  $m$ . Il laser da misurare viene accoppiato nell'interferometro tramite una fibra ottica che permette di avere un allineamento ottimale una volta che il laser è stato accoppiato in fibra senza richiedere ulteriori aggiustamenti. Per prelevare una piccola frazione di luce dei laser senza perturbare il sistema di generazione di frequenza differenziale abbiamo sfruttato il filtro di germanio che è posto dopo il reticolo di diffrazione (si veda figura 2.1). Di fatto, dopo il reticolo, una frazione (qualche %) dei laser sorgente si trova ancora sovrapposta al fascio IR generato; il filtro che è inclinato all'angolo di Brewster per la radiazione IR, riflette una parte dei laser sorgente e assorbe il resto. I due laser riflessi vengono prima separati con un dicroico per non mandarli contemporaneamente al misuratore e poi accoppiati nella fibra del lambda-meter tramite degli specchi montati su montaggi ribaltabili (specchi e dicroico non sono riportati in figura 2.1). In questo modo possiamo misurare la lunghezza d'onda dei laser in qualsiasi momento dell'esperimento.

## 2.5 Riferimento al OFCS

I laser vengono riferiti al OFCS tramite un aggancio in fase (*Phase-Lock Loop*). Per ottenere l'aggancio viene fatto un battimento tra la radiazione del OFCS e una porzione di radiazione dei laser generando un segnale RF a qualche MHz,

dopodiché questa frequenza viene stabilizzata con il metodo di Telle [48, 49] per collegare la frequenza del laser a diodo a quella del Nd:YAG eliminando la dipendenza dal *comb*. Per fare i battimenti è necessario una piccola quantità di luce; di fatto, per quanto riguarda il diodo, utilizziamo la parte di luce riflessa dal primo cubo polarizzatore dell'isolatore ottico<sup>11</sup> posto sul laser. Per il laser Nd:YAG utilizziamo una porzione di luce prelevata prima del primo cubo polarizzatore sul doppio passaggio.

Dall'equazione (1.4) possiamo scrivere le frequenze dei battimenti rivelati dai due fotodiodi (PD1 e PD2 nella figura 2.1) fra l'*n*-esimo dente del *comb* e i laser

$$\Delta\nu_{PD1} = \nu_{YAG} - (m\nu_r + \nu_0) \quad (2.16)$$

$$\Delta\nu_{PD2} = \nu_{ECDL} - (n\nu_r + \nu_0) \quad (2.17)$$

dove  $\nu_r$  e  $\nu_0$  sono rispettivamente la frequenza di ripetizione e la frequenza di offset del OFCS; mentre  $\nu_{YAG}$  e  $\nu_{ECDL}$  sono le frequenze dei laser sorgente. Come si vede dalla figura 2.1 le due frequenze rivelate sono battute in un mixer (M1, M2) per sottrarci la frequenza  $\nu_0$  ottenuta dal battimento nel fotodiodo PD3 secondo la relazione (1.5). A questo punto i segnali vengono mandati agli ingressi RF dei rispettivi PLL. Le frequenze in ingresso RF sono

$$\nu_{RF1} = \Delta\nu_{PD1} + \nu_0 = \nu_{YAG} - m\nu_r \quad (2.18)$$

$$\nu_{RF2} = \Delta\nu_{PD2} + \nu_0 = \nu_{ECDL} - n\nu_r \quad (2.19)$$

Nel caso del Nd:YAG il *local oscillator* del PLL1 è un sintetizzatore riferito al quarzo e dunque in condizioni di aggancio si ha RF=LO1 per cui

$$\nu_{YAG} = LO1 + m\nu_r \quad (2.20)$$

---

<sup>11</sup>L'isolatore ha in ingresso e in uscita un cubo polarizzatore, ruotando leggermente la polarizzazione della luce in ingresso possiamo fare in modo da prelevare la giusta quantità di potenza necessaria per l'aggancio.

dove LO1 è la frequenza del sintetizzatore. Per quanto riguarda il laser a diodo la frequenza del *local oscillator* LO2 è fornita da un *Direct-Digital-Synthesis* (DDS) che ha come ingresso lo stesso segnale che va al RF input del PLL1. Il DDS praticamente moltiplica per un certo fattore (nel nostro caso dato da  $n/m$ ) la frequenza in ingresso. Quindi per il diodo abbiamo

$$LO2 = \frac{n}{m}\nu_{YAG} - n\nu_r \quad (2.21)$$

In condizioni di aggancio (LO2=RF2), dalle equazioni (2.21, 2.19) si ha

$$\nu_{ECDL} = \frac{n}{m}\nu_{YAG}$$

Questo fa sì che la frequenza differenza generata sia data da

$$\nu_{IR} = \nu_{ECDL} - \nu_{YAG} = \left(\frac{n}{m} - 1\right)\nu_{YAG} \quad (2.22)$$

da cui si può notare che  $\nu_r$  e  $\nu_0$  scompaiono nell'espressione per la frequenza differenza. Tuttavia la frequenza IR è proporzionale alla frequenza del laser Nd:YAG. Dunque se quest'ultimo è agganciato in modo forte al *comb*, ne acquisisce il rumore e un fattore  $n/m - 1$  viene trasferito alla radiazione IR. Dato che il laser Nd:YAG in tempi corti è più stretto del *comb* abbiamo scelto un aggancio debole (circa 10 Hz di banda d'aggancio) per seguire essenzialmente la deriva termica del laser. In questo modo la larghezza della radiazione IR si riduce notevolmente ed è limitata dalla qualità dell'aggancio del laser a diodo (circa 2 MHz di banda d'aggancio). In tempi lunghi i laser sorgente sono comunque riferiti al OFCS, infatti come possiamo vedere dalle equazioni (2.16,2.17) i due laser sono a una frequenza ben nota dal dente del *comb*.

Il riferimento al OFCS non solo ci permette di misurare una frequenza in maniera assoluta ma fornisce anche un riferimento stabile nel tempo. Questo ci assicura di mantenere i due laser sorgente sempre alla stessa frequenza. Inoltre possiamo effettuare anche il procedimento inverso, ovvero, se conosciamo la frequenza IR che vogliamo ottenere, e di conseguenza quella a cui devono essere

i due laser sorgente, possiamo determinare i coefficienti  $m, n$  in funzione della frequenza di ripetizione dell'OFSC.

## 2.6 Il rivelatore

I rivelatori utilizzati per la lunghezza d'onda a  $4.5 \mu\text{m}$  sono rivelatori fotovoltaici ad antimonio di indio (InSb) con basso rumore e alta velocità di risposta (HAMAMATSU P5968-060). Questo tipo di rivelatore ha un rumore *shot* che dipende dal fondo termico che si ha nella regione di utilizzo; per questo i rivelatori sono raffreddati alla temperatura dell'azoto liquido e hanno un campo di vista (FOV) di 60 gradi.

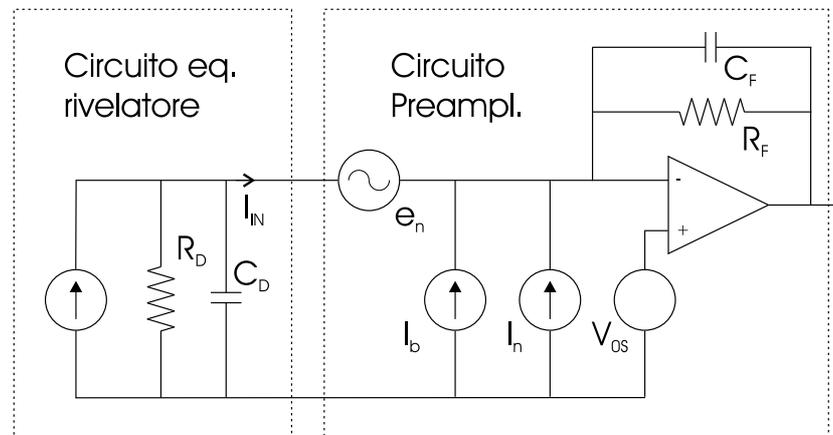
Il rivelatore si comporta da generatore di corrente, perciò ha bisogno di un preamplificatore per convertire il segnale in corrente in un segnale in tensione mantenendo il rivelatore alla tensione di zero volt. Nella figura 2.11 è riportato lo schema elettrico del preamplificatore e il circuito equivalente del rivelatore. Le caratteristiche del rivelatore insieme alle sorgenti di rumore dell'operazionale determinano il rumore del sistema. Per tenere conto di tutti questi effetti possiamo utilizzare la seguente espressione

$$e_n(\nu) \approx Z_F(\nu) \sqrt{\left[\frac{e_n}{Z_D(\nu)}\right]^2 + i_n^2 + 4k_B T \left[\frac{1}{R_D} + \frac{1}{R_F}\right]} \quad (2.23)$$

che è un'approssimazione di una più complessa trattazione, dove  $k$  è la costante di Boltzmann e  $T$  la temperatura assoluta. Da notare che il rumore dipende dalla frequenza  $\nu$  ed è normalizzato a 1 Hz di banda. I quattro termini sotto radice rappresentano le quattro sorgenti maggiori di rumore in corrente:

- rumore in tensione dell'operazionale  $e_n$  diviso per l'impedenza del rivelatore  $Z_D$ , dove

$$Z_D(\nu) = \frac{R_D}{\sqrt{1 + (2\pi\nu C_D R_D)^2}} \quad (2.24)$$



**Figura 2.11:** Circuito elettrico del preamplificatore con lo schema equivalente del rivelatore. Nello schema sono riportate, sotto forma di generatori, le sorgenti di rumore dovuti all'operazionale ( $e_n$ ,  $i_n$ ,  $V_{os}$  e  $i_b$ ).  $R_D$ ,  $C_D$  sono, rispettivamente, la resistenza di *shunt* e la capacità di giunzione del rivelatore.  $R_F$ ,  $C_F$  sono resistenza e capacità di *feedback* dell'operazionale (opa637); il condensatore è necessario per ridurre il *gain peaking* dell'operazionale.

- rumore in corrente dell'operazionale  $i_n$ ;
- rumore termico Johnson in corrente della resistenza di *shunt*  $R_D$  del rivelatore;
- rumore termico Johnson in corrente della resistenza di *feedback*  $R_F$  dell'operazionale.

Il rumore in corrente totale deve essere poi moltiplicato per la transimpedenza  $Z_F$

$$Z_F(\nu) = \frac{R_F}{\sqrt{1 + (2\pi\nu C_F R_F)^2}} \quad (2.25)$$

per avere il rumore in tensione all'uscita del preamplificatore.

Dopo il preamplificatore c'è un secondo stadio di amplificazione puramente

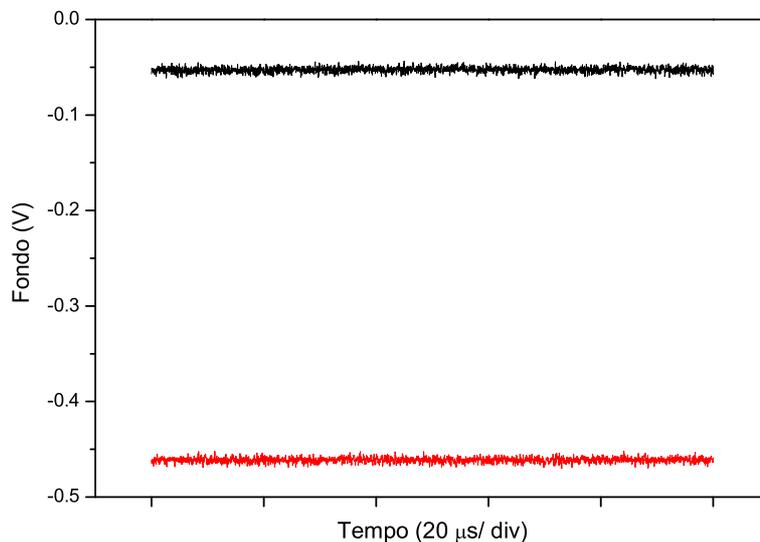
proporzionale (guadagno=10, non invertente) che è il vero stadio di amplificazione del segnale. In questo modo possiamo mantenere buona parte della banda intrinseca del rivelatore ( $\approx 5.3$  MHz) indipendentemente dal guadagno che vogliamo ottenere; questo perché possiamo utilizzare una  $R_F$  piccola mantenendo bassa la costante di tempo e poi regolare il guadagno con il secondo stadio di amplificazione.

Utilizzando l'equazione (2.23) con i dati forniti dal costruttore per quanto riguarda rivelatore e operazionale e con  $R_F=75$  k $\Omega$  e  $C_F=5.6$  pF abbiamo stimato il rumore del sistema e abbiamo visto che il valore è trascurabile rispetto al fondo che riveliamo<sup>12</sup>. Quindi siamo limitati dal fondo termico. Per ridurre ulteriormente questo fondo abbiamo messo un filtro freddo sul rivelatore per ridurre il campo di vista. La parte sensibile del rivelatore è un'area quadrata di 0.36 mm<sup>2</sup> con un campo di vista di 60 gradi; mettendo un filtro di rame a contatto con la parte fredda (nel rivelatore è previsto l'alloggio di un filtro) con un foro di diametro 1.5 mm abbiamo ridotto il campo di vista di circa un fattore 3. Il diametro del foro è stato scelto anche in funzione della convergenza della luce laser da rivelare, di fatto la radiazione viene focalizzata sulla parte sensibile mediante una lente convergente di focale 50 mm e quindi conosciamo la convergenza del fascio. In base a questo abbiamo scelto un foro che non tagliasse la luce incidente ma riducesse il campo di vista. Nella figura 2.12 è riportato l'acquisizione del fondo del rivelatore con e senza filtro freddo, dove possiamo notare la diminuzione del fondo per merito del filtro.

### 2.6.1 Velocità di risposta

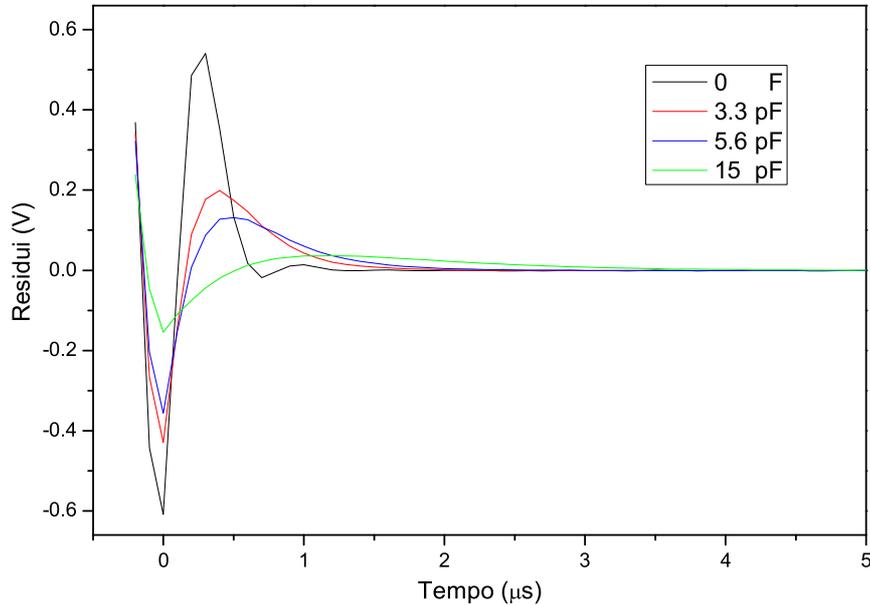
La velocità di risposta del rivelatore è determinata dal preamplificatore, questo perché si deve introdurre una capacità di *feedback* per ridurre il *gain peaking*

<sup>12</sup>Attualmente, come spiegato nel paragrafo 4.5.1, i valori di  $R_F$  e  $C_F$  sono stati cambiati ma le conclusioni che sono trattate in questo paragrafo continuano ad essere valide.



**Figura 2.12:** Acquisizione del fondo del rivelatore con (traccia nera) e senza (traccia rossa) il filtro freddo. Dalla figura è evidente la riduzione del fondo per merito del filtro che riduce il campo di vista della parte sensibile del rivelatore. Il segnale è negativo a causa del preamplificatore che inverte il segnale proveniente dal rivelatore.

dell'operazionale. Per determinare il valore ottimale di  $C_F$  abbiamo misurato la velocità di risposta del rivelatore più il complesso dei due stadi di amplificazione, cambiando di volta in volta il valore della capacità condensatore. Per questa misura abbiamo posto il rivelatore prima della cavità ad alta finezza in modo da rivelare direttamente la luce incidente. Tramite l'apposito AOM sul laser ECDL veniva spenta la radiazione con una costante di tempo di  $\sim 100$  ns, mediante un oscilloscopio è stato acquisito il segnale durante la transizione. Facendo un fit con una funzione che decade esponenzialmente abbiamo misurato la costante di tempo del sistema rivelatore più amplificatore; dai residui del fit è stato possibile vedere la forma del *gain peaking* del preamplificatore. Nella figura 2.13



**Figura 2.13:** Residui del fit (con una funzione che decade esponenzialmente) della risposta del rivelatore più amplificatore, ; sono riportate diverse curve al variare di  $C_F$ . Si vede bene l'effetto del *gain peaking*.

sono mostrate alcune di queste registrazioni dove si nota come cambia il *gain peaking* in funzione del valore di  $C_F$ ; le curve mostrate sono state acquisite con un  $R_F=33.2 \text{ k}\Omega$ .

La capacità attuale è di  $C_F=3.3 \text{ pF}$ , valore che è stato scelto come via di mezzo per avere un basso picco e una buona velocità di risposta. Dal fit risulta infatti che la costante di tempo del complesso rivelatore più amplificatore è  $\approx 300 \text{ ns}$  che permette di considerare decaduto l'esponenziale del rivelatore dopo  $2 \mu\text{s}$ . Questa velocità di risposta ci permette di analizzare i segnali di *cavity ring down* con un unico decadimento esponenziale, con l'accorgimento di scartare i primi  $2 \mu\text{s}$  di segnale.

## Capitolo 3

# Ottimizzazione del set-up sperimentale

In questo capitolo affronteremo alcuni aspetti importanti che hanno portato all'ottimizzazione del sistema sperimentale. Di fatto l'apparato ha avuto una grossa evoluzione che lo ha portato ad avere un'alta sensibilità; questo perchè migliorando di volta in volta un elemento del set-up più o meno significativo si andava incontro a nuove difficoltà che precedentemente non erano rivelabili.

### 3.1 Generazione della radiazione infrarossa

Per realizzare la generazione della radiazione infrarossa abbiamo sovrapposto i due laser sorgente attraverso uno specchio diecrico (vedi figura 2.1 per poi focalizzarli nel cristallo PPLN. Per scegliere la focale della lente da utilizzare abbiamo tenuto conto del parametro  $\xi$  (si veda appendice C) che è dato dal rapporto fra la lunghezza del cristallo e il parametro confocale del fascio gaussiano; abbiamo calcolato il valore di  $\xi$  per rendere massima l'efficienza trovando un valore di  $\xi \approx 2.5$ . Dato che il laser Nd:YAG amplificato è un ottimo fascio gaussiano per-

ché proviene da una fibra ottica, abbiamo utilizzato i suoi parametri per scegliere la focale della lente.

Dal valore di  $\xi$  e dalla lunghezza del cristallo abbiamo ricavato il *waist* che dobbiamo ottenere con la lente  $w_0=0.04$  mm. Utilizzando le formule che regolano la trasformazione del *waist* di un fascio gaussiano e la sua posizione attraverso una lente abbiamo ricavato la focale necessaria. Le formule sono [37]

$$w_{0i} = w_{0o} \frac{|f|}{\sqrt{z_o^2 + \left(\frac{\pi w_{0o}^2}{\lambda}\right)^2}} \quad (3.1)$$

$$z_i = z_o \frac{f^2}{z_o^2 + \left(\frac{\pi w_{0o}^2}{\lambda}\right)^2} \quad (3.2)$$

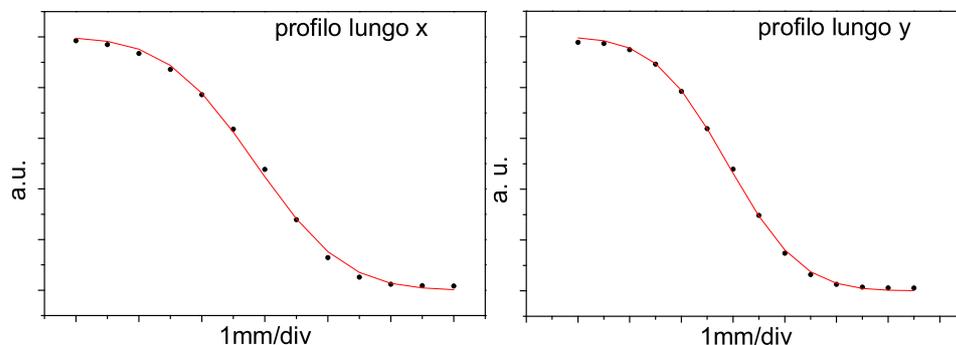
dove  $w_{0o}$  è il *waist* oggetto che dista  $z_o$  dal piano focale della lente e  $w_{0i}$  è il *waist* immagine che si trova alla distanza  $z_i$  dal piano focale. Il valore che abbiamo trovato è  $f=100$  mm. Una volta piazzata la lente abbiamo verificato che effettivamente il *waist* fosse quello calcolato.

Per misurare il *waist* abbiamo utilizzato il metodo delle lamette che consiste nell'“affettare” trasversalmente il fascio e di volta in volta misurare la potenza trasmessa ricostruendo così il profilo. Questo metodo si utilizza per fasci di raggio piccolo e permette di misurare il *waist* in una precisa direzione trasversa.

L'andamento spaziale del campo del modo gaussiano fondamentale può essere scritto nella forma [37]

$$E(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w} e^{i(kz - \phi) - r^2 \left(\frac{1}{w^2} - \frac{ik}{2R}\right)} \quad (3.3)$$

dove  $\phi$  è un termine di fase e  $R$  il raggio di curvatura del fronte d'onda. Facendo un fit dei dati sperimentali prendendo come funzione di fit l'integrale dell'espressione (3.3) modulo quadro, ricaviamo il raggio del fascio ( $w$ ) nel determinato punto di misura nella direzione scelta. Facendo uso di una lametta fissata su un traslatore micrometrico abbiamo effettuato la misura, sia per la direzione  $x$  sia per la direzione  $y$ , in diversi punti lungo l'asse  $z$  di propagazione del fascio. Nella



**Figura 3.1:** Misura del waist del laser Nd:YAG a una distanza di 75 mm dalla lente di focalizzazione. Nel grafico sono riportati i punti sperimentali e la curva di fit.

figura 3.1 è riportato il grafico della misura effettuata a una distanza di 75 mm dalla lente dove si vedono i punti sperimentali e la curva di fit. Conoscendo i valori di  $w$  al variare lungo l'asse  $z$  abbiamo determinato sia il valore del *waist*  $w_0$ , sia la sua posizione; per fare questo abbiamo fatto un fit utilizzando l'espressione che regola l'andamento del raggio  $w$  lungo l'asse  $z$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z - z_0}{\frac{\pi w_0^2}{\lambda}} \right)^2} \quad (3.4)$$

dove  $z_0$  è la posizione lungo l'asse  $z$  dove si trova  $w_0$ ; in questa misura abbiamo preso l'origine dell'asse  $z$  ( $z = 0$ ) in corrispondenza della lente di focalizzazione. I valori ottenuti sono riportati in tabella 3.1.

Per quanto riguarda il laser ECDL abbiamo fatto la stessa misura ma con un metodo diverso chiamato metodo dei fori; questo tipo di misura fornisce un *waist* mediato sulle direzioni trasverse e, a differenza dell'altro, viene utilizzato per fasci con diametro dell'ordine dei mm. Questo perché nonostante la compensazione dell'astigmatismo (si veda paragrafo 2.4.1) il fascio del laser non è un ottimo

	x	y
$w_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$41.6 \pm 0.5$	$42.8 \pm 0.7$
$z_0$ (mm)	$102 \pm 1$	$104 \pm 1$

**Tabella 3.1:** Valori misurati del *waist* del laser Nd:YAG dopo la lente di focalizzazione. I valori di  $z$  hanno come riferimento ( $z = 0$ ) la posizione della lente stessa.

fascio gaussiano; quindi abbiamo optato per una misura più semplice e veloce, per avere soltanto un'idea di come è fatto il profilo "medio" del fascio. Per fare questa misura abbiamo sfruttato un disco con vari fori di diverso diametro montato su un traslatore x-y micrometrico in modo tale da poter massimizzare, di volta in volta, la potenza trasmessa dal foro; in questo modo abbiamo ottenuto una serie di valori  $P_i$  corrispondenti ai fori di raggio  $R_i$ . La misura è stata effettuata sul modo diffratto dall'AOM1 perché è quello impiegato come segnale di *pump*.

Dall'equazione (3.3) si vede che in funzione del raggio  $r$  l'intensità di un fascio gaussiano varia come  $e^{-2r^2/w^2}$ . Se  $P$  la potenza totale del fascio, risulta che

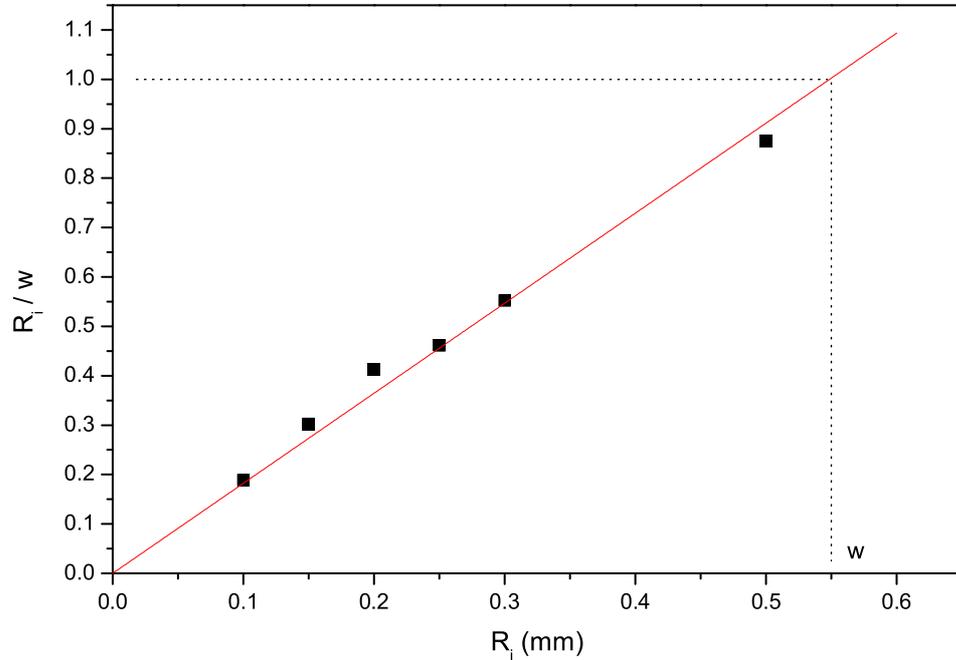
$$I(r) = \frac{2P}{\pi w^2} e^{-\frac{2r^2}{w^2}} \quad (3.5)$$

dove il coefficiente  $2P/\pi w^2$  corrisponde alla normalizzazione per una gaussiana bidimensionale. Se indichiamo con  $P$  la potenza totale (quella misurata senza disco) abbiamo che la potenza trasmessa dall' $i$ -esimo foro è data da

$$P_i = \int_0^{R_i} \frac{2P}{\pi w^2} e^{-\frac{2r^2}{w^2}} 2\pi r dr = P \left( 1 - e^{-2\frac{R_i^2}{w^2}} \right) \quad (3.6)$$

Risolviendo per  $R_i/w$  si trova che

$$\frac{R_i}{w} = \sqrt{-\frac{1}{2} \ln \left( 1 - \frac{P_i}{P} \right)} \quad (3.7)$$



**Figura 3.2:** Misura del *waist* del laser ECDL a una distanza di 280 mm dal AOM col metodo dei fori. Nel grafico sono riportati i punti sperimentali e la curva di fit. Dove la curva di fit vale 1 si ha che  $R_i = w$ .

Mettendo in grafico l'equazione (3.1) utilizzando i dati sperimentali e facendo un fit lineare; abbiamo che dove la funzione vale 1  $R_i = w$  determinando così il valore del raggio del fascio<sup>1</sup>. In figura 3.2 sono riportati i dati sperimentali relativi a un'acquisizione fatta a una distanza di 280 mm dall'acusto-ottico. I punti sono i dati calcolati con l'equazione (3.1) utilizzando le potenze  $P_i$  misurate in funzione dei raggi  $R_i$ , la linea è il fit lineare da cui si ricava  $w$ .

Come nel caso del laser Nd:YAG abbiamo misurato il raggio in più punti

<sup>1</sup>La stessa cosa si ottiene utilizzando il reciproco della pendenza della retta di fit.

lungo l'asse  $z$  determinando così  $w_0$  e  $z_0$ . I valori misurati sono

$$w_0 = 0.50 \pm 0.01 \text{ mm}$$

$$z_0 = -198 \pm 15 \text{ mm}$$

dove in questo caso  $z = 0$  corrisponde al punto di uscita del laser dall'AOM.

Con questi valori abbiamo visto<sup>2</sup> che per ottimizzare la sovrapposizione del laser ECDL con il laser Nd:YAG all'interno del cristallo di Niobato di Litio sono necessarie due lenti in configurazione confocale; la prima ha una focale di  $f=-350$  mm e la seconda ha  $f=500$  mm.

Con questi accorgimenti la potenza massima di radiazione generata per differenza di frequenza è di  $P_{IR} \approx 60 \mu\text{W}$ ; questo valore è ottenuto con una potenza di 100 mW di *pump* (laser ECDL) e 2800 mW di *signal* (laser Nd:YAG) a una temperatura ottimale del cristallo pari a 63.5 gradi. La temperatura è stata trovata massimizzando il segnale IR generato, analogamente sono stati ottimizzati l'allineamento reciproco dei due laser, le posizioni delle varie lenti e la posizione del cristallo con tutti i suoi possibili movimenti.

Dalla teoria (appendice C) abbiamo calcolato la potenza IR che dovremmo ottenere nelle suddette condizioni di lavoro e la temperatura ottimale di *quasi-phase matching* (paragrafo 2.3.1); con *pump* e *signal* alle lunghezze d'onda, rispettivamente di 862 nm e 1064.47 nm, il calcolo fornisce una potenza di 270  $\mu\text{W}$  e una temperatura ottimale di 58.5 gradi. C'è un'evidente differenza (circa un fattore 4.5) tra teoria e pratica, questa è da attribuire principalmente a due punti. Primo al fatto che la potenza IR non è stata misurata subito dopo il cristallo ma dopo alcuni elementi ottici (lente, reticolo, filtro di germanio, ecc.) che introducono perdite. Secondo e più importante il non perfetto *matching* fra i profili spaziali

---

<sup>2</sup>Abbiamo fatto un programma che, sfruttando le eq.(3.1,3.2), simula l'andamento del *waist* e della sua posizione attraverso delle lenti fino ad arrivare al centro del cristallo PPLN, in questo modo possiamo ottimizzare i parametri in funzione del *waist* che vogliamo nel PPLN.

dei due laser all'interno del cristallo PPLN; nel conto teorico abbiamo utilizzato un *waist* di 0.04 mm per entrambi i laser ma in pratica questo è vero soltanto per il *signal*.

### 3.1.1 Le caratteristiche della radiazione IR

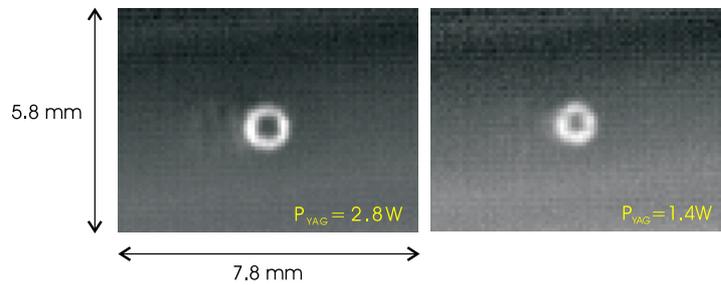
In questo paragrafo vedremo le principali caratteristiche della radiazione generata per differenza di frequenza. Per quanto riguarda le dimensioni spaziali del fascio, bisogna subito notare che a causa della lunghezza d'onda più alta la divergenza risulta maggiore rispetto ai laser sorgente. La divergenza di un fascio gaussiano è lineare con la lunghezza d'onda secondo la relazione<sup>3</sup>

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0} = \frac{w_0}{z_r} \quad (3.8)$$

dove  $z_r$  indica la distanza di *Rayleigh* ( $z_r = \pi w_0^2/\lambda$ ); quindi se consideriamo per semplicità che il *waist* della radiazione generata sia lo stesso del laser Nd:YAG (nel nostro caso 40  $\mu m$ ), si ha che la divergenza del segnale *idler* è più grande. Questo è importante per portare la radiazione sulla cavità ad alta finezza. Per rendere il fascio collimato abbiamo posto una lente convergente di corta focale (f=50 mm) in prossimità del cristallo PPLN.

Inizialmente il reticolo di diffrazione non era stato utilizzato [50] per separare la radiazione generata dalle sorgenti e il compito era assegnato solamente al filtro di germanio. Misurando la potenza IR generata in funzione della potenza del laser Nd:YAG, ci siamo accorti che l'andamento non era lineare contrariamente a quanto riportato dalla teoria. Studiando il problema dal punto di vista pratico abbiamo notato, con una telecamera piroelettrica, che il modo spaziale della radiazione generata presentava un "buco" nel centro del fascio e che cambiava forma con il variare dell'intensità del laser *signal*. Questo spiegava la non linearità dell'andamento della potenza generata; la radiazione infrarossa cambiando forma,

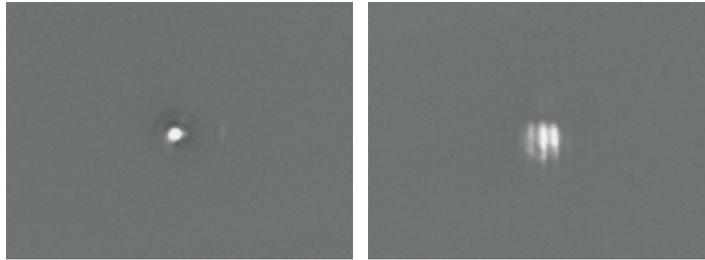
<sup>3</sup>Questa relazione si ricava dall'eq.(3.4) per  $z \gg z_r$ .



**Figura 3.3:** Immagini del modo spaziale della radiazione infrarossa acquisite con una telecamera piroelettrica senza l'obiettivo. Nella figura sono riportate due immagini singole per una diversa potenza del laser *signal*,  $P_{YAG} = 2.8 W$  a sinistra e  $P_{YAG} = 1.4 W$  a destra.

di fatto cambiava anche la sua focalizzazione sul rivelatore. In figura 3.3 sono riportate due immagini prese con la telecamera senza il suo obiettivo e messa al posto del rivelatore. Nella figura a sinistra la potenza del laser Nd:YAG era 2.8 W e in quella di destra 1.4 W, è evidente che nella figura di destra il “buco” è più accentuato rispetto alla figura di sinistra.

La spiegazione di questo fenomeno è stata che il filtro di germanio si scaldava eccessivamente nell'assorbire la potenza dei laser sorgente; questo introduceva un effetto lente dovuto al gradiente di temperatura. Per ovviare a questo problema abbiamo introdotto il reticolo di diffrazione. Abbiamo utilizzato un reticolo d'oro, disegnato per lavorare alla lunghezza d'onda di 1000 nm con massima efficienza sull'ordine 1. In questo modo abbiamo fatto sì che la maggior parte della potenza dei due laser sorgente fosse diffratta sull'ordine 1 mentre la radiazione infrarossa fosse riflessa sull'ordine 0. La percentuale residua sull'ordine 0 ( $\approx 2\%$ ) dei laser sorgente viene definitivamente eliminata dal filtro di germanio senza però introdurre l'effetti termici sopra descritti. In figura 3.4 sono riportate due immagini della radiazione infrarossa acquisite con la telecamera piroelettrica dove



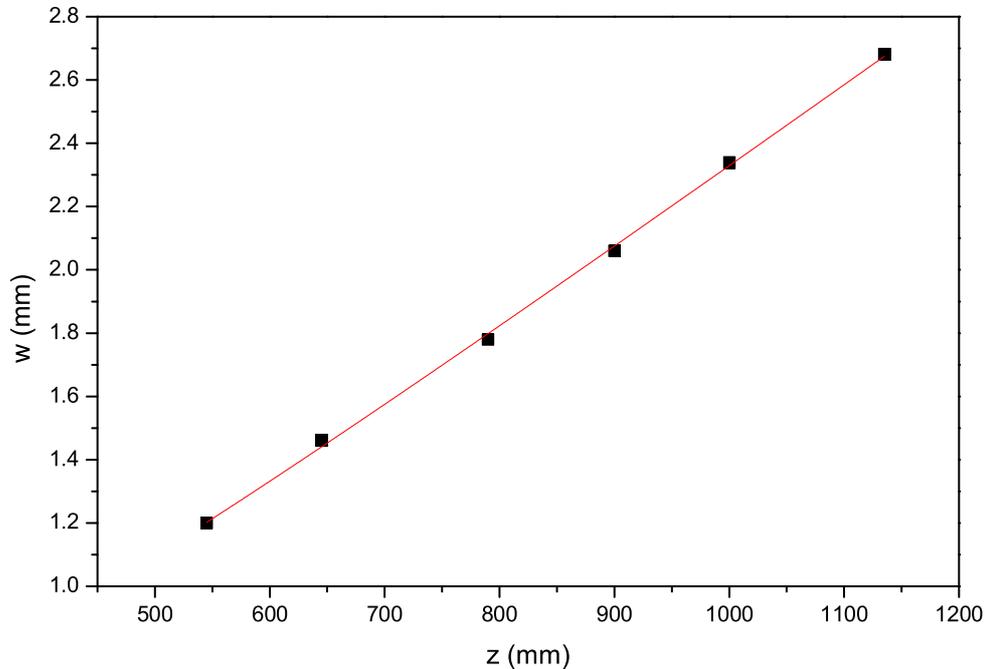
**Figura 3.4:** Immagini del modo spaziale della radiazione infrarossa acquisite con una telecamera piroelettrica senza l'obiettivo; in questa acquisizione è presente il reticolo di diffrazione per separare i laser sorgente dalla radiazione IR generata. Nella figura sono riportate due immagini mediate dal software della telecamera per una diversa posizione. L'immagine sinistra si riferisce a un punto dove il fascio è focalizzato da una lente; l'immagine destra è presa prima della lente, in questa figura si vedono delle frange che sono dovute alla telecamera stessa.

si vede che lo spot del fascio è pieno.

Le dimensioni del profilo della radiazione generata per differenza sono state misurate con il metodo dei fori nel tratto successivo al reticolo. In figura 3.5 è riportato l'andamento del raggio del fascio, misurato in funzione della sua posizione  $z$  e il relativo fit per la determinazione di  $w_0$  e  $z_0$ . La posizione  $z=0$  corrisponde al reticolo di diffrazione e i valori trovati sono

$$w_0 = 0.546 \pm 0.007 \text{ mm}$$

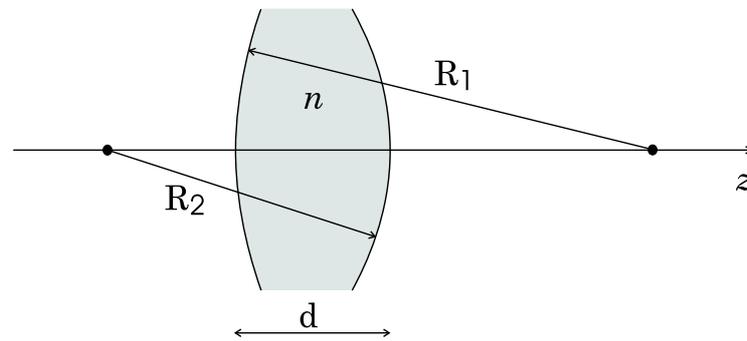
$$z_0 = 137 \pm 8 \text{ mm}$$



**Figura 3.5:** Misura del *waist* della radiazione infrarossa. Nel grafico sono riportati i valori misurati in funzione della loro posizione lungo l’asse  $z$ ; il punto di riferimento  $z=0$  corrisponde al reticolo di diffrazione. La curva continua è il fit utilizzando l’espressione (3.4) da cui si ricavano i valori di  $w_0$  e  $z_0$ .

## 3.2 Allineamento della cavità

Per avere un buon accoppiamento della radiazione nella cavità ad alta finezza bisogna fare in maniera tale che il modo spaziale della luce sia come quello definito dalla cavità. Conoscendo la dimensione del modo all’interno della cavità (si veda paragrafo 2.1) abbiamo visto come si trasforma attraverso lo specchio curvo. Per questo abbiamo utilizzato le equazioni (3.1, 3.2) dove  $f$  è stata calcolata tramite la formula del “costruttore di lenti”. Di fatto la piccola percentuale di luce che attraversa lo specchio subisce una divergenza dovuta alle due superfici



**Figura 3.6:** Esempio di lente semplice con i parametri necessari per il calcolo della focale.  $R_i$  sono i raggi di curvatura delle due superfici che delimitano la lente di spessore  $d$  e  $n$  è l'indice di rifrazione del materiale.

che costituiscono lo specchio.

Consideriamo una lente generica come quella di figura 3.6 immersa in aria, la formula del “costruttore di lenti” è

$$\frac{1}{f} = (n - 1) \left( \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} + \frac{n - 1}{n} \frac{d}{R_1 R_2} \right) \quad (3.9)$$

dove  $R_i$  sono i raggi di curvatura delle due superfici che delimitano la lente di spessore  $d$  e  $n$  è l'indice di rifrazione del materiale. Nel caso di lenti sottili ( $d \ll R_i$ ) l'equazione (3.9) si riduce a

$$\frac{1}{f} = (n - 1) \left( \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right) \quad (3.10)$$

I nostri specchi sono piano concavi e possiamo conderarli come lenti sottili, con  $R_1 = \infty$ ,  $R_2 = 6$  m e  $n=2.4$  otteniamo che l'effetto dello specchio sul fascio che lo attraversa è divergente per effetto di una focale di  $f \approx -4$  m.

Tenendo conto di tutti i valori (misurati e calcolati) abbiamo visto che per ottimizzare la sovrapposizione della radiazione infrarossa sul modo della cavità la soluzione migliore è quella di usare una coppia di lenti convergenti; la prima di focale  $f=100$  mm e la seconda di focale  $f=150$  mm. Le sono state montate su

traslatori x-y-z e le loro posizioni sono state ottimizzate sperimentalmente massimizzando l'accoppiamento della luce in cavità. L'utilizzo delle due lenti è comodo anche perché permette di cambiare facilmente il punto e l'angolo di incidenza della radiazione sullo specchio d'ingresso, questo facilita la sovrapposizione della radiazione sull'asse della cavità.

Una volta ottimizzato l'accoppiamento della luce in cavità abbiamo utilizzato i PZT grandi per una ottimizzazione più fine. Cambiando la tensione di alimentazione di un solo PZT a step di 5/10 V e misurando di volta in volta il tempo di *cavity ring down* ( $\tau_0$ ), abbiamo trovato il valore di tensione che massimizza  $\tau_0$ ; ripetendo la procedura per tutti e tre i PZT abbiamo ottimizzato l'allineamento. Massimizzare il tempo di *cavity ring down* significa minimizzare le perdite, nel caso di cella vuota le uniche perdite che possono variare sono quelle dovute all'allineamento e quindi minimizzarle significa ottimizzare la sovrapposizione della radiazione con il modo fondamentale della cavità.

### 3.2.1 Accoppiamento della radiazione IR in cavità

Per avere un'idea di quale fosse la percentuale di accoppiamento abbiamo utilizzato l'espressioni che forniscono l'intensità trasmessa e riflessa da una cavità *Fabry-Perot*. Se consideriamo specchi uguali con riflettività R, trasmissione T e assorbimento A e che la cavità sia vuota, si ha che l'intensità trasmessa è data da [37]

$$I_T = I_I \frac{1}{1 + f \sin^2(\frac{\delta}{2})} \left(1 - \frac{A}{1 - R}\right)^2 \quad (3.11)$$

dove  $\delta$  è lo sfasamento dovuto al cammino ottico all'interno della cavità e  $f$  il parametro di contrasto dato da

$$f = \frac{4R}{(1 - R)^2} = \frac{4F^2}{\pi^2}$$

dove  $F$  è la finezza del *Fabry-Perot* definita dall'equazione (2.1). Nell'equazione (3.11) l'espressione

$$1 + f \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right)$$

è detta *funzione di forma di Airy*. Quando la luce è in perfetta risonanza con la cavità si ha che la funzione di forma vale 1 quindi la frazione di luce trasmessa è data da

$$\frac{I_T}{I_I} = \left(1 - \frac{A}{1-R}\right)^2 = (1 - \beta)^2 \quad (3.12)$$

$$\beta \equiv \frac{A}{1-R}$$

Per quanto riguarda l'intensità riflessa l'espressione di partenza è sostanzialmente la complementare della (3.11) che nel nostro caso ( $R \approx 1$ ) possiamo approssimare in

$$\frac{I_R}{I_I} \approx \beta^2 \quad (3.13)$$

Se indichiamo con  $\epsilon$  il *matching* tra il modo del laser e quello della cavità, possiamo riscrivere le equazioni (3.12, 3.13) come

$$\frac{I_T}{I_I} = \epsilon(1 - \beta)^2 \quad (3.14)$$

$$\frac{I_R}{I_I} = 1 - \epsilon(1 - \beta^2) \quad (3.15)$$

dove l'equazione (3.14) non ha bisogno di spiegazione, mentre la (3.15) si ricava considerando che la parte di luce riflessa è data da tutta la luce meno quella che entra in cavità, quella che entra in cavità è quella non riflessa per il coefficiente di accoppiamento; di fatto per un accoppiamento ideale  $\epsilon = 1$  dalle (3.14, 3.15) si riottengono le equazioni (3.12, 3.13).

Le frazioni della potenza riflessa e trasmessa sono facilmente misurabili, risolvendo il sistema possiamo determinare i valori di  $\beta$  e  $\epsilon$ . Le frazioni sono 88% e 1.2%, rispettivamente per la potenza riflessa e trasmessa; con questi valori

otteniamo

$$\epsilon = 0.36$$

$$\beta = 0.82$$

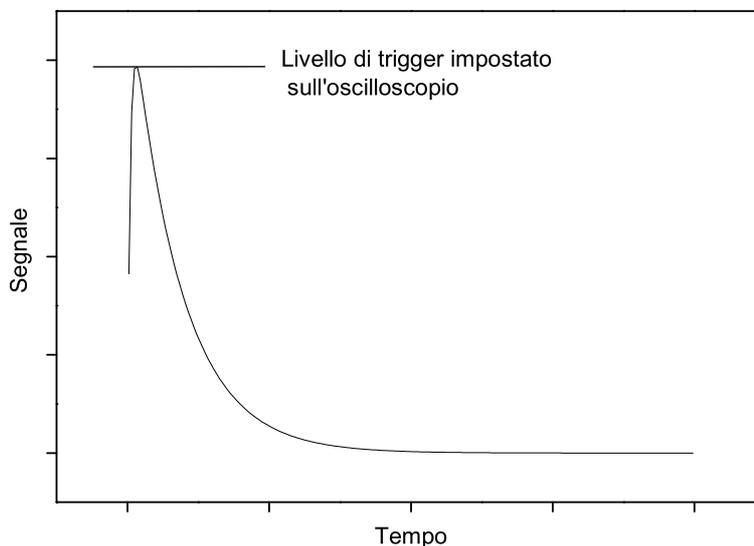
Il valore di  $\beta$  per definizione (equazione (3.12)) è dato dal rapporto tra le perdite per assorbimento degli specchi e la loro trasmissione; avere un  $\beta = 0.82$  significa che le perdite sono paragonabili alla trasmissione.

### 3.3 Sistema di acquisizione dati

Inizialmente il sistema di acquisizione dati era costituito da un oscilloscopio digitale (modello LT374 LeCroy) con 8 bit di risoluzione e una velocità di campionamento di 4GS/s. All'oscilloscopio veniva mandato il segnale proveniente dall'amplificatore del rivelatore tramite un cavo coassiale a 50  $\Omega$ .

Per realizzare il *cavity ring down* utilizziamo un modulatore acusto-ottico pilotato con un segnale RF a una frequenza di 110 MHz (AOM1 di figura 2.1). L'AOM ha il compito di spengere la radiazione laser; di fatto viene utilizzata la luce diffratta sull'ordine -1 come segnale di *pump* per la generazione di frequenza differenza. In questo modo interrompendo il segnale RF spengiamo molto velocemente la luce ( $\sim 100$  ns). Lo spengimento della radio-frequenza viene fatto tramite il *driver* dell'AOM pilotato con un segnale TTL, se il segnale è alto il *driver* interrompe il segnale RF.

Nella prima parte di questo esperimento il segnale TTL veniva fornito dall'oscilloscopio col quale acquisivamo i segnali di *cavity ring down*. L'oscilloscopio ha un uscita ausiliaria TTL che diventa alta ogni evento di trigger e rimane tale fino alla fine dell'acquisizione, in altre parole ha una durata pari all'intervallo di tempo visualizzato sullo schermo dello strumento. Quindi cambiando la scala dei



**Figura 3.7:** Simulazione di un segnale *cavity ring down*, il livello di trigger indica il punto in cui viene spento l'AOM. La durata di spengimento è fissata dalla scala temporale dell'oscilloscopio.

tempi dell'oscilloscopio cambiamo la durata dello spengimento della radiazione infrarossa.

Il trigger dell'oscilloscopio è posto in prossimità del massimo di segnale in trasmissione in modo tale da scattare solo quando la cavità è carica; in pratica viene fatta una piccola scansione della cavità intorno al picco di risonanza con la radiazione IR in modo tale da ottenere gli eventi di trigger. In figura 3.7 è riportata una simulazione di un segnale *cavity ring down* dove è indicato il punto dove interviene il modulatore acusto-ottico.

L'acquisizione dati è regolata da un programma che dialoga tramite GPIB con l'oscilloscopio; la sequenza è:

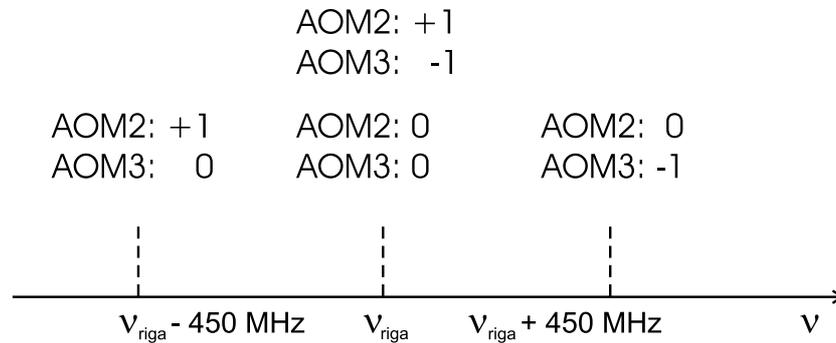
- l'oscilloscopio acquisisce e media un certo numero  $N$  (impostabile) di segnali

CRD,

- finite le  $N$  acquisizioni il programma scarica dall'oscilloscopio la media, azzerla la traccia e mette l'oscilloscopio in attesa di ripartire,
- contemporaneamente il programma cambia posizione alle lamette che si trovano sul doppio passaggio degli AOM,
- riparte l'acquisizione e il programma esegue il fit della traccia scaricata e scrive i risultati in un file.

Ogni ciclo di acquisizione comprende una misura di  $N$  eventi per ogni posizione delle lamette; l'ordine con cui vengono cambiate le lamette è tale da far sì che si misurino quattro valori di  $1/\tau$  corrispondenti a una frequenza che è a -450 MHz, 0 MHz, 0 MHz, +450 MHz rispetto alla frequenza centrale fissata dall'aggancio al *comb* (si veda figura 3.8). L'acquisizione termina quando sono stati fatti un numero di cicli impostati all'avvio del programma.

Un punto critico è il tempo di riarmo del trigger che limita la velocità con cui si possono eseguire le misure, infatti lo strumento impiega circa 12 ms per riarmare il trigger mentre la cavità ha una costante di tempo inferiore. Un'ulteriore problema dell'oscilloscopio è la non perfetta linearità della scala; di questo problema ci siamo accorti quando abbiamo aumentato il segnale rivelato in uscita dalla cavità grazie a varie migliorie effettuate (laser a semiconduttore nuovo, reticolo di diffrazione per separare i laser etc.). Aumentando il segnale siamo arrivati a una condizione in cui gli errori di fit erano limitati dalla digitalizzazione. In figura 3.9 sono mostrati i residui di un fit di due segnali *cavity ring down*; in un caso la traccia è acquisita regolarmente su 8 bit nell'altro è acquisita sfruttando l'opzione *enhanced resolution* dell'oscilloscopio che aumenta virtualmente il numero di bit a discapito del numero di punti campionati. Dalla figura si vede come l'errore sia dato dalla digitalizzazione sulla parte finale del fit dove il se-



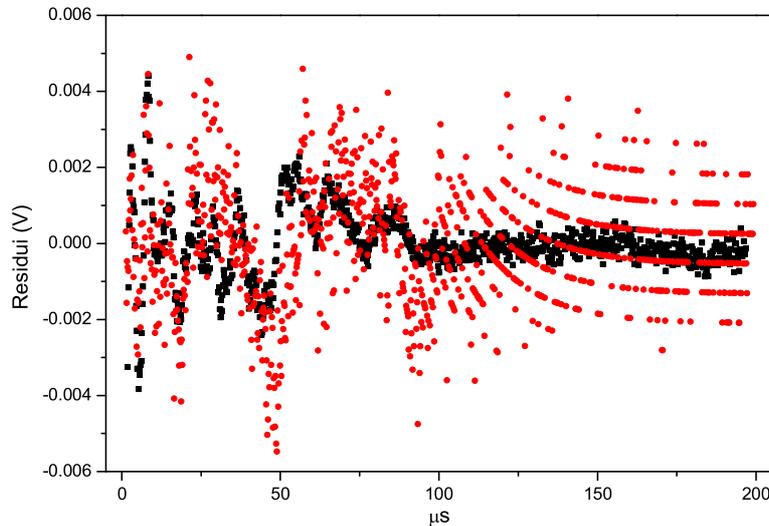
**Figura 3.8:** Schema delle frequenze IR generate in funzione dell'ordine trasmesso dagli AOM che si trovano sul laser Nd:YAG. Per esempio la frequenza  $\nu_{\text{riga}} + 450 \text{ MHz}$  è generata posizionando le lamette in maniera tale da far passare l'ordine 0 e -1 rispettivamente dell'AOM2 e AOM3. La sequenza con cui vengono fatte le misure inizia dalla frequenza più bassa per finire con quella più alta.

gnale va zero. L'oscillazione dei residui nella parte iniziale della traccia è dovuta principalmente alla non linearità della digitalizzazione.

Per eliminare il problema della non linearità abbiamo fatto una taratura dei livelli. Per fare questo abbiamo generato digitalmente una rampa lineare tra -4 e 4 volt con 256 livelli e l'abbiamo acquisita su ogni canale dell'oscilloscopio. Dalla differenza tra la rampa e l'acquisizione abbiamo visto quale è la correzione da applicare a ogni singolo livello. Applicando la correzione si vede che i residui non hanno più le oscillazioni nella parte iniziale della traccia. In figura 3.10 sono confrontati i residui di un fit di un'acquisizione con la correzione della linearità e una senza; si noti la presenza di maggiori oscillazioni nella traccia non corretta.

### 3.3.1 Digitalizzatore a 24 bit

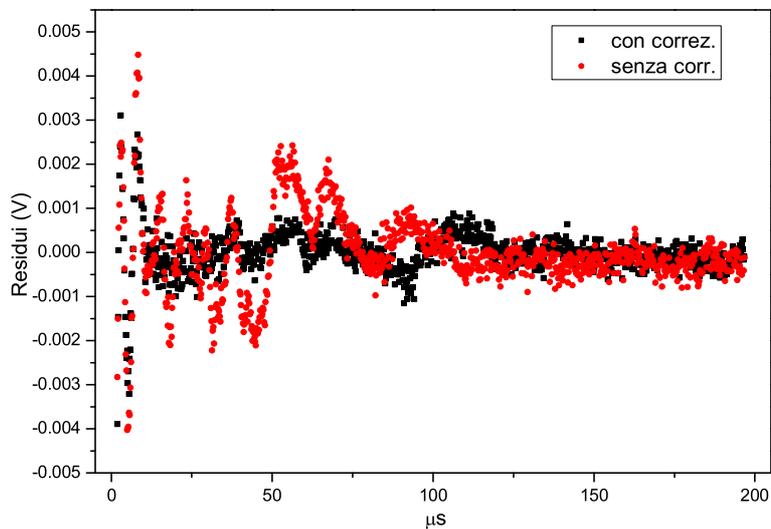
Tutti i vari problemi dell'oscilloscopio sono stati risolti acquistando un nuovo strumento, un digitalizzatore della *National Instruments* a 24 bit con una velocità



**Figura 3.9:** Residui di un fit di un segnale *cavity ring down*. I pallini rossi si riferiscono a una acquisizione normale costituita dalla media di 100 eventi di CRD; i quadrati neri si riferiscono allo stesso tipo di acquisizione ma con la funzione *enhanced resolution* dell'oscilloscopio attiva che aumenta il numero di bit diminuendo il numero di punti acquisiti.

massima di campionamento di 15 MS/s con cui abbiamo sostituito l'oscilloscopio. Con questo nuovo sistema non ci sono più problemi di limiti di digitalizzazione, di linearità e di velocità di acquisizione, perché il tempo di riarmo del trigger è dell'ordine dei  $\mu\text{s}$ .

Lo strumento è stato programmato tramite un programma in *LabVIEW* per lavorare come l'oscilloscopio: quando il segnale raggiunge il livello di trigger esso spegne l'AOM con un segnale TTL e acquisisce la traccia. Inoltre per evitare problemi di sincronia con le acquisizioni abbiamo fatto in modo che sia lo strumento stesso a pilotare le lamette che si trovano sugli ordini diffratti dagli AOM. Il programma che gira sul calcolatore esegue ancora i fit scaricando i dati



**Figura 3.10:** Confronto tra i residui di un fit di un'acquisizione con la correzione dell'errore di non linearità (quadrati neri) e di una senza correzione (pallini rossi).

dal digitalizzatore tramite GPIB. Da sottolineare che la sequenza di acquisizione è rimasta praticamente la stessa.

Per mantenere la compatibilità tra il programma di fit e i dati acquisiti con questo nuovo strumento abbiamo programmato il digitalizzatore per campionare mille punti in  $200 \mu\text{m}$ ; questo comporta una velocità di campionamento di  $5 \text{ MS/s}$  che, per i dati di fabbrica, implica una risoluzione massima di 20 bit. Questa risoluzione è comunque sufficiente ad eliminare il problema della digitalizzazione dovuta all'oscilloscopio che ha solo 8 bit.



# Capitolo 4

## Misure

In questo capitolo vedremo le principali misure effettuate durante lo sviluppo di questo sistema sperimentale. Di fatto l'introduzione di miglioramenti dell'apparato per ottenere una sensibilità sempre più alta ci ha portato di volta in volta a scoprire nuovi difetti che prima non erano rivelabili. Per vedere meglio i progressi fatti di volta in volta, questo capitolo è strutturato in modo praticamente cronologico.

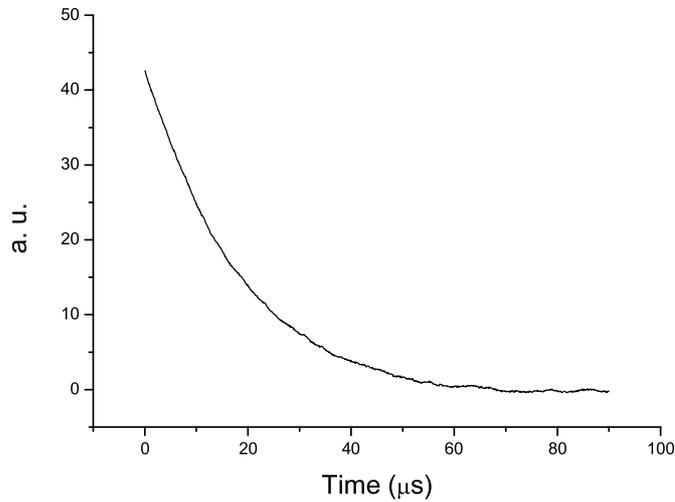
### 4.1 Il tempo di *cavity ring down*

La prima verifica che abbiamo fatto dopo aver montato il set-up sperimentale iniziale è stata la misura della costante di tempo di decadimento ( $\tau_0$ ) della luce in cavità a vuoto, dalla quale si può stimare la finezza. In figura 4.1 è riportata un'acquisizione che è la media di 16 eventi di *cavity ring down*. Tramite un fit con una funzione di decadimento esponenziale data da

$$y = y_0 + Ae^{-\gamma t}$$

dove genericamente

$$\gamma = \frac{1}{\tau}$$



**Figura 4.1:** Tipica acquisizione con la tecnica *cavity ring down*; in questo caso la cella è vuota per la stima della finezza della cavità. Con un fit esponenziale abbiamo stimato  $\tau_0 \approx 18 \mu\text{s}$ .

abbiamo stimato  $\tau_0$  trovando che  $\tau_0 \approx 18 \mu\text{s}$ . Dalle equazioni (1.1)(2.1), trascurando le perdite  $A$  e approssimando  $\sqrt{R} = 1$ , otteniamo che

$$F = \frac{c \pi}{L} \tau_0 \quad (4.1)$$

da cui si ricava che

$$F \approx 17000$$

Conoscendo la finezza è possibile stimare la riflettività degli specchi ( $R$ ) utilizzando l'equazione (2.1) che lega la finezza alla riflettività, il risultato che si ottiene è

$$R \approx 0.99982$$

Sempre dalla finezza possiamo stimare la larghezza FWHM del profilo di Airy per una cavità Fabry-Perot, utilizzando l'equazione (2.2) otteniamo

$$FWHM \approx 9kHz$$

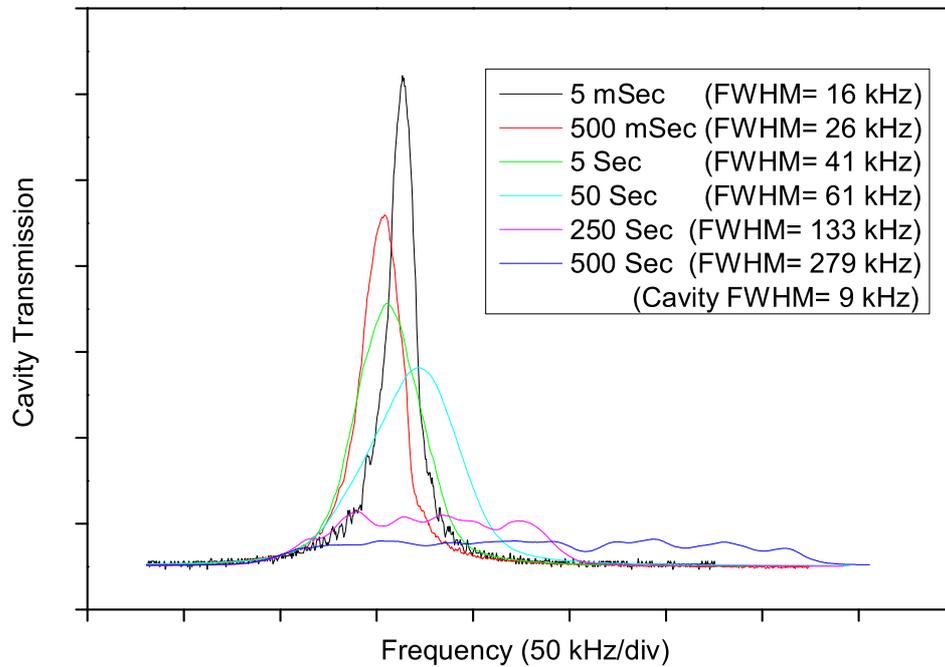
Questi valori sono in accordo con quanto stimato nel pragrafo 2.1.

Il FSR della cavità è stato determinato grazie all'introduzione dell'AOM2, infatti il suo utilizzo permette di cambiare la frequenza della radiazione infrarossa, semplicemente selezionando il modo diffratto che viene accoppiato nella fibra d'ingresso dell'amplificatore. Cambiando il valore della frequenza RF che pilota l'AOM2 in maniera tale da avere la risonanza della cavità con la luce nello stesso punto per ognuno dei due modi, abbiamo fatto sì che la frequenza fosse esattamente  $3/2\text{FSR}$ . Questo ci ha permesso di misurare il FSR della cavità trovando  $\text{FSR}=149.906$  MHz.

#### 4.1.1 Stabilità reciproca tra la radiazione IR e la cavità

Inizialmente l'aggancio in fase dei laser sorgente era fatto indipendentemente al *comb* e questo portava un eccesso di rumore sulla radiazione infrarossa generata. Di fatto non era possibile fare una scansione della cavità e vedere un profilo in trasmissione regolare e l'accoppiamento era molto basso. Con l'introduzione del sistema Telle abbiamo ottenuto una radiazione con una larghezza paragonabile a quella della cavità ottenendo un buon profilo in trasmissione con un buon accoppiamento.

Per avere un'idea della stabilità reciproca fra la cavità e la radiazione infrarossa abbiamo fatto una misura abbastanza semplice: abbiamo messo una modulazione a 20 Hz su i PZT piccoli della cavità e abbiamo mediato su tempi diversi il segnale in trasmissione. Conoscendo il fattore di conversione MHz/V dei PZT abbiamo potuto convertire la scala temporale in frequenza e quindi avere una misura di larghezza. In figura 4.2 sono riportati i profili di trasmissione della cavità mediati su tempi diversi; come si vede dalla traccia mediata su 5 ms la larghezza della curva di risonanza è  $\text{FWHM}=16$  kHz. Se consideriamo che la cavità ha una larghezza di 9 kHz possiamo affermare che su questa scala di tempi



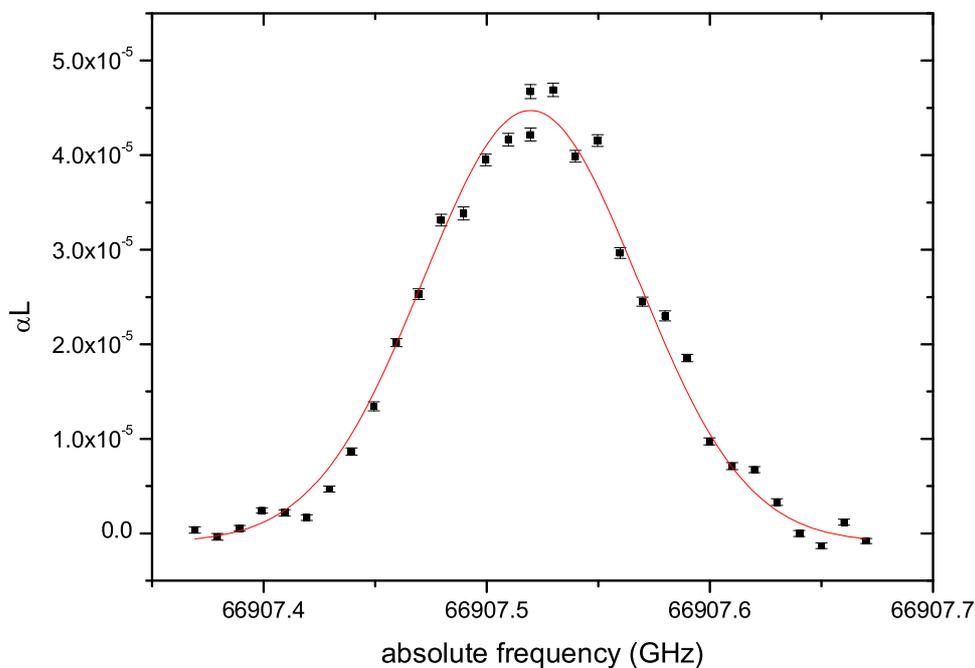
**Figura 4.2:** Profili di trasmissione dalla cavità mediati su tempi diversi.

la larghezza della radiazione IR generata è dell'ordine dei kHz.

## 4.2 Profilo di riga

La prima misura effettuata [50] con questo sistema è stata la registrazione di un profilo di riga di una transizione della molecola di  $^{13}\text{CO}_2$ . Questa misura è stata fatta per verificare la possibilità di avere un riferimento assoluto di frequenza.

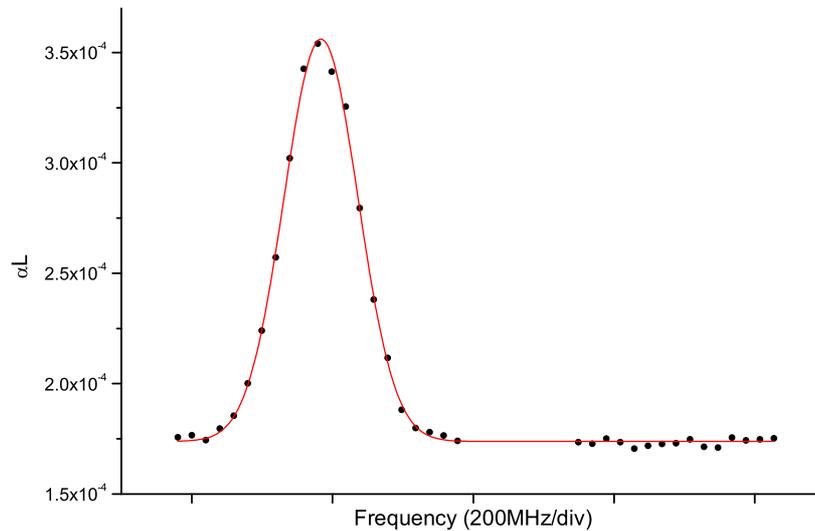
Per avere un'idea di quale possa essere la frequenza di risonanza di una riga di una molecola si sfrutta il database di HITRAN, dopodiché grazie al *comb* è possibile generare una radiazione infrarossa con tale frequenza. Tramite una



**Figura 4.3:** Profilo Doppler della transizione P(44) ( $01^{11} - 01^{10}$ ) della  $^{13}\text{CO}_2$  a  $T=295$  K e  $P=3$   $\mu\text{bar}$ . Nella figura è riportata anche la curva di fit da cui abbiamo determinato  $\sigma nL = 4.57(11) \cdot 10^{-5}$ . Nella scala delle ascisse è riportata la frequenza assoluta misurata con l'*Optical Frequency Comb Synthesizer*.

scansione in frequenza della zona indicata dal database è possibile determinare con buona precisione la frequenza assoluta.

La riga che abbiamo scelto per la misura del profilo è la transizione rotovibrazionale P(44)( $01^{11} - 01^{10}$ ) della molecola di  $^{13}\text{CO}_2$ . In figura 4.3 è riportata la registrazione del profilo di riga dove ogni punto è mediato su 256 eventi corrispondente a 60 secondi di misura. I punti hanno un errore di  $\Delta\tau/\tau_0 \approx 8 \cdot 10^{-3}$  che significa  $(\alpha L)_{min} \approx 10^{-6}$ . Purtroppo mediare per tempi più lunghi non incrementava la sensibilità a causa di variazioni di  $\tau_0$  su tempi lunghi che limita l'errore



**Figura 4.4:** Profilo d'assorbimento di una riga della  $\text{CO}_2$  a una pressione di 10 mbar. Sono riportati anche alcuni punti relativi al fondo a distanza di 450 MHz dai corrispondenti punti sulla riga.

$\Delta\tau/\tau_0 \approx 1\%$ . Per questo motivo abbiamo introdotto nel set-up sperimentale l'AOM2 che ci permette in pochi ms di cambiare la frequenza della radiazione IR di  $3 \cdot \text{FSR} = 450 \text{ MHz}$ , passando così da condizioni di risonanza a non risonanza con la riga. Questo permette di misurare il  $\tau$  in condizioni di assorbimento e non, senza dover cambiare il *repetition rate* ( $\nu_r$ ) dell'OFCS, permettendo di avere una misura di assorbimento su tempi relativamente corti. Un esempio è riportato in figura 4.4 dove per ogni punto sul profilo si vedono i corrispondenti punti distanti 450 MHz.

Eseguendo misure a vuoto abbiamo trovato che su un'ora di misura si ha un errore sulla differenza tale che  $(\alpha L)_{\min} \approx 4.3 \cdot 10^{-8}$ . È stato possibile fare questa misura grazie al *comb*, perché possiamo mantenere stabile la frequenza della radiazione IR generata, permettendoci di mediare su tempi lunghi e fare

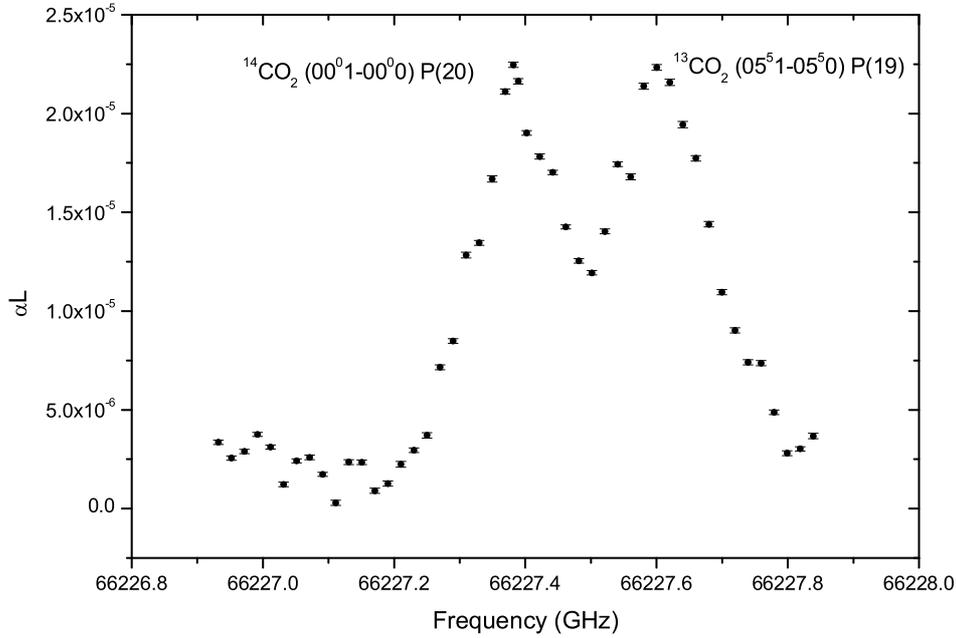
misure a distanza di giorni senza uscire dai limiti di confidenza del riferimento di frequenza.

### 4.3 Primi test su $^{14}\text{CO}_2$

Visto i risultati di sensibilità ottenuti abbiamo pensato di fare delle prove per capire se era possibile rivelare la presenza della molecola di  $^{14}\text{CO}_2$  in abbondanza naturale ( $\sim 10^{-12}$ ). Dai calcoli teorici abbiamo stimato che la transizione  $(00^01 - 00^00)\text{P}(20)$  dovrebbe comportare un assorbimento di  $\alpha L = 3.3 \cdot 10^{-8}$  corrispondente a una variazione di  $\Delta\gamma = \gamma - \gamma_0 = 1/\tau - 1/\tau_0 = 10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$ . La frequenza centrale della riga è stata calcolata mediante l'equazione (1.55) con i coefficienti di tabella 1.4 ottenendo 66227.413 GHz. Sperimentalmente abbiamo trovato che la frequenza della transizione  $(00^01 - 00^00)\text{P}(20)$  della molecola di  $^{14}\text{CO}_2$  si trova a 66227.382 GHz.

Per verificare l'esatta frequenza della riga in questione abbiamo acquistato un piccolo quantitativo di  $\text{CO}_2$  arricchito di un fattore  $10^6$  dell'isotopo  $^{14}\text{CO}_2$  in modo tale da rivelare bene la transizione durante la scansione in frequenza. In questa misura ci siamo accorti che a circa 200 MHz di distanza si trova un'altra riga ( $\text{P}(19)$   $(05^51 - 05^50)$ ) dell'isotopo  $^{13}\text{CO}_2$  che in campioni di gas in abbondanza naturale impedisce una buona rivelazione della transizione  $\text{P}(20)$  aumentando notevolmente il fondo. Questa misura è riportata in figura 4.5, dove si vedono entrambe le righe grazie al campione arricchito. Fortunatamente questa transizione appartiene alla cosiddetta "banda calda" poiché coinvolge un livello non fondamentale e quindi è possibile ridurre la sua intensità raffreddando il gas. Perciò abbiamo realizzato intorno alla cella un contenitore in materiale termoisolante per mantenere la cella immersa nel ghiaccio secco.

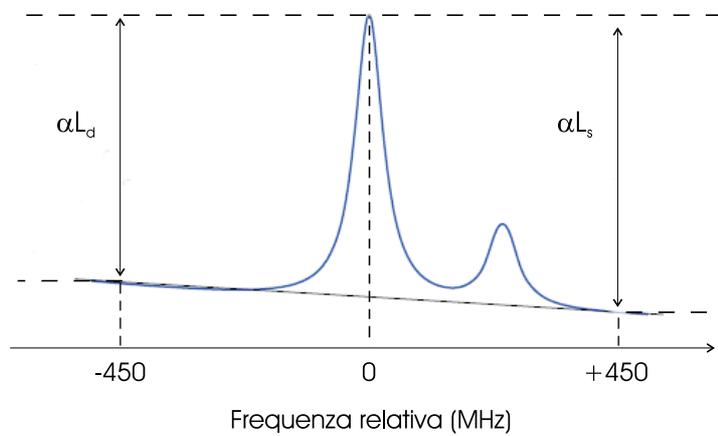
Raffreddando la cella si riesce a ridurre l'effetto (circa un fattore 3000) della transizione  $\text{P}(19)$  ma non si riesce ad eliminarla del tutto. Simulando teoricamen-



**Figura 4.5:** Scansione in frequenza intorno alla riga P(20) (00<sup>0</sup>1 – 00<sup>0</sup>0) del  $^{14}\text{CO}_2$  dove si vede la presenza di un'altra transizione (P(19) 05<sup>5</sup>1 – 05<sup>5</sup>0) dell'isotopo  $^{13}\text{CO}_2$ .  $P = 10\mu\text{bar}$ ,  $T = 295\text{K}$ .

te l'andamento dell'assorbimento in funzione della frequenza abbiamo visto che il fondo ha una leggera pendenza; quindi abbiamo utilizzato una doppia misura in differenza per determinare l'assorbimento da parte della riga del  $^{14}\text{CO}_2$ . Praticamente si misurano i  $\tau$  corrispondenti a 3 frequenze distinte, una sul massimo di assorbimento della P(20) e le altre due a 450 MHz di distanza simmetricamente dal picco. Quindi si hanno due misure di assorbanza relative al fondo di destra ( $\alpha L_d$ ) e di sinistra ( $\alpha L_s$ ) della riga, come descritto nello schema di figura 4.6. Ipotizzando un fondo con andamento lineare<sup>1</sup> si può ricavare l'assorbanza

<sup>1</sup>questa ipotesi è lecita, essendo sufficientemente lontani dal picco di assorbimento delle due



**Figura 4.6:** Schema delle acquisizioni per la rivelazione dell'assorbimento della riga P(20) della  $^{14}\text{CO}_2$ .

relativa al picco semplicemente mediando i due risultati precedenti

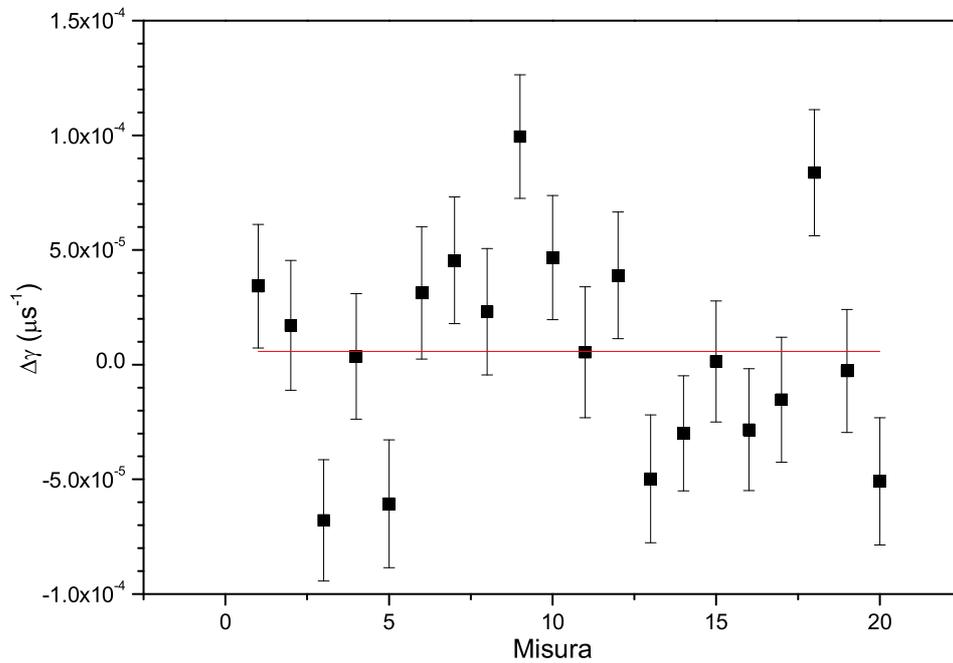
$$\alpha L = \frac{\alpha L_d + \alpha L_s}{2} \quad (4.2)$$

così facendo eliminiamo il contributo della pendenza del fondo.

Abbiamo fatto una misura di prova composta da 20 acquisizioni del tipo descritto sopra dove ogni acquisizione è composta da 2048 differenze (1024 a destra e 1024 a sinistra) e ha una durata di circa 10 minuti compreso il tempo necessario per cambiare il *repetition rate* del *comb*. Infatti la misura veniva fatta ciclicamente nel seguente modo: si imposta  $\nu_r$  in modo tale che la frequenza IR generata con il modo zero dell'AOM sia quella risonante con il centro riga e si fanno 1024 acquisizioni per modo. Finita l'acquisizione delle differenze a destra si cambia il *repetition rate* in modo che la frequenza IR risonante con la riga è quella generata con l'ordine +1, acquisendo 1024 differenze a sinistra. In figura 4.7 sono riportate le misure di  $\Delta\gamma$  calcolate tramite l'equazione 4.2 con le rispettive barre

---

righe



**Figura 4.7:** Misura di prova per la rivelazione dell'assorbimento della riga P(20) della  $^{14}\text{CO}_2$ . Le acquisizioni sono state fatte con gas in abbondanza naturale a  $T=195$  K e  $P=10$  mbar. Il valore che si ricava dal fit con una costante è  $\Delta\gamma = (6 \pm 10) \cdot 10^{-6} \mu s^{-1}$ .

d'errore. Dal fit di tali valori con una costante si trova che la loro media è

$$\Delta\gamma = (6 \pm 10) \cdot 10^{-6} \mu s^{-1}$$

La misura è affetta da un errore che è pari alla quantità da misurare, purtroppo questo è dovuto alla grossa differenza che c'è tra una misura e l'altra. Infatti come si vede dalla figura 4.7 c'è uno scarto di maggiore di  $10^{-4} \mu s^{-1}$  tra alcune misure. Abbiamo pensato che questo problema fosse dovuto al fatto che per cambiare tra differenza a destra e sinistra intercorresse troppo tempo. Di fatto dovevamo sganciare i laser, cambiare il *repetition rate* e poi riagganciarli

per far sì che la frequenza dell'ordine zero fosse spostata di 450 MHz. Questa ipotesi era anche accreditata dal fatto che facendo misure a vuoto le differenze non venivano mediate a zero entro l'errore mantenendo una certa discrepanza tra una misura e l'altra.

## 4.4 Misure con 2 AOM su Nd:YAG

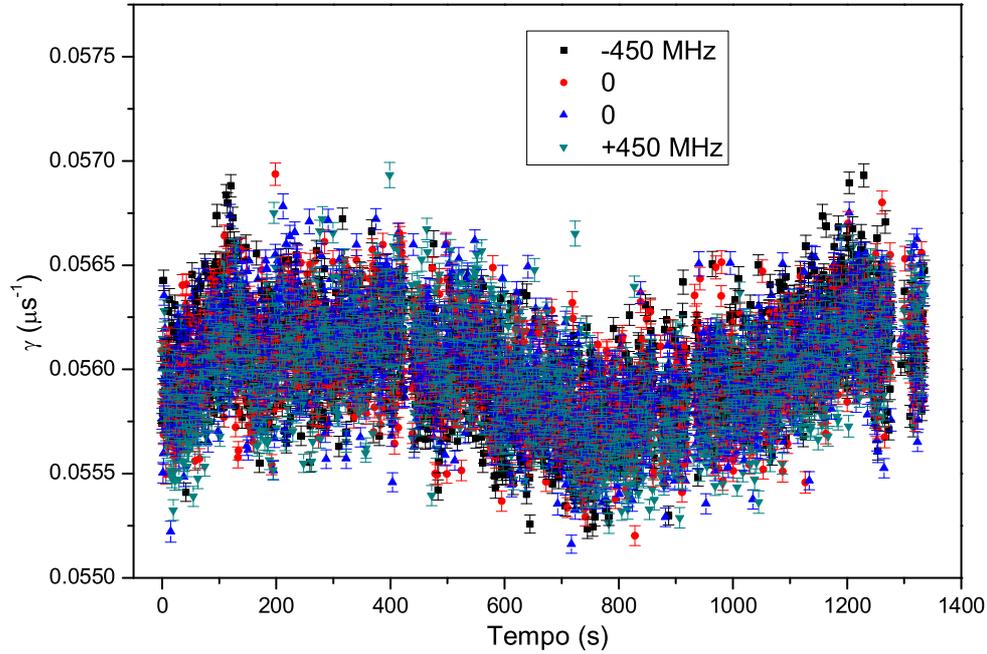
Per eliminare il problema di dover cambiare il *repetition rate* del *comb* per passare da destra a sinistra abbiamo aggiunto un altro AOM in doppio passaggio sul laser Nd:YAG, in questo modo possiamo passare rapidamente da una frequenza all'altra (come descritto nella figura 3.8) semplicemente cambiando la posizione della lametta che si trova sui fasci diffratti (vedi figura 2.10). Questo ci ha permesso di fare misure ravvicinate nel tempo; il tempo minimo è determinato da quanto ci mette la lametta a cambiare posizione ed è dell'ordine di 20 ms.

L'introduzione del secondo AOM sul laser Nd:YAG è importante perché abbiamo visto che il valore di  $\tau$  cambia sensibilmente nel tempo, quindi è importante confrontare i valori acquisiti su frequenze diverse in tempi relativamente brevi. In figura 4.8 sono riportate 1500 misure di  $\gamma$  per ogni frequenza fatte a cella vuota e a temperatura ambiente in funzione del tempo di acquisizione<sup>2</sup>. Si noti come ci sia una variazione del valor medio dell'ordine del 1% su scale di tempi dell'ordine di  $5 \cdot 10^2$  secondi.

Facendo misure ravvicinate nel tempo (dell'ordine dei millisecondi) si riesce ad eliminare la variazione su tempi lunghi del valore di  $\gamma$ . In figura 4.9 sono riportate le misure di  $\Delta\gamma$  calcolate utilizzando sempre la (4.2) a temperatura ambiente e a cella vuota per testare il sistema dei due AOM. Dal test si evince

---

<sup>2</sup>Da precisare che d'ora in avanti, per rendere meno pesante la lettura è stato omesso il pedice 0 a  $\gamma$ , il quale indica misure effettuate a cella vuota; questo perché le misure riportate per il resto del capitolo sono tutte a cella vuota.

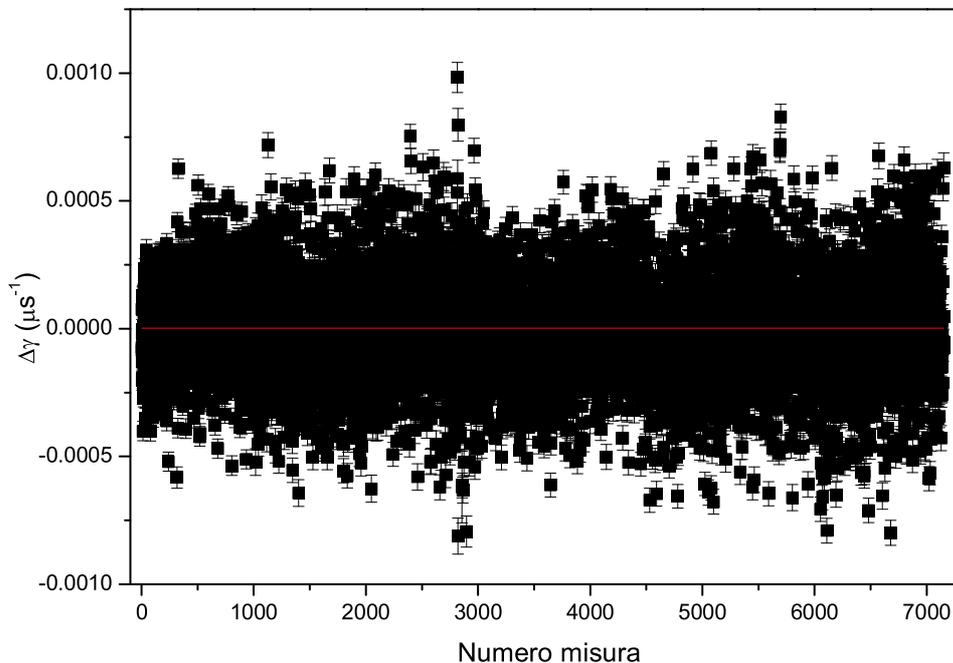


**Figura 4.8:** Misura di  $\gamma$  in funzione del tempo di acquisizione, ogni punto è il fit della media di 128 acquisizioni di *cavity ring down* con la sua barra d'errore; l'ascissa di ogni valore si riferisce al momento in cui è stata acquisita la traccia mediata. Sono riportate le misure per tutti e quattro i modi di generazione di radiazione IR; la misura è stata fatta a temperatura ambiente e a cella vuota.

che l'introduzione del secondo AOM ha effettivamente ridotto sulla misura di  $\Delta\gamma$  le variazioni dovute ad acquisizioni su tempi lunghi. Tramite un fit con una costante abbiamo trovato

$$\Delta\gamma = (3 \pm 2) \cdot 10^{-6} \mu s^{-1}$$

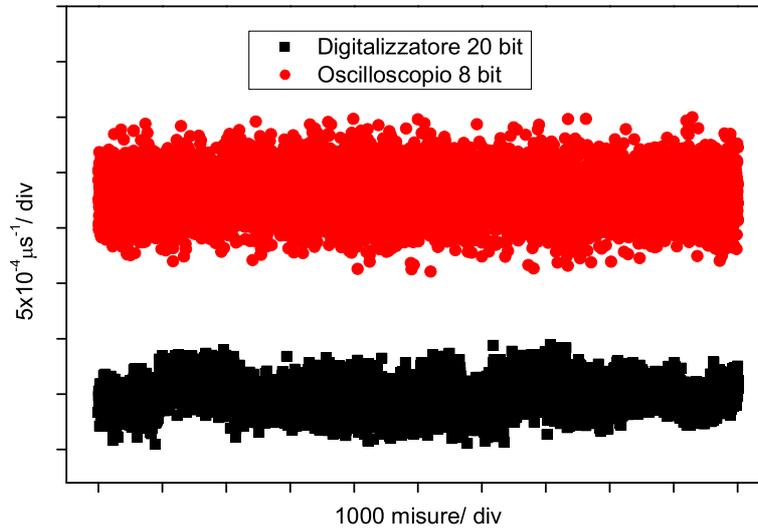
Con il sistema dei due modulatori abbiamo ridotto il problema della variazione di  $\gamma$  nel tempo, ma come si evince dalla misura di test non è stato eliminato del tutto perché il valore di  $\Delta\gamma$  a vuoto non è nullo entro l'errore. Ripetendo



**Figura 4.9:** 7200 misure di  $\Delta\gamma$ , ogni punto è calcolato mediante la (4.2) utilizzando valori di  $\gamma$  dati dal fit della media di 128 acquisizioni di *cavity ring down* sulle varie frequenze. La misura è stata fatta a temperatura ambiente e a cella vuota. Dal fit (linea rossa) con una costante abbiamo trovato  $\Delta\gamma = (3 \pm 2) \cdot 10^{-6} \mu\text{s}^{-1}$ .

altre serie di misure test a vuoto abbiamo visto che il valore di  $\Delta\gamma$  ricavato dal fit varia da una misura all'altra di circa un fattore  $2 \cdot 10^{-5}$ . Questo purtroppo limita la nostra sensibilità anche se l'errore sulla singola misura è più piccolo di un ordine di grandezza.

Con l'introduzione del digitalizzatore per acquisire i dati (si veda paragrafo 3.3.1) al posto dell'oscilloscopio abbiamo diminuito il tempo morto tra una misura e l'altra, questo ha permesso di ridurre sensibilmente la differenza tra le misure



**Figura 4.10:** Confronto tra i dati acquisiti con l'oscilloscopio (pallini rossi) e i dati acquisiti con il digitalizzatore (quadrati neri). I valori riportati sono i  $\Delta\gamma$ , i dati acquisiti con l'oscilloscopio sono stati volutamente spostati verso l'alto di  $2 \cdot 10^{-3} \mu\text{s}^{-1}$  per distinguerli dagli altri.

sulla stessa frequenza. Dallo stesso tipo di misura test descritta precedentemente, abbiamo visto che anche nei valori di  $\Delta\gamma$  c'è una variazione nel tempo per quanto riguarda il valor medio (che idealmente dovrebbe essere zero). Di fatto questo andamento è coperto dalle più grosse fluttuazioni che ci sono nell'acquisire con l'oscilloscopio e solo con un sistema più veloce poteva essere individuato. In figura 4.10 è riportato il confronto tra i valori di  $\Delta 1/\tau$  acquisiti con il digitalizzatore e quelli con l'oscilloscopio dove si vede chiaramente la differenza fra i due sistemi di raccolta dati. Questo spiega il motivo per cui facendo misure a vuoto in tempi diversi si ottengono valori di  $\Delta\gamma$  diversi fra loro di una quantità dell'ordine di  $10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$ .

## 4.5 Cambio degli specchi ad alta riflettività

Tutte le misure descritte finora sono state fatte con una coppia di specchi di silicio. Questo spiega l'importanza di un paragrafo a parte dedicato alla nuova coppia di specchi ad alta riflettività, che compongono tutt'ora la cavità ad alta finezza. La differenza principale tra i nuovi specchi e i vecchi è che hanno un substrato di seleniuro di zinco (ZnSe) anziché di silicio, che risulta trasparente al visibile; mentre per quanto riguarda caratteristiche come il raggio di curvatura e altre dimensioni geometriche non è cambiato niente.

La trasparenza al visibile è molto importante per l'allineamento della cavità perché, a differenza dei precedenti specchi, si riesce a vedere la trasmissione di un laser di prova a HeNe che ha una lunghezza d'onda nel visibile ( $\lambda_{HeNe} = 632.8 \text{ nm}$ ). Questo permette di allineare la cavità guardando il segnale sul laser HeNe preventivamente sovrapposto alla radiazione infrarossa; anche se la finezza a 632.8 nm è molto bassa si riesce comunque ad avere un profilo di risonanza da poter ottimizzare. Dopodichè basta mandare la radiazione IR e finire l'allineamento ad alta finezza. Questo con i precedenti specchi non era stato possibile farlo a causa del substrato non trasparente al visibile rendendo molto più complicato l'allineamento.

I nuovi specchi hanno una riflettività leggermente minore rispetto ai precedenti ma hanno significativamente aumentato il segnale in trasmissione grazie a minori perdite. Questo ci ha permesso di arrivare ad avere un rapporto segnale rumore tale da ottenere un errore di  $3 \cdot 10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$  sul fit del singolo evento di *cavity ring down*.

### 4.5.1 Misura dell'accoppiamento

Nel paragrafo 3.2.1 abbiamo visto come stimare l'accoppiamento della radiazione infrarossa con la cavità, dove è riportato anche l'accoppiamento misurato con i

vecchi specchi. Qui vedremo brevemente i risultati ottenuti con i nuovi specchi.

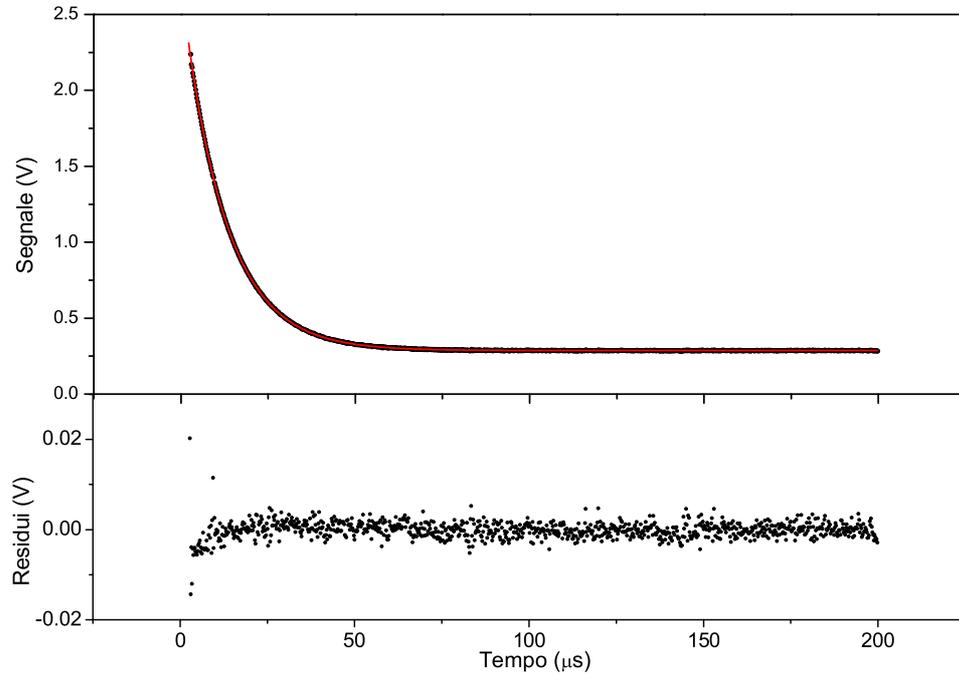
Una volta allineata la cavità abbiamo subito notato un grosso miglioramento dal punto di vista dell'accoppiamento e della radiazione IR trasmessa, di fatto la radiazione in trasmissione era tale da saturare l'amplificatore. Facendo una stima a potenze IR più basse rispetto a quelle di lavoro abbiamo visto che dovevamo ridurre di un fattore 5 il guadagno dell'amplificatore sul rivelatore in trasmissione (paragrafo 2.6). Quello che abbiamo fatto è stato di ridurre di un fattore 2 il guadagno del primo stadio di preamplificazione e di un fattore 2.5 il secondo stadio proporzionale. Nel caso del preamplificatore abbiamo dovuto cambiare anche il condensatore, i nuovi valori per  $R_F$  e  $C_F$  sono  $R_F=33.2$  k $\Omega$  e  $C_F=3.3$  pF.

Per misurare l'accoppiamento abbiamo utilizzato le equazioni (3.14) e (3.15) che sono legate rispettivamente all'intensità trasmessa e riflessa. Nelle equazioni compaiono i parametri  $\beta$  e  $\epsilon$  che sono legati rispettivamente alla riflettività degli specchi e alla sovrapposizione tra il modo spaziale della cavità e quello della radiazione infrarossa. Le percentuali di luce riflessa e trasmessa in condizioni ottimali sono rispettivamente 25% e 35%, con questi valori si ottiene

$$\epsilon = 0.86$$

$$\beta = 0.36$$

Quello che si deduce da questa misura è che questi specchi hanno un minor rapporto perdita-trasmissione rispetto ai precedenti, ma soprattutto, abbiamo un ottimo accoppiamento fra il modo spaziale della cavità e quello della radiazione IR. Questo ci ha permesso di avere una maggiore potenza in trasmissione aumentando il rapporto segnale rumore.



**Figura 4.11:** Singolo CRD a vuoto (pallini neri) e corrispondente fit con un decadimento esponenziale (linea rossa); in basso sono riportati i residui del fit. Il risultato del fit fornisce un valore di  $\gamma = (0.08102 \pm 3 \cdot 10^{-5}) \mu s^{-1}$ .

#### 4.5.2 Caratteristiche della cavità

Come abbiamo già visto un dato fondamentale per la tecnica *cavity ring down* è la misura del tempo di decadimento a vuoto  $\tau_0$ , da cui si ricava la finezza della cavità. In figura 4.11 è riportata l'acquisizione di un singolo evento di *cavity ring down* con relativo fit da cui abbiamo ricavato il valore di  $\gamma$ ; per completezza sono riportati anche i corrispondenti residui. Dal fit si ottiene

$$\gamma = (0.08102 \pm 3 \cdot 10^{-5}) \mu s^{-1} \quad (4.3)$$

Si deve notare che l'errore che si ottiene sul fit di un singolo evento di *cavity*

parametro	specchi nuovi	specchi vecchi
R	0.99973	0.99982
$\beta$	0.36	0.82
$\epsilon$	0.86	0.36
$\tau_0$ ( $\mu\text{s}$ )	12.3	18.0
$F$	11600	17000
$FWHM$ (kHz)	13	9

**Tabella 4.1:** Caratteristiche della cavità in funzione delle due coppie di specchi utilizzati.

*ring down* è dell'ordine di grandezza di  $10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$ ; con i vecchi specchi questo ordine di grandezza si otteneva mediando 128 eventi.

Dalla (4.3) si ha che  $\tau_0 \approx 12.3 \mu\text{s}$  e utilizzando la (4.1) si ha che la finezza della cavità è

$$F \approx 11600$$

Come abbiamo già visto, dalla finezza è possibile stimare la riflettività degli specchi (R) mediante l'equazione (2.1), il risultato è

$$R \approx 0.99973$$

Inoltre si può anche stimare la larghezza a metà altezza (FWHM) del profilo di Airy, che è data dal rapporto fra *free spectral range* e la finezza

$$FWHM = \frac{FSR}{F} \approx 13 \text{ kHz}$$

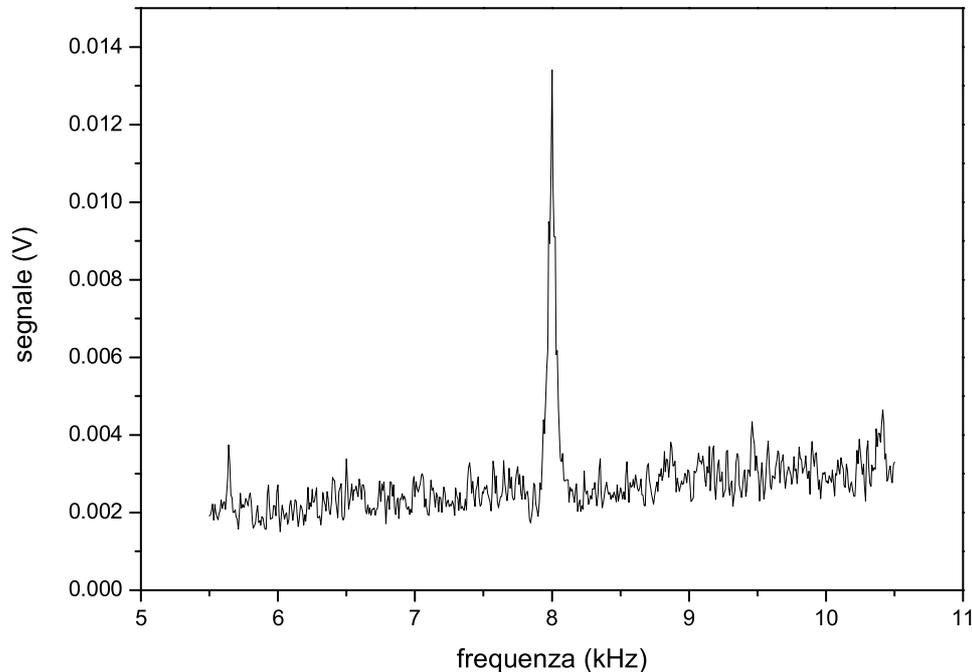
Confrontando i dati relativi alle caratteristiche degli specchi (tabella 4.1) si vede che con gli specchi nuovi abbiamo perso un fattore 1.5 per quanto riguarda la finezza della cavità ma abbiamo guadagnato un fattore 2.4 e 2.3 per quanto riguarda accoppiamento ( $\epsilon$ ) e perdite ( $\beta$ ). Questo, come già detto ci ha permesso di aumentare notevolmente il segnale in trasmissione.

## 4.6 Caratteristiche spettrali della radiazione IR

Nel paragrafo 2.5 abbiamo visto come i laser sorgente siano riferiti all'*Optical Frequency Comb Synthesizer*, strumento che fornisce un riferimento assoluto di frequenza con una stabilità dell'ordine di  $6 \cdot 10^{-13}$  su un secondo, permettendoci di avere un riferimento accurato negli anni. Di conseguenza anche la radiazione infrarossa generata per differenza di frequenza gode di queste proprietà. Per quanto riguarda la larghezza intrinseca della radiazione IR, abbiamo visto che è proporzionale alla frequenza del laser Nd:YAG mediante l'equazione (2.22); questo per merito del sistema Telle di aggancio in fase. Il fattore di proporzionalità è circa  $n/m - 1 = 0.235$ ; questo significa che la larghezza intrinseca della radiazione IR è più piccola di circa quattro volte di quella del Nd:YAG.

Per verificare se effettivamente la frequenza della radiazione IR ha un rumore che è un quarto di quello del laser Nd:YAG abbiamo aggiunto una modulazione in frequenza al laser e abbiamo misurato la corrispondente modulazione sul IR verificandone la riduzione di circa quattro volte.

La modulazione che abbiamo aggiunto sul laser è di circa 2 kHz picco-picco a una frequenza di 8 kHz. Questo valore è stato stimato misurando l'oscillazione della nota di battimento tra Nd:YAG e *comb*. Utilizzando al cavità come discriminante per passare da rumore di frequenza a rumore di ampiezza abbiamo potuto vedere quanto è la modulazione sulla radiazione IR. Per usare la cavità come discriminante è sufficiente mettere la luce in risonanza a metà del profilo di trasmissione in maniera tale da essere sul massimo si pendenza ampiezza-frequenza. Per conoscere il fattore di conversione abbiamo diviso la larghezza in frequenza della cavità per il segnale massimo trasmesso, ottenendo  $p=0.1$  V/kHz. Con un analizzatore di spettro abbiamo acquisito il segnale trasmesso ottenendo dei picchi di rumore a 8 kHz come mostrato in figura 4.12. Dal valore di tensione che abbiamo sul picco a 8 kHz ( $\approx 13.5$  mV) abbiamo ricavato il valore della



**Figura 4.12:** Spettro del segnale in trasmissione dalla cavità con una modulazione di frequenza sul laser Nd:YAG di 2 kHz picco-picco a una frequenza di 8 kHz.

modulazione in frequenza che si ha sulla radiazione IR. Bisogna sottolineare che il valore di tensione fornito dall'analizzatore è il valore efficace quindi si deve tenere conto di un fattore  $2\sqrt{2}$  per riportarlo in ampiezza picco-picco. Quindi si ha che la modulazione di frequenza picco-picco sulla radiazione IR è

$$mod_{IR} = \frac{0.0135}{p} 2\sqrt{2} = 0.38 \text{ kHz}$$

Questo valore è leggermente più piccolo di quello che si ricava utilizzando il fattore di proporzionalità tra radiazione IR e laser Nd:YAG ma si spiega tenendo presente che la stima della modulazione di partenza è stata fatta grossolanamente. Di fatto il dato importante di questa misura è l'ordine di grandezza per verificare

la validità dell'aggancio in fase col metodo Telle; cosa ampiamente dimostrata da questa prova. Per completezza sono state fatte altre prove con frequenze diverse riscontrando sempre lo stesso tipo di risultato.

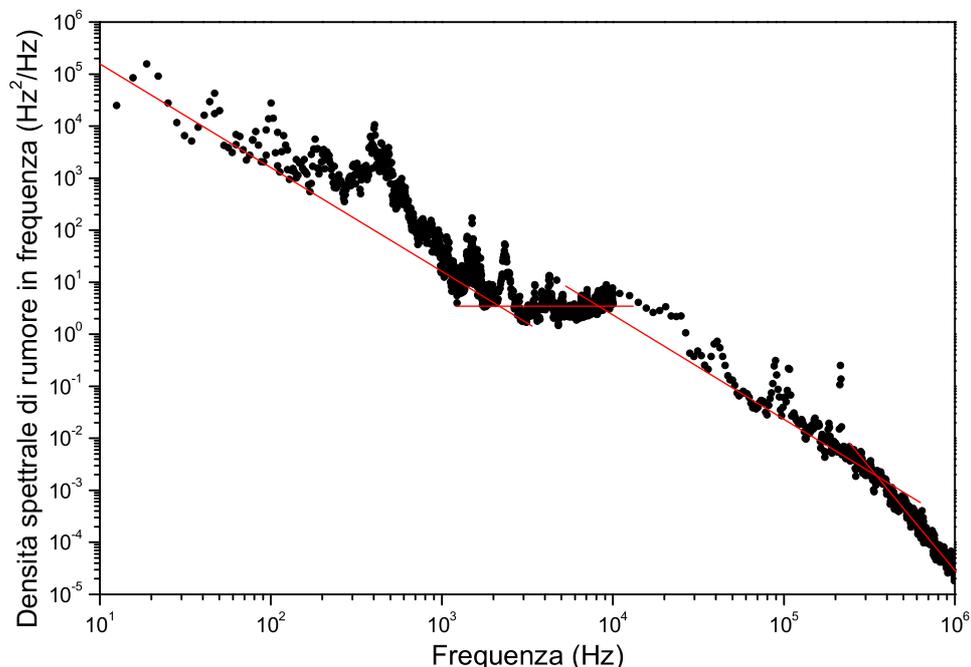
La dimostrazione del funzionamento del metodo Telle implica che la larghezza intrinseca della radiazione generata per differenza di frequenza è circa un fattore quattro più piccola di quella del laser Nd:YAG. In letteratura si trovano molti lavori [51, 52] in cui è stata misurata la larghezza di questi tipi di laser e risulta dell'ordine di Hz.

Oltre alla verifica della validità del metodo di Telle abbiamo fatto una misura della densità spettrale di rumore utilizzando sempre la cavità come discriminante frequenza-ampiezza. Come prima abbiamo utilizzato il parametro  $p$  per convertire il segnale acquisito in rumore di frequenza. Da questo tipo di misura si evince che la larghezza intrinseca della radiazione IR è dell'ordine di 10 Hz; infatti abbiamo che il punto in cui il rumore diventa bianco coincide con una densità spettrale di pochi  $\text{Hz}^2/\text{Hz}$ . In figura 4.13 è riportata tale misura dove sono evidenziate le regioni di rumore  $1/f$  ( $\nu < 2 \text{ kHz}$ ), rumore bianco ( $2 \text{ kHz} < \nu < 10 \text{ kHz}$ ), il taglio della cavità che si comporta da filtro passa basso ( $10 \text{ kHz} < \nu < 400 \text{ kHz}$ ) e infine il taglio dovuto alla risposta del rivelatore ( $\nu > 400 \text{ kHz}$ ).

## 4.7 Sensibilità

Prima di cambiare gli specchi avevamo visto che c'era una piccola oscillazione del valor medio di  $\Delta\gamma$  (figura 4.10) che limitava la nostra sensibilità. Inoltre per avere un errore dell'ordine di  $10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$  avevamo bisogno di mediare almeno 128 eventi di *cavity ring down*. Con il cambio degli specchi abbiamo avuto un aumento di segnale che, come già detto, ci ha permesso di avere un errore dell'ordine di  $10^{-5} \mu\text{s}$  sulla singola misura.

Per verificare la sensibilità del nostro strumento abbiamo fatto una serie di



**Figura 4.13:** Densità spettrale di rumore in frequenza della radiazione infrarossa generata per differenza. Il grafico è composto dalla sovrapposizione di tre acquisizioni distinte con differenti span: 2 kHz, 10 kHz e 1 MHz.

misure a vuoto e a temperatura ambiente. Quello che abbiamo trovato è che mediamente l'errore sul singolo evento di *cavity ring down* è di  $4 \cdot 10^{-5} \mu\text{s}^{-1}$ ; considerando che questo valore viene determinato in  $100 \mu\text{s}$  di misura<sup>3</sup>, questo porterebbe ad avere una sensibilità di assorbimento sul secondo di  $1.3 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-\frac{1}{2}}$ . Purtroppo questo non coincide con la pratica e di fatto abbiamo che facendo

---

<sup>3</sup>abbiamo cambiato il rate di acquisizione passando da 5 MS/s a 10 MS/s e mantenendo costante a 1000 il numero di punti campionati; questo per limitare la campionatura sulla coda del decadimento e limitare l'intervallo di tempo tra un decadimento e l'altro.

misure mediate sul secondo si ha una sensibilità di

$$3 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-\frac{1}{2}}$$

che corrisponde a un valore minimo rivelabile su un secondo di  $\alpha\ell = 3 \cdot 10^{-7}$ . Quello che abbiamo visto con misure su tempi lunghi (dell'ordine dei minuti) è che l'errore sulla media si abbassa in maniera inversamente proporzionale alla radice del numero di misure fatte, ma la media ha delle fluttuazioni che non permettono di scendere sotto il limite di sensibilità indicato precedentemente.

Il valore di sensibilità ottenuto permette di rivelare con un buon rapporto segnale rumore, tutti gli isotopi stabili della  $\text{CO}_2$  (si veda figura 6.1); purtroppo non è sufficiente per quanto riguarda l'isotopo  $^{14}\text{CO}_2$  e stiamo cercando le cause delle variazioni che limitano la nostra sensibilità.



# Capitolo 5

## Studio di nuove sorgenti IR

Attualmente il nostro sistema di generazione di frequenza differenza permette di avere una radiazione relativamente stretta per essere accoppiata in una cavità ad alta finezza; una lacuna del nostro sistema è la scarsa potenza generata. Tra le varie sorgenti IR stiamo studiando i laser a cascata quantica (QCL) [8] che attualmente hanno potenze di qualche mW nella regione di nostro interesse; inoltre sono già stati utilizzati per fare spettroscopia ad alta sensibilità [53, 54, 55]. Di fatto abbiamo già dimostrato la possibilità di riferirlo al *comb* tramite una conversione di frequenza in un cristallo non lineare [56], praticamente si genera una frequenza somma intorno a 850 nm inviando la radiazione del QCL e quella del laser Nd:YAG in un cristallo PPLN. Inoltre abbiamo studiato la possibilità di agganciarlo debolmente al Lamb *dip* di saturazione di una transizione della molecola di CO<sub>2</sub> [57]. Il problema del laser QCL è la sua larghezza che ne impedisce l'accoppiamento nella cavità ad alta finezza. Stiamo quindi studiando la possibilità di stabilizzare la frequenza del laser con un aggancio forte.

Un'altra possibilità che abbiamo studiato per avere una sorgente IR stretta è quella di aumentare la potenza del laser a 860 nm; per questo abbiamo realizzato la generazione di frequenza differenza all'interno di una cavità laser a Ti:Zaffiro. Questo permette di avere un'alta potenza di *pump* con una sorgente stretta,

inoltre visto la grande banda di guadagno del mezzo attivo possiamo generare un ampio range di frequenze.

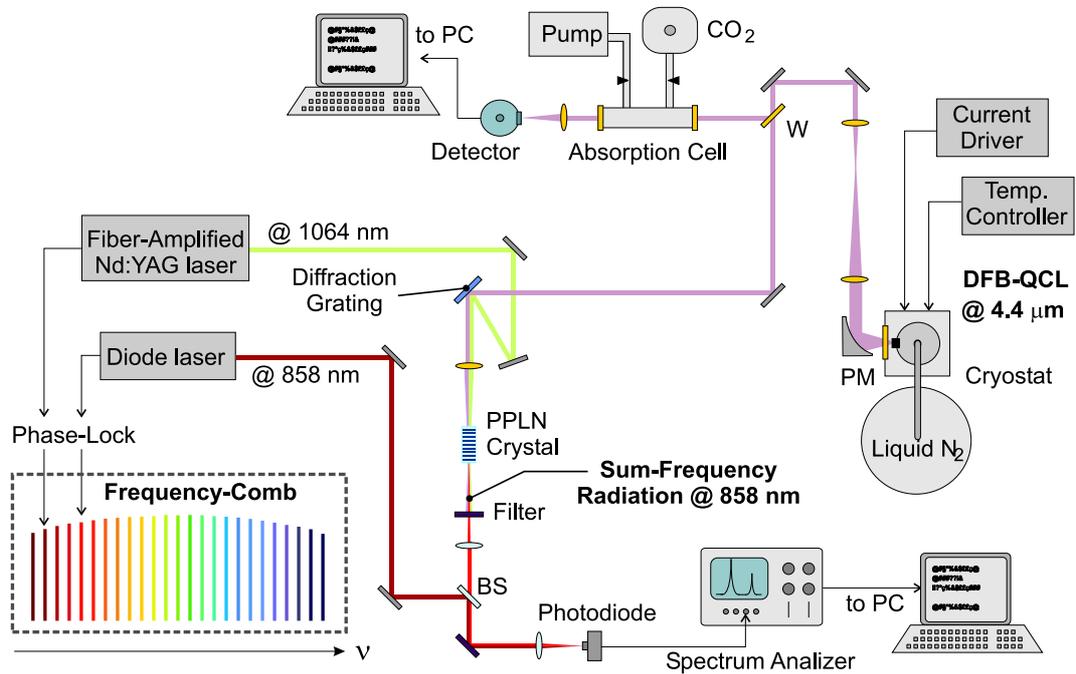
## 5.1 Laser QCL

Il nostro laser a cascata quantica è un laser in continua DFB (*distributed feedback*) della Alpes Laser raffreddato all'azoto liquido. Per mantenere la temperatura di esercizio il laser è stato alloggiato in un criostato a flusso continuo. A causa della forte divergenza che ha il QCL, per collimare la radiazione è necessario utilizzare uno specchio parabolico di corta focale posizionato nelle immediate vicinanze del punto di uscita del laser.

Per riferire il QCL al *Optical Frequency Comb Synthesizer* abbiamo utilizzato il processo di generazione di frequenza somma (SFG) in un cristallo PPLN tra il laser QCL a 4430 nm e il laser Nd:YAG a 1064 nm agganciato in fase al *comb*. Questo permette di avere una frequenza a 858 nm che può essere misurata tramite un battimento con il corrispondente dente del *comb*. Per avere un buon rapporto segnale rumore il battimento è stato fatto tra la radiazione generata e un laser a semiconduttore in cavità estesa agganciato al *comb*. Indichiamo con  $\Delta\nu_{S-D}$  il battimento SFG-diodo e con  $\nu_{QCL}$ ,  $\nu_D$ ,  $\nu_Y$  rispettivamente, le frequenze dei laser QCL, Diodo e Nd:YAG; è facile verificare che la frequenza assoluta del QCL è data da

$$\nu_{QCL} = \nu_D - \nu_Y + \Delta\nu_{S-D} \quad (5.1)$$

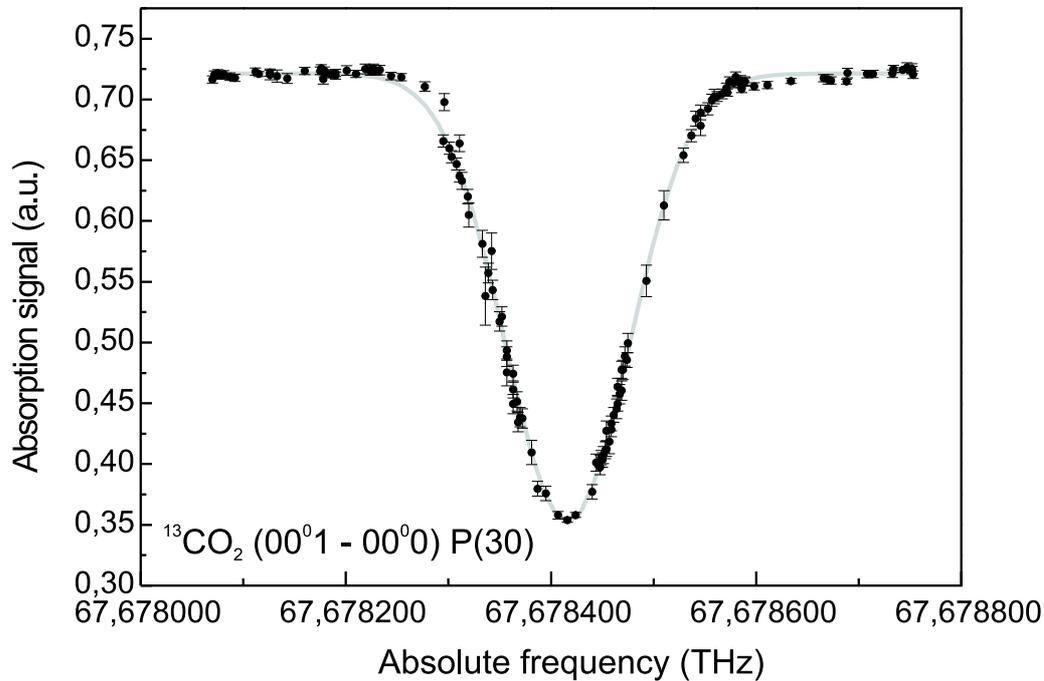
dove la frequenza del battimento è considerata positiva. Conoscendo le frequenze assolute dei laser agganciati al *comb* e misurando la frequenza del battimento con un analizzatore di spettro riferito al segnale a 10 MHz, dall'equazione 5.1 possiamo ricavare la frequenza assoluta del laser QCL. In figura 5.1 è riportato lo schema sperimentale per misurare la frequenza assoluta del laser QCL. Il laser dopo essere stato collimato con lo specchio parabolico PM viene mandato su una



**Figura 5.1:** Schema del set-up sperimentale per la misura della frequenza assoluta del laser a cascata quantica.

cella a tenuta dove viene immesso del gas per fare spettroscopia in assorbimento diretto. Una porzione di luce ( $\sim 2$  mW) viene sovrapposta mediante un reticolo di diffrazione alla radiazione a 1064 nm ( $\sim 1.2$  W) per la generazione della frequenza somma ( $\sim 10$   $\mu$ W) nel cristallo PPLN. La luce generata viene filtrata dalle sorgenti e poi, tramite un cubo polarizzatore, sovrapposta alla radiazione a 858 nm per fare il battimento in un fotodiode a valanga.

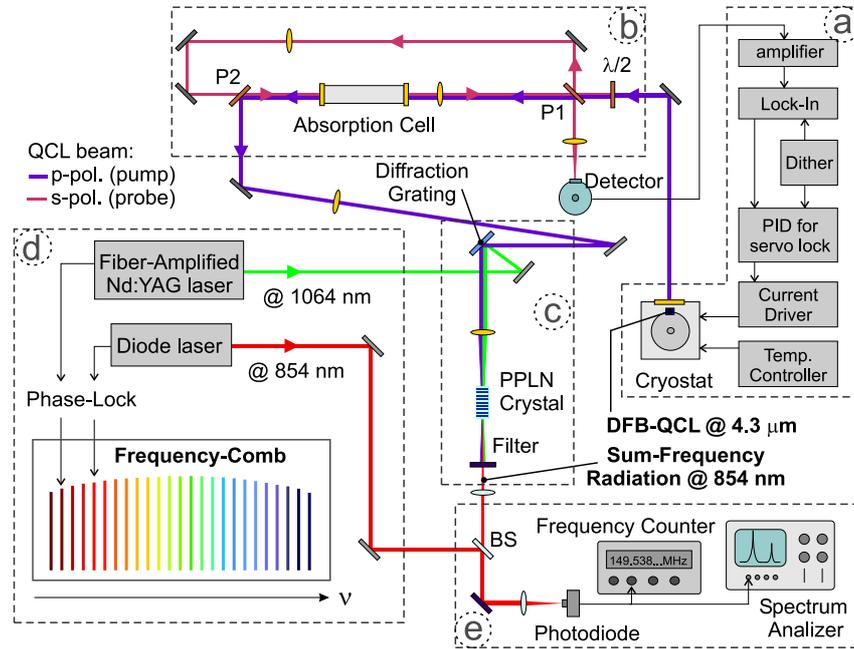
Il laser riferito al *comb* è stato utilizzato per una misura della frequenza assoluta della transizione  $(00^01 - 00^00)P(30)$  della molecola  $^{13}\text{CO}_2$ . Il profilo di riga con allargamento Doppler è stato fatto acquisendo contemporaneamente la frequenza del battimento e la potenza trasmessa dalla cella con il gas. Per ottenere il profilo abbiamo fatto una scansione del laser QCL di durata 50 s su tutto l'intervallo di frequenze interessate; ogni punto è la media su 500 ms. In figura



**Figura 5.2:** Profilo Doppler della transizione  $(00^0_1 - 00^0_0)P(30)$  della molecola  $^{13}\text{CO}_2$  con misura della frequenza assoluta,  $P=33$  Pa. La distribuzione non omogenea dei punti è dovuta a un drift termico del laser QCL durante la scansione. La linea continua è il fit con un la funzione di Voigt.

5.2 è riportato il profilo Doppler della riga con la misura della frequenza assoluta. Dal fit abbiamo ricavato la frequenza assoluta del centro riga; acquisendo vari spettri a pressioni leggermente diverse abbiamo misurato una frequenza centrale di  $\nu_c = 67678.415 \pm 0.002$  GHz, che è compatibile con quella fornita dal database di HITRAN che è  $\nu_c = 67678.413$  GHz con un errore compreso tra 3 e 30 MHz.

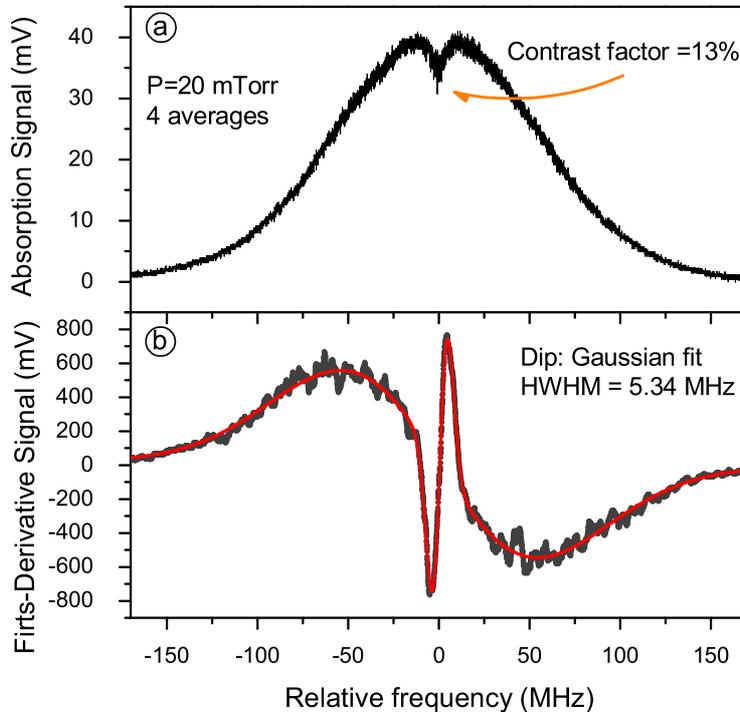
Il limite di queste misure è dato dalle fluttuazioni del laser QCL; per cercare di migliorare la stabilità del laser abbiamo studiato e realizzato la possibilità di agganciare debolmente il laser QCL al Lamb *dip* di una transizione. La transizione scelta è la  $(01^1_1 - 01^1_0)P(30)$  della molecola  $\text{CO}_2$ .



**Figura 5.3:** Schema del set-up sperimentale per l’aggancio debole al Lamb *dip* del laser a cascata quantica. In figura sono riportati i principali blocchi: alloggiamento del QCL e aggancio (a), set-up per il Lamb *dip* (b), sistema di SFG (c), laser agganciati in fase al *comb* (d) e rivelazione del battimento per la misura di frequenza assoluta (e).

Per ottenere il *dip* di saturazione abbiamo modificato il set-up sperimentale iniziale mostrato in figura 5.1, utilizzando due polarizzatori a fili abbiamo introdotto nella cella due fasci laser contropropaganti, uno di pompa (*pump*<sup>1</sup>) e uno di sonda (*probe*). Il laser polarizzato p (lineare orizzontale) attraversa una lamina  $\lambda/2$  ruotata di qualche grado. Il primo polarizzatore (P1) trasmette la frazione di polarizzazione p ( $\sim 80\%$ ) e riflette la polarizzazione s (lineare verticale). La radiazione p che entra in cella funziona da pompa e viene riflessa dal secondo polarizzatore (P2) all’uscita della cella che è ruotato di 90 gradi rispetto al primo.

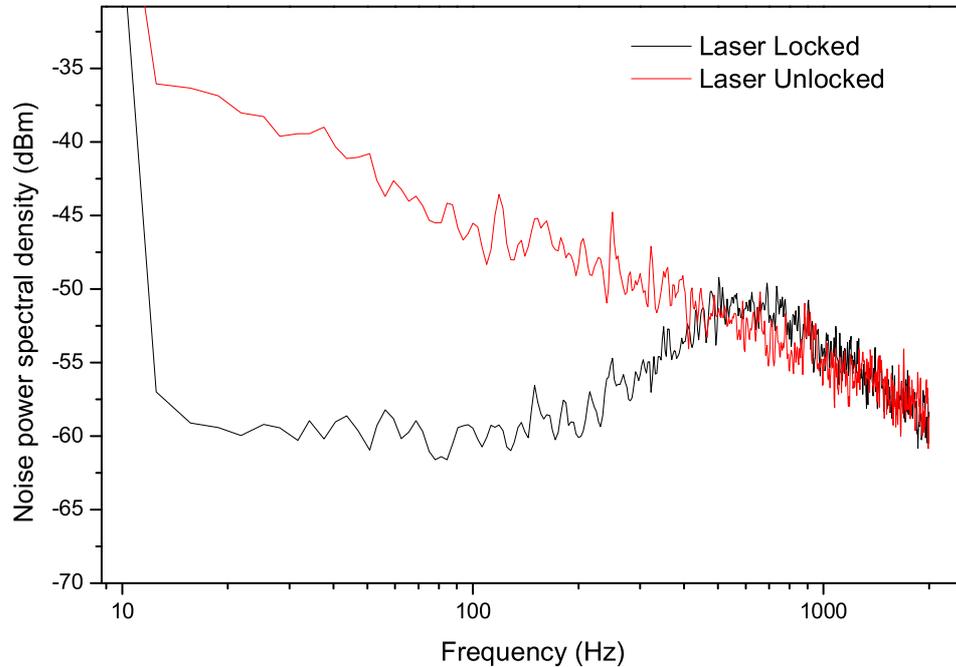
<sup>1</sup>da non confondere con il *pump* della DFG



**Figura 5.4:** Spettro di saturazione della transizione  $(01^{11} - 01^{10})P(30)$  della molecola  $\text{CO}_2$  in assorbimento diretto (a); rivelazione in derivata prima con tecnica *lock-in* e relativo fit (b).

Viceversa la parte di luce polarizzata  $s$  viene fatta entrare in cella in direzione opposta per poi finire sul rivelatore e viene utilizzata come sonda. La pompa ha una densità di potenza che è pari a due volte la densità di saturazione della transizione considerata; tale densità è stata calcolata in base alla pressione del gas in cella (20 mTorr) e al momento di dipolo della transizione stessa [58]. In figura 5.3 è riportato lo schema del set-up sperimentale per l'aggancio del QCL al Lamb *dip*.

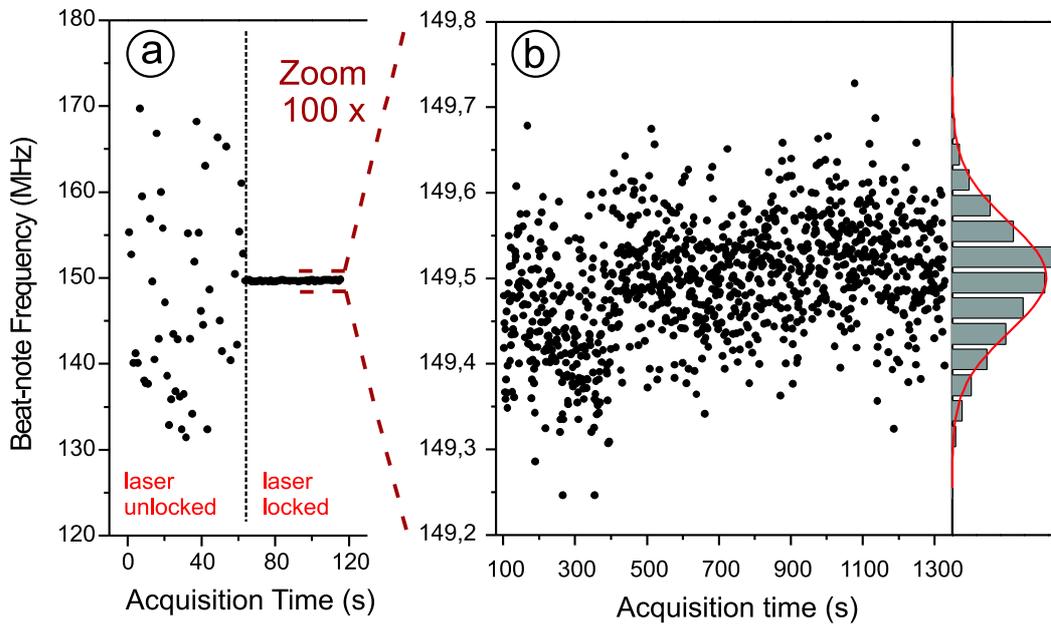
Con questo setup facendo una scansione in frequenza del laser si riesce a



**Figura 5.5:** Densità spettrale di rumore del laser QCL agganciato (traccia nera) e non (traccia rossa) al Lamb *dip*. Questa acquisizione è stata fatta utilizzando come discriminatore di frequenza un *etalon* di germanio.

rivelare il Lamb *dip*; in figura 5.4 è riportata un'acquisizione del profilo doppler con la presenza del *dip* di saturazione. In figura è riportata anche la rivelazione del segnale in derivata prima con tecnica *lock-in* (costante di tempo 1 ms), questo segnale è stato utilizzato per agganciare il laser al *dip* rendendolo stabile in frequenza; in particolare è stato eliminato il drift termico a cui è particolarmente soggetto questo tipo di laser. L'aggancio è stato ottenuto mediante un circuito di controllo PID, mandando il suo segnale di correzione all'apposito ingresso del driver del laser.

In figura 5.5 è mostrata la densità spettrale di rumore del laser QCL in



**Figura 5.6:** Confronto fra misure di frequenza con il laser agganciato e non al Lamb *dip* (a); sessione di 20 minuti di acquisizione della frequenza di battimento con relativo fit gaussiano dei dati (b).

due condizioni diverse: agganciato al Lamb *dip* (traccia nera) e non agganciato (traccia rossa). Il rumore viene ridotto fino a un frequenza di circa 1 kHz a causa della costante di tempo di integrazione del *lock-in*. Questo non permette di correggere le le variazioni ad alta frequenza del laser ma ha notevolmente migliorato la misura di frequenza assoluta.

In questo caso la misura è stata fatta per mezzo di un contatore di frequenza con un tempo di integrazione di 1 s; il contatore, riferito al segnale a 10 MHz, misura la frequenza del battimento  $\Delta\nu_{S-D}$ . Ogni misura ha una durata di minuti e viene interrotta ogni volta che si creano delle instabilità sugli agganci. Ogni sessione di misura fornisce un valor medio di  $\Delta\nu_{S-D}$  con il relativo errore dato dalla deviazione standard della media. In figura 5.6 è riportata una serie di

misure del battimento dove per confronto ci sono anche misure con il laser QCL non agganciato al Lamb *dip*.

Da 53 sessioni di misura effettuate in 2 settimane abbiamo misurato la frequenza assoluta del centro della transizione  $(01^11 - 01^10)P(30)$  della molecola  $\text{CO}_2$ , con un errore di 75 kHz che è ben 2 ordini di grandezza inferiore all'errore fornito dal data base di HITRAN (69267233 MHz con un errore compreso tra 3 e 30 MHz). Il valore misurato è

$$\nu_c = 69267227.764(75) \text{ MHz}$$

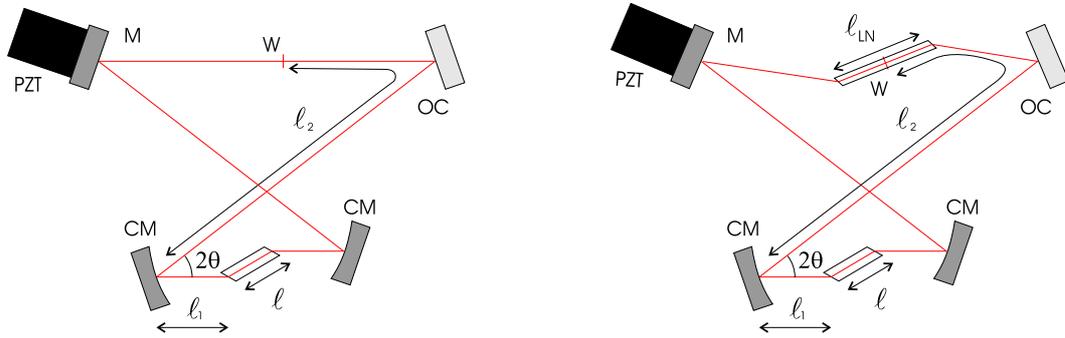
## 5.2 DFG *intracavity*

Per aumentare la potenza generata abbiamo studiato la possibilità di utilizzare un cristallo PPLN inserito in una cavità laser; in questo modo possiamo sfruttare come sorgente tutta la potenza che si crea all'interno della cavità. Avendo a disposizione una cavità laser a Ti:Zaffiro, che è stata progettata e realizzata da noi [39, 59], abbiamo visto se era possibile inserire in cavità un cristallo PPLN. Il laser a nostra disposizione ha una lunghezza d'onda di 850 nm ed emette una potenza di 1 W; l'idea è quella di usarlo come segnale di *pump* per la DFG. Di fatto in cavità circolano<sup>2</sup> 100, questa potenza è di un fattore  $\sim 1000$  più grande della potenza del laser ECDL che abbiamo utilizzato come *pump* nell'esperimento descritto in questa tesi. Purtroppo, come vedremo più avanti, abbiamo dovuto cambiare lo specchio di uscita ottenendo una potenza in cavità più bassa della precedente.

Per vedere se è possibile inserire un cristallo di lunghezza  $\ell_{LN}$  nella cavità abbiamo sfruttato le equazioni per la stabilità espressa in funzione dei parametri geometrici della cavità stessa. Consideriamo i parametri indicati nella parte

---

<sup>2</sup>La potenza in cavità è stimata dalla potenza che esce dal laser Ti:Za divisa per la trasmissione dello specchio d'uscita ( $T=1\%$ ).



**Figura 5.7:** Schema dei parametri geometrici della nostra cavità laser a Ti:Zaffiro con (destra) e senza (sinistra) cristallo PPLN. CM specchi sferici, OC specchio piano d'uscita, M specchio piano con PZT.

sinistra della figura 5.7, utilizzando la legge ABCD per la propagazione dei fasci gaussiani e imponendo il principio di autoconsistenza nel punto W troviamo

$$l_1 > l_{1t>} = f_0 \cos \theta - \frac{\ell}{2n^3} \quad (5.2)$$

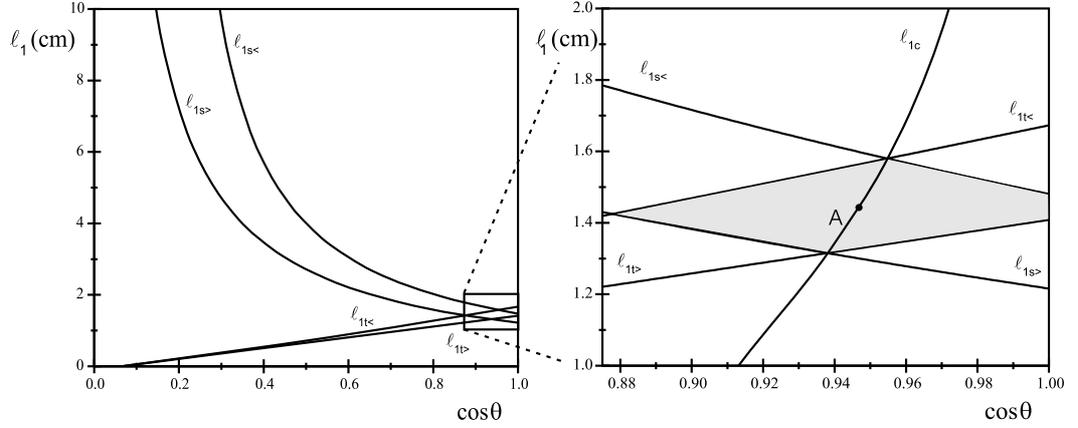
$$l_1 < l_{1t<} = f_0 \cos \theta - \frac{\ell}{2n^3} + \frac{(f_0 \cos \theta)^2}{l_2 - f_0 \cos \theta} \quad (5.3)$$

$$l_1 > l_{1s>} = \frac{f_0}{\cos \theta} - \frac{\ell}{2n} \quad (5.4)$$

$$l_1 < l_{1s<} = \frac{f_0}{\cos \theta} - \frac{\ell}{2n} + \frac{\left(\frac{f_0}{\cos \theta}\right)^2}{l_2 - \frac{f_0}{\cos \theta}} \quad (5.5)$$

Queste quattro equazioni, due per il piano sagittale e due per quello tangenziale, descrivono le curve che limitano la zona di stabilità della cavità; i simboli di minore e maggiore indicano rispettivamente limite superiore e inferiore della zona di stabilità per i valori di  $l_1$  in funzione degli altri parametri. Con queste equazioni è anche possibile calcolare la compensazione dell'astigmatismo imponendo l'eguaglianza fra il *waist* tangenziale e quello sagittale nel punto W. In figura 5.8 sono riportate le suddette curve.

Per estendere questa analisi teorica all'inserimento di un cristallo PPLN nella cavità, come mostrato nella parte destra di figura 5.7, bastano le seguenti



**Figura 5.8:** Condizioni di stabilità per la cavità Ti:Za. Nella figura sinistra sono riportate le equazioni (5.2, 5.3, 5.4, 5.5) per i valori  $\ell=10$  mm,  $\ell_2=100$  mm,  $f_0=15$  mm,  $n \approx 1.76$ . Nella figura destra è evidenziata la zona di valori per i quali la cavità è stabile; inoltre è stata aggiunta la curva  $\ell_{1c}$  che è il luogo dei punti dove è compensato l'astigmatismo. Il punto A rappresenta la configurazione sperimentale,  $\ell_1=14.25$  mm e  $\theta=0.332$  rad. *waist* in W  $w_0=165$   $\mu$ m.

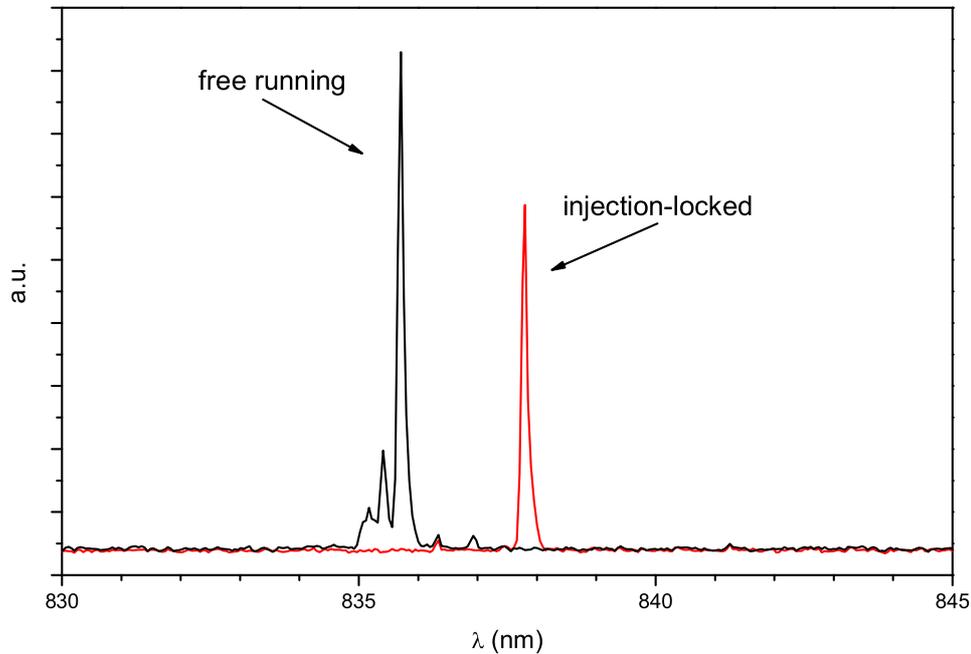
modifiche nell'equazioni (5.3) e (5.5)

$$\ell_2 \rightarrow \ell_2 - \frac{\ell_{LN}}{2n_{LN}^3}$$

$$\ell_2 \rightarrow \ell_2 - \frac{\ell_{LN}}{2n_{LN}}$$

rispettivamente ( $n_{NL} = 2.18$ ). Prendendo  $\ell_{LN}=20$  mm si ha che l'effetto sulla zona di stabilità è semplicemente un piccolo allargamento nella zona superiore. Quindi è stato possibile inserire il cristallo PPLN nella cavità senza problemi di stabilità.

Il cristallo ha le facce d'ingresso tagliate all'angolo di Brewster per rendere minime le perdite per il laser Ti:Za; quindi per inserirlo in cavità e riallinearla, abbiamo ruotato di  $4^\circ$  in senso orario gli specchi piani. Inoltre per aumentare l'efficienza abbiamo spostato di circa un millimetro la distanza degli specchi sfe-



**Figura 5.9:** Spettro del laser Ti:Za in due condizioni diverse di lavoro. Lo spettrometro non ha la risoluzione per rivelare i singoli modi ma si evince chiaramente che nel caso di *free running* il laser non è singolo modo.

rici per rendere più piccolo il *waist* nel punto W ( $w_0 \approx 74\mu\text{m}$ ). Il cristallo è stato montato in un supporto stabilizzato in temperatura mediante un elemento peltier e un raffreddamento ad acqua; questo ci permette di ottimizzare la temperatura di *quasi-phase-matching*. Il cristallo ha gli stessi periodi del cristallo usato per il *cavity ring down* descritto nel paragrafo 2.3; le dimensioni sono  $L=20$  mm  $W=10$  mm  $H=1$  mm.

A causa dell'inclinazione dello specchio di uscita, il laser Ti:Za ha cambiato frequenza di lavoro, questo perché cambiando l'angolo di incidenza cambia la lunghezza d'onda centrale dello spettro di riflessione del film riflettente. Per

riportare la lunghezza d'onda a un valore accettabile<sup>3</sup> per il *quasi-phase-matching*, abbiamo sostituito lo specchio di uscita con uno più adatto alle nostre esigenze. Sfortunatamente lo specchio utilizzato (tra i possibili a disposizione) ha una trasmissione maggiore del precedente ( $T=3.5\%$ ), il che ha fortemente ridotto la potenza in cavità a causa delle maggiori perdite introdotte. Si noti che anche l'inserimento del cristallo PPLN in cavità ha introdotto perdite, e già queste non permettono più di raggiungere 100 W di potenza. Resta il fatto che il drastico calo è dovuto principalmente alla trasmissione del nuovo specchio d'uscita<sup>4</sup>.

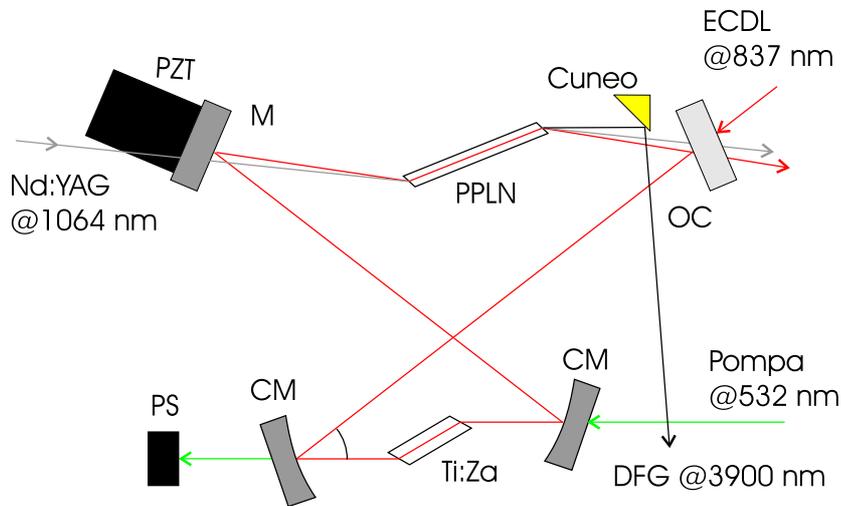
Il laser Ti:Za è reso singolo modo e unidirezionale mediante iniezione ottica di un laser ECDL tunabile fra 830÷870 nm; l'iniezione è stabilizzata elettronicamente mediante la tecnica *Pound-Drever-Hall* (PDH) [60]. L'accoppiamento ottico è realizzato mediante una fibra ottica in cui abbiamo accoppiato il 67% del laser ECDL e l'85% del laser Ti:Za mediante delle lenti. Dal prodotto di questi due valori otteniamo che l'accoppiamento fra i due laser è il 57%, confermato anche dalla misura diretta dell'accoppiamento del laser ECDL nella cavità Ti:Za passiva (pompa spenta). Nel caso *free running* (laser non iniettato) si ha che la lunghezza d'onda di lavoro è  $\sim 835.6$  nm mentre riusciamo a portarlo a 837 nm con l'iniezione. In figura 5.9 sono riportati gli spettri del laser Ti:Za nelle suddette condizioni di lavoro acquisiti con un spettrometro a bassa risoluzione.

Per fare entrare in cavità il laser Nd:YAG da usare come *signal* per la generazione di frequenza differenza abbiamo sostituito lo specchio piano montato sul PZT con uno trasparente, la cui faccia posteriore possiede un film antiriflesso per la lunghezza d'onda di 1064 nm. Il laser Nd:YAG è lo stesso descritto nel paragrafo 2.4 ed è amplificato fino a 10 W da un amplificatore in fibra a Yb che ha un intervallo di funzionamento tra 1030 e 1064 nm. Il modo del laser è

---

<sup>3</sup>dovuto anche al periodo  $\Lambda$  scelto.

<sup>4</sup>Rispetto all'introduzione del cristallo PPLN, il cambio dello specchio ha notevolmente aumentato la soglia di funzionamento del laser.



**Figura 5.10:** Schema della realizzazione della DFG nella cavità Ti:Za. Il laser Ti:Za è pompato con un laser verdi V5 (5 W a 532 nm) ed è reso unidirezionale e singolo modo dall'iniezione con un laser ECDL; il laser Nd:YAG entra in cavità attraverso lo specchio piano montato sul PZT. La radiazione IR generata viene prelevata per mezzo di un cuneo dorato sfruttando il differente angolo di rifrazione delle radiazioni.

sovrapposto a quello della cavità nel cristallo mediante una lente.

Per prelevare la radiazione IR generata abbiamo sfruttato il fatto che l'angolo di uscita dei laser dal cristallo PPLN è differente a causa della diversa lunghezza d'onda. Di fatto l'indice di rifrazione dipende dalla lunghezza d'onda; dai calcoli abbiamo visto che, a distanza di 20 mm dalla faccia di uscita, la radiazione IR è separata da quella che circola in cavità di circa 2 mm. Questo ci ha permesso di prelevare la radiazione IR senza introdurre perdite nella radiazione che circola in cavità. In figura 5.10 è riportato uno schema della realizzazione della generazione di frequenza differenza in cavità.

Un primo risultato [61] è stato ottenuto con una potenza di 10 W di *signal* e una potenza di 5 W di *pump* ottenendo 1.5 mW contro i 24 mW predetti

teoricamente. Per il momento stiamo studiando il motivo del disaccordo fra la potenza generata e quella stimata teoricamente visto che precedenti misure a potenze più basse avevano mostrato un buon accordo. La causa più probabile di questo disaccordo è il danneggiamento del cristallo per le alte potenze in gioco, infatti sospettiamo che questo tipo di cristallo non sia in grado di sopportare la densità di potenza che si trova all'interno della cavità.

Questa sorgente una volta ottimizzata permetterà di avere una buona potenza IR con una larghezza confrontabile con quella generata nella nostra DFG tradizionale. In più sarà notevolmente tunabile in lunghezza d'onda visto la banda di guadagno del Ti:Zaffiro e dell'amplificatore, di fatto si possono generare lunghezze d'onda comprese tra i 3.8 e 5.6  $\mu\text{m}$ . Per questo stiamo studiando la possibilità di acquistare alcuni specchi di uscita con uno spettro di riflessione centrato a lunghezze d'onda diverse; ciò dovrebbe permettere di far lavorare il laser Ti:Za a frequenze diverse semplicemente cambiando lo specchio d'uscita. Inoltre prendendo specchi con bassa trasmissione ( $\sim 1\%$ ) diminuiranno le perdite in cavità aumentando così la potenza emessa.



# Capitolo 6

## Conclusioni e prospettive

In questo lavoro abbiamo realizzato una sorgente di radiazione coerente nel medio infrarosso tunabile tra i 4 e 4.5  $\mu\text{m}$ , con una potenza massima di 80  $\mu\text{W}$  a 4.5  $\mu\text{m}$ . La frequenza generata ha un'ottima stabilità ( $6 \cdot 10^{-13}$  su 1 s) grazie al riferimento all'*optical frequency comb synthesizer*, che ha un'accuratezza relativa dell'ordine di  $10^{-12}$ ; questo ci garantisce una frequenza assoluta ripetibile nel tempo senza uscire dai limiti di confidenza. Grazie al sistema di aggancio in fase dei laser la larghezza intrinseca della radiazione IR è dell'ordine degli Hz, cosa assolutamente non banale per altri tipi di sorgenti nella stessa regione di frequenze. Le caratteristiche principali della radiazione sono riportate in tabella 6.1.

Lunghezza d'onda	4 ÷ 4.5 $\mu\text{m}$
Accuratezza relativa	$2 \cdot 10^{-12}$
Potenza massima	300 ÷ 80 $\mu\text{W}$
Larghezza intrinseca	< 10 Hz

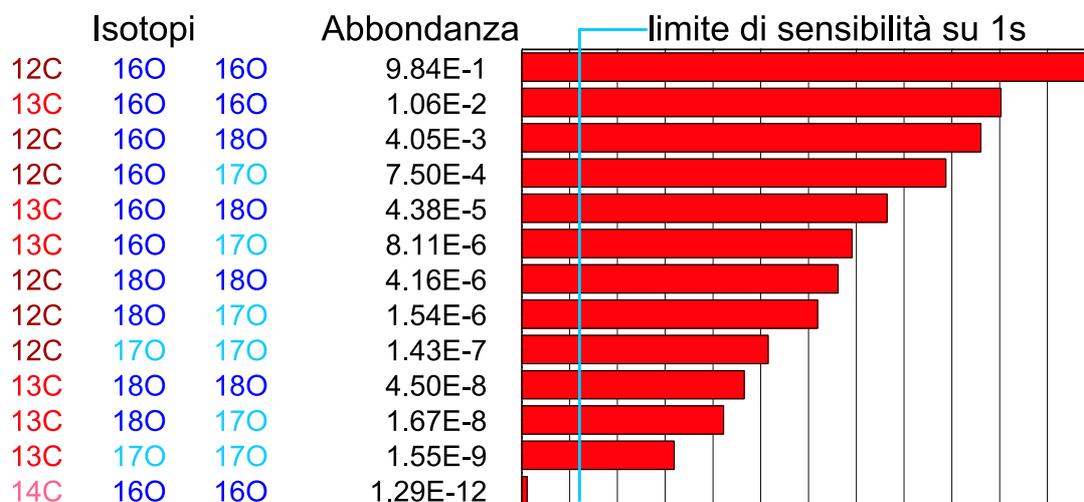
**Tabella 6.1:** Tabella riassuntiva delle caratteristiche della radiazione coerente generata per differenza di frequenza.

finezza (F)	11600
larghezza profilo di Airy (FWHM)	13 kHz
Tempo di decadimento a vuoto ( $\tau_0$ )	12.3 $\mu$ s
assorbanza minima rivelabile ( $\sigma nL$ )	$3 \cdot 10^{-7}$
minima pressione rivelabile di $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ pura	$1.7 \cdot 10^{-8}$ Pa
minima $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ rivelabile in aria	8.8 ppt

**Tabella 6.2:** Tabella riassuntiva delle caratteristiche della cavità e limiti di sensibilità sul secondo, con riferimento particolare alla molecola di  $\text{CO}_2$ .

La buona stabilità della radiazione IR ci ha permesso di accoppiare la luce in una cavità ad alta finezza per fare spettroscopia ad alta sensibilità mediante la tecnica *cavity ring down*; le caratteristiche della cavità sono riassunte in tabella 6.2 insieme all'assorbanza minima rivelabile sul secondo. La sensibilità raggiunta è di  $3 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-\frac{1}{2}}$ ; questa ci permette di rivelare tutti gli isotopi stabili dell'anidride carbonica con un buon rapporto segnale rumore. In figura 6.1 sono riportate le varianti isotopiche della  $\text{CO}_2$  con le corrispondenti abbondanze naturali e il nostro limite di sensibilità su un secondo di misura con una pressione del gas campione di 10 mbar.

L'apparato sperimentale realizzato e descritto [62] in questo lavoro di tesi ha un limite di sensibilità dato dalle oscillazioni che il valor medio di  $1/\tau$  ha su tempi lunghi; queste causano problemi di non riproducibilità delle misure che non permettono di scendere con la precisione di misura al di sotto dei valori suddetti. Attualmente stiamo studiando le cause di queste oscillazioni e l'ipotesi più probabile dopo varie prove è che ci siano delle frange di interferenza all'interno della cavità. Abbiamo visto, grazie alla possibilità di cambiare rapidamente la frequenza della radiazione, che le oscillazioni dipendono dalla frequenza assoluta. Risolvendo il problema delle oscillazioni potremmo guadagnare alcuni ordini di



**Figura 6.1:** Varianti isotopiche dell’anidride carbonica con rispettiva abbondanza naturale. Nel grafico è riportata la nostra sensibilità sul secondo considerando una pressione di misura di 10 mbar.

grandezza sulla sensibilità, arrivando anche a rivelare l’assorbimento della molecola di  $^{14}\text{CO}_2$  con un buon rapporto segnale rumore e dimostrando così la possibilità di rivelare la concentrazione di  $^{14}\text{C}$  con tecniche spettroscopiche.

Stiamo anche studiando un sistema alternativo e più complesso per sostituire le lamette che selezionano quale modo diffratto del laser Nd:YAG iniettare nell’amplificatore. L’idea è quella di velocizzare il passaggio da una frequenza all’altra per scendere su tempi dei  $\mu\text{s}$  anziché dei ms. Questo per ridurre i tempi su cui si fanno le differenze dei  $1/\tau$  tra una frequenza e l’altra.

La sensibilità ottenuta in questo lavoro (a parte i margini di miglioramento in fase di studio) è tra le migliori raggiunte con tecniche spettroscopiche nella regione di frequenze del medio infrarosso [63, 64, 65, 66, 67, 68, 69]; questa permetterebbe di realizzare test di fisica fondamentale utilizzando le molecole. Alcuni esempi sono: la violazione di parità (misurando la piccola differenza di energia tra enantiomeri di una molecola chirale [4, 5]), postulato di simmetriz-

zazione (misurando transizioni proibite [6]), variazioni di costanti fondamentali come il rapporto fra la massa dell'elettrone e del protone (misurando il rapporto fra l'energia rotazionale e vibrazionale [7]). Oltre ai test di fisica di base, questo sistema potrebbe trovare impiego anche in analisi di campioni di gas per la misura di piccole concentrazioni di anidride carbonica; questo però richiede un'analisi in laboratorio e non sul campo, dato l'enorme ingombro di tutta la struttura.

Contemporaneamente alla realizzazione di questo sistema sperimentale abbiamo studiato nuove sorgenti di radiazione IR (come descritto nel capitolo 5), per un'eventuale potenziamento del nostro sistema di misura che difetta proprio nella potenza massima generata. Quello che abbiamo fatto è stata la realizzazione del riferimento di un laser a cascata quantica all'*optical frequency comb synthesizer* (paragrafo 5.1). Inoltre per cercare di stabilizzarne la frequenza, il laser QCL è stato agganciato debolmente (banda  $\approx 1$  kHz) al Lamb *dip* di saturazione di una riga della  $\text{CO}_2$ . Purtroppo questi laser hanno grossi problemi di instabilità che non permettono di avere una radiazione sufficientemente stabile per essere accoppiata in una cavità ad alta finezza. Allo stato attuale stiamo studiando un sistema di aggancio forte per cercare di stabilizzare la frequenza su tempi brevi e quindi diminuire la larghezza della radiazione.

L'altra sorgente che abbiamo studiato e realizzato in questo lavoro (paragrafo 5.2) è un sistema di generazione di frequenza differenza in un cristallo non lineare all'interno di una cavità laser a Ti:Zaffiro. Di fatto questo sistema aumenta notevolmente la potenza IR generata perchè sfrutta come *Pump* la radiazione accumulata all'interno della cavità. Il vantaggio di questo sistema è la possibilità di ottenere radiazione IR con la stessa larghezza intrinseca di quella generata tradizionalmente. Per il momento stiamo verificando la possibilità di sostituire il cristallo non lineare per evitare danneggiamenti fotorifrattivi dovuti alla grande intensità che si ha all'interno della cavità laser.

# Appendice A

## Profili di riga

La trasmissione di luce monocromatica attraverso un gas assorbente viene espressa dalla legge di Lambert-Beer [75]

$$I(\nu, P_g, L) = I_o e^{-\alpha(\nu, P_g)L} \quad (\text{A.1})$$

dove  $\alpha(\nu, P_g)$  è il coefficiente lineare di assorbimento definito in  $\text{cm}^{-1}$ ,  $\nu$  è la frequenza in  $\text{cm}^{-1}$ ,  $P_g$  è la pressione parziale del gas assorbente,  $L$  è la lunghezza d'interazione in cm,  $I_o$  è l'intensità iniziale e  $I(\nu, P_g, L)$  quella trasmessa. Il coefficiente di assorbimento è legato all'intensità di riga  $S$  tramite

$$\alpha(\nu, P_g) \equiv NP_g Sg(\nu) \quad (\text{A.2})$$

dove  $g(\nu)$  è la funzione della forma di riga in cm e  $N$  è la densità numerica di molecole (assorbenti e non) in  $\text{cm}^{-3}$ . Dall'equazione (A.2) si può vedere che  $\sigma(\nu) \equiv Sg(\nu)$  è la sezione di assorbimento in  $\text{cm}^2$  e  $n \equiv NP_g$  è la densità assoluta di molecole assorbenti in  $\text{cm}^{-3}$ . Ci sono tre tipi di profili di riga, che dipendono dal range di pressione in cui si lavora: Lorentziana (alte pressioni), Gaussiana (basse pressioni) e Voigt (pressioni intermedie).

La Lorentziana, che viene usata quando l'allargamento prevelente è quello

per pressione, è data da

$$g_L(\nu) \equiv \frac{1}{\pi\gamma_L} \frac{1}{1 + \left(\frac{\nu-\nu_0}{\gamma_L}\right)^2} \quad (\text{A.3})$$

dove  $\gamma_L$  è la semilarghezza a metà altezza (HWHM) in  $\text{cm}^{-1}$ , data dall'espressione

$$\gamma_L = gP_t \quad (\text{A.4})$$

con  $g$  coefficiente di allargamento per pressione, e  $P_t$  pressione totale.

La Gaussiana, che viene usata quando prevale l'allargamento Doppler, è data da

$$g_D(\nu) \equiv \frac{1}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} e^{-\ln 2 \left(\frac{\nu-\nu_0}{\gamma_D}\right)^2} \quad (\text{A.5})$$

dove  $\gamma_D$  è la semilarghezza a metà altezza (HWHM) in  $\text{cm}^{-1}$ , data da

$$\gamma_D = \nu_0 \sqrt{\frac{2 \ln 2 k_B T}{Mc^2}} \quad (\text{A.6})$$

dove  $M$  è la massa molecolare del gas.

Il profilo Voigt [76] si utilizza quando siamo in una condizione intermedia di allargamento (i due contributi sono dello stesso ordine) ed è dato da

$$g_V(\nu) \equiv \frac{1}{\gamma_L \gamma_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi^3}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-\ln 2 \left(\frac{\nu'-\nu_0}{\gamma_D}\right)^2}}{1 + \left(\frac{\nu-\nu'}{\gamma_L}\right)^2} d\nu' \quad (\text{A.7})$$

# Appendice B

## Non-linearità effettiva

Per mezzi anisotropi i coefficiente di suscettività elettrica  $\chi^{(1)}$  and  $\chi^{(2)}$  sono generalmente dei tensori di secondo e terzo rango, rispettivamente. Consideriamo un cristallo uniassiale con un sistema di riferimento X,Y,Z dove Z è l'asse ottico del mezzo, allora si ha che i tensori  $\chi^{(1)}$  e  $\epsilon^{(1)}$  sono diagonali. gli elementi non nulli del tensore  $\epsilon^{(1)}$  sono:

$$\epsilon_{XX}^{(1)} = \epsilon_{YY}^{(1)} \equiv n_o^2 \quad (\text{B.1})$$

$$\epsilon_{ZZ}^{(1)} \equiv n_e^2 \quad (\text{B.2})$$

Il tensore  $\chi^{(2)}$  invece deve essere rappresentato in tre dimensioni; grazie ad alcune regole di simmetria sulla suscettività introdotte da Kleinman [70], possiamo utilizzare una rappresentazione piana del tensore  $d_{ijk}$  (si usa la solita notazione per  $\chi^{(2)}$ , si veda equazione (1.13)) nella forma  $d_{il}$  dove  $i = 1$  corrisponde a X,  $i = 2$  a Y,  $i = 3$  a Z, e  $l$  prende i seguenti valori:

$$\begin{array}{cccccc} XX & YY & ZZ & YZ = ZY & XZ = ZX & XY = YX \\ l = & 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 \end{array} \quad (\text{B.3})$$

Con questa notazione l'espressione (1.6) può essere riscritta come:

$$P_i = \epsilon_o \left[ \chi_{ij}^{(1)} E_j + 2d_{il} E_l^2 + \dots \right] \quad (\text{B.4})$$

dove  $E_l^2$  è il vettore 1x6 del prodotto. Mettendo nella forma di prodotto tra matrici si ha:

$$\begin{bmatrix} P_X \\ P_Y \\ P_Z \end{bmatrix} = 2\epsilon_o \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_X^2 \\ E_Y^2 \\ E_Z^2 \\ 2E_Y E_Z \\ 2E_X E_Z \\ 2E_X E_Y \end{bmatrix} \quad (\text{B.5})$$

Il numero totale dei componenti della non-linearità quadratica è 18. I cristalli sono stati raggruppati a secondo le loro proprietà di simmetria in 32 gruppi ciascuno dei quali ha una diversa forma del tensore  $d$ . In un cristallo *centrosimmetrico* tutte queste componenti sono nulle, quindi in questo tipo di cristallo non è possibile avere interazioni non lineari. Dei 32 gruppi ben 11 sono di tipo *centrosimmetrico*. Nei restanti 21 ci sono vari elementi di simmetria (assi o piani a differenti ordini) che riducono il numero di componenti indipendenti del tensore  $d$ ; Kleinman [70] ha stabilito un'ulteriore criterio di simmetria per i casi in cui non ci sia dispersione. Quando sono valide le condizioni di Kleinman (in buona parte dei casi) il numero di elementi indipendenti del tensore  $d$  decresce da 18 a 10 secondo le seguenti condizioni:

$$\begin{aligned} d_{21} &= d_{16}; & d_{24} &= d_{32}; & d_{31} &= d_{15}; \\ d_{13} &= d_{35}; & d_{12} &= d_{26}; & d_{32} &= d_{24}; \\ d_{14} &= d_{36} = d_{25} \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

Visto che ogni onda polarizzata linearmente può essere rappresentata come sovrapposizione di due onde polarizzate una lungo l'asse ordinario e l'altra lungo l'asse straordinario. Scriviamo le componenti del vettore polarizzazione unitario  $\mathbf{p}$  ( $|\mathbf{p}| = 1$ ) date in coordinate polari  $\theta$  e  $\phi$  nel sistema di riferimento  $X, Y, Z$ , con

$Z$  asse ottico :

$$\begin{aligned}
 p_{oX} &= -\sin \phi, & p_{eX} &= \cos \theta \cos \phi \\
 p_{oY} &= \cos \phi, & p_{eY} &= \cos \theta \sin \phi \\
 p_{oZ} &= 0, & p_{eZ} &= -\sin \theta
 \end{aligned}
 \tag{B.7}$$

L'equazione per il calcolo dell'efficienza di conversione usa l'effettivo coefficiente di non-linearità  $d_{eff}$  che comprende la somma di tutti gli effetti lungo la direzione di polarizzazione delle onde interagenti

$$d_{eff} = \mathbf{p}_1 d \mathbf{p}_2 \mathbf{p}_3 = \mathbf{p}_2 d \mathbf{p}_3 \mathbf{p}_1 = \mathbf{p}_3 d \mathbf{p}_1 \mathbf{p}_2 \tag{B.8}$$

La grandezza  $d_{eff}$  rappresenta il prodotto scalare tra il primo vettore in (B.7) e il prodotto tensore-vettore di tipo  $d\mathbf{pp}$ . In funzione del tipo di interazione che si ha (si veda il paragrafo 1.3.3)  $d_{eff}$  ha una certa espressione [31]; in tabella B.1 sono riportate le suddette espressioni in base al tipo di interazione e gruppo di simmetria per i cristalli uniassiali.

gruppo	Tipo di interazione	
	$I^-$ , $II^+$ , $II^+$	$I^+$ , $II^-$ , $II^-$
$D_{2d}$	$d_{36} \sin \theta \sin 2\phi$	$d_{36} \sin 2\theta \cos 2\phi$
$C_{3v}$	$d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin 3\phi$	$d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\phi$
$C_{4v}$	$d_{31} \sin \theta$	0
$C_6$	$d_{31} \sin \theta$	0
$C_{6v}$	$d_{31} \sin \theta$	0
$S_4$	$(d_{36} \sin 2\phi + d_{31} \cos 2\phi) \sin \theta$	$(d_{36} \cos 2\phi - d_{31} \sin 2\phi) \sin 2\theta$
$C_3$	$(d_{11} \cos 3\phi - d_{22} \sin 3\phi) \cos \theta + d_{31} \sin \theta$	$(d_{11} \sin 3\phi + d_{22} \cos 3\phi) \cos^2 \theta$
$D_3$	$d_{11} \cos \theta \cos 3\phi$	$d_{11} \cos^2 \theta \sin 3\phi$
$C_{3h}$	$(d_{11} \cos 3\phi - d_{22} \sin 3\phi) \cos \theta$	$(d_{11} \sin 3\phi + d_{22} \cos 3\phi) \cos^2 \theta$
$D_{3h}$	$d_{22} \cos \theta \sin 3\phi$	$d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\phi$
$D_4$	0	0
$D_6$	0	0

**Tabella B.1:** Espressioni di  $d_{eff}$  per cristalli uniassiali per differenti gruppi di simmetria quando le leggi di simmetria di Kleinman sono valide.

# Appendice C

## DFG con fascio gaussiano focalizzato

Nel paragrafo 1.3.2 abbiamo ricavato l'efficienza di generazione (equazione (1.31)) basata su un modello di onda piana. In pratica noi utilizziamo fasci Gaussiani [37] che sono focalizzati all'interno del cristallo usato per la DFG.

I fasci Gaussiani sono caratterizzati dal parametro confocale  $b$  dato da

$$b \equiv kw_0^2$$

dove  $k$  è il vettore d'onda e  $w_0$  il *waist* del fascio. Supponiamo che  $b$  sia lo stesso per i due fasci interagenti, se  $b \gg l$  ( $l$  è la lunghezza del cristallo) possiamo applicare l'approssimazione di onda piana perchè possiamo considerare costante la sezione del fascio. Il profilo trasverso del campo di un fascio gaussiano è

$$E(x, y) = E_0 e^{-\frac{x^2+y^2}{w_0^2}}$$

Integrando sulla sezione possiamo ricavare la potenza dovuta al campo  $E(x, y)$

$$P = \frac{\epsilon_0 cn}{2} \int_{section} |E(x, y)|^2 dx dy = \frac{\epsilon_0 cn}{2} \frac{\pi w_0^2}{2} |E_0|^2$$

e facendo uso della seguente relazione che lega i tre *waist* (da adesso in poi

ometteremo il pedice 0 per evitare sovrabbondanza di indici)

$$\frac{1}{w_1^2} = \frac{1}{w_2^2} + \frac{1}{w_3^2}$$

possiamo ottenere l'efficienza

$$\eta_{cb}(w_2, w_3, l) = \frac{16\pi}{\epsilon_0 c} \frac{d_1^2}{\lambda_1^2 n_1 n_2 n_3} \frac{l^2}{w_2^2 + w_3^2} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k' l}{2}\right) \quad (\text{C.1})$$

Dall'equazione (C.1) si vede che l'efficienza migliora diminuendo  $w_i$  ma questo va in contrasto con l'approssimazione di onda piana. Quando siamo prossimi alla condizione per cui  $l \approx b$  si ha che l'efficienza deve essere calcolata in maniera diversa.

Quando siamo nella condizione per cui  $l \approx b$  si ha che  $w^2 \approx l/k$  e la configurazione prende il nome di *confocal focusing*. Una analisi più dettagliata [71, 72] porta a una espressione dell'efficienza nel caso di *confocal focusing*

$$\eta_{fb}(l) = \frac{32\pi^2}{\epsilon_0 c} \frac{d_1^2}{\lambda_1^2 n_1 n_3 \lambda_2 + n_2 \lambda_3} \frac{l}{h(\mu, \sigma, \xi)} \quad (\text{C.2})$$

dove

$$\begin{aligned} \mu &\equiv \frac{k_2}{k_3} \\ \sigma &\equiv \frac{\Delta k' b}{2} \\ \xi &\equiv \frac{l}{b} \end{aligned}$$

e la funzione di *focusing* è data da

$$h(\mu, \sigma, \xi) \equiv \frac{1}{4\xi} \int_{-\xi}^{\xi} d\tau \int_{-\xi}^{\xi} \frac{e^{-i\sigma(\tau-\tau')}}{1 + \tau\tau' - \frac{i}{2} \left( \frac{1+\mu}{1-\mu} + \frac{1-\mu}{1+\mu} \right) (\tau - \tau')} d\tau'$$

La complessità della funzione è solo apparente perchè l'integrazione elimina la dipendenza da  $i$  producendo una funzione reale. La differenza sostanziale tra l'equazione (C.1) e l'equazione (C.2) è che l'efficienza incrementa con  $l^2$  in un caso e con  $l$  nell'altro.

Fino a ora abbiamo considerato che il cristallo utilizzato per il processo non lineare sia trasparente per le lunghezze d'onda che interagiscono. Se consideriamo che ci sia solo assorbimento per la lunghezza d'onda generata (come nel nostro caso) la funzione di *focusing* diventa [73]

$$h(\mu, \sigma, \xi, \alpha l) \equiv \frac{e^{-\frac{\alpha l}{2}}}{4\xi} \int_{-\xi}^{\xi} d\tau \int_{-\xi}^{\xi} \frac{e^{-i\sigma(\tau-\tau') + \frac{\alpha l}{4\xi}(\tau+\tau')}}{1 + \tau\tau' - \frac{i}{2} \left( \frac{1+\mu}{1-\mu} + \frac{1-\mu}{1+\mu} \right) (\tau - \tau')} d\tau'$$

dove con  $\alpha$  abbiamo indicato il coefficiente lineare di assorbimento del mezzo. Per una trattazione più completa per la funzione di *focusing* si veda [74].



# Bibliografia

- [1] R. M. Mihalcea, D. S. Baer, and R. K. Hanson, *Appl. Opt.* **36**, 8745 (1997).
- [2] I. L. abd P. Kasprsen and T. Jaeger, *Appl. Phys. B* **67**, 297 (1998).
- [3] A. Rocco, G. D. Natale, P. D. Natale, G. Gagliardi, and L. Gianfrani, *Appl. Phys. B* **78**, 235 (2004).
- [4] C. Daussy et al. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1554 (1999).
- [5] J. Crassous, C. Chardonnet, T. Sauec and P. Schwerdtfegerd, *Org. Biomol. Chem.* **3**, 2218 (2005).
- [6] D. Mazzotti, P. Cancio, G. Giusfredi, M. Inguscio, and P. De Natale, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1919 (2001).
- [7] E. Reinhold, R. Buning, U. Hollenstein, A. Ivanchik, P. Petitjean and W. Ubachs, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 151101 (2006).
- [8] J. Faist, F. Papasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, *Science* **264**, 553 (1994).
- [9] B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano and J. C. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799 (1999).
- [10] G. Rempe, R. J. Thompson, H. J. Kimble and R. Lalezari, *Opt. Lett.* **17**, 363 (1992).

- 
- [11] Robert W. Boyd, *Nonlinear Optics* (ACADEMIC PRESS, INC 1992).
- [12] D. Romanini, A.A. Kachanov, N. Sadeghi and F. Stoeckel, *Chemical Physics Letters* **264**, 316 (1997).
- [13] D. Romanini, A.A. Kachanov and F. Stoeckel, *Chemical Physics Letters* **270**, 538 (1997).
- [14] Anthony O’Keefe and David A. G. Deacon, *Review of Scientific Instruments* **59**, 2544 (1988).
- [15] J. Reichert, R. Holzwarth, T. Udem, and T. W. Hensch, *Opt. Commun.* **172**, 59 (1999).
- [16] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hensch *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568 (1999).
- [17] B. R. Washburn et al. *Opt. Lett.* **29**, 250 (2004).
- [18] J. M. Herbelin, J. A. McKay, M. A. Kwok, R. H. Ueunten, D. S. Urevig, D. J. Spencer, and D. J. Benard *App. Opt.* **19**, 144 (1980).
- [19] D. Z. Anderson, J. C. Frisch, and C. S. Masser *App. Opt.* **23**, 1238 (1984).
- [20] D. Romanini and K. K. Lehmann, *J. Chem. Phys.* **99**, 6287 (1993).
- [21] B. A. Paldus, C. C. Harb, T. G. Spence, B. Wilke, J. Xie, J. S. Harris, and R. N. Zare, *J. Appl. Phys.* **83**, 3991 (1998).
- [22] J. Ye and J.L. Hall, *Phys. Rev. A* **61**, 061802 (2000).
- [23] A. E. Siegman *Laser* (Oxford University Press, 1986)
- [24] S.A. Diddams, et al., *Optics and Photonics News* **Ottobre 2000** 17.
- [25] R. Szipöcs, et al., *Opt. Lett.* **19**, 201 (1994).

- 
- [26] J. C. Knight, et al. *Opt. Lett.* **21**, 1547 (1996)
- [27] Amnon Yariv, *Optical Electronics in Modern Communications* (fifth edition 1997).
- [28] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford 1992).
- [29] J. E. Midwinter and J. Warner, *Brit. J. Appl. Phys.* **16**, 1135 (1965).
- [30] D. N. Nikogosyan, *Non-linear Optical Crystal: A complete Survey* (Springer, 2005)
- [31] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, in *Handbook of Non-linear Optical Crystal* **64** of *Springer Series in Optical sciences*, A. E. Siegman, ed. (Springer, Berlin-Heidelberg, 1997), pp 119-125.
- [32] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and L. R. Byer *IEEE Journal of Quantum Electronics* **28**, 2631 (1992).
- [33] C. H. Townes and A. Schawlow *Microwave Spectroscopy* (Dover Publications, New York, 1975).
- [34] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure* (D. van Nostrand Company, New York, 1949).
- [35] L. S. Rothman et al., *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **48**, 469 (1992).
- [36] R. L. Sams and J. R. Devoe, *J. Mol. Spectrosc.* **128**, 296 (1988). 17.
- [37] Giovanni Giusfredi, *Ottica-appunti di un fisico sperimentale*.
- [38] X. G. Huang, W. K. Lee, S. P. Wong, J. Y. Zhou and Z. X. Yu *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2863 (1996).
- [39] Iacopo Galli. Tesi di laurea in fisica *Realizzazione di un laser compatto a Ti:zaffiro iniettato* (anno accademico 2002/2003).

- [40] Claudio de Mauro. Tesi di laurea in fisica *Misura assoluta di frequenza della transizione  $2^3S \rightarrow 2^3P$  dell'atomo di elio a  $1,08\mu\text{m}$  (277 THz)* (anno accademico 2001/2002).
- [41] F. Krausz, et al. *IEEE J. Quant. Electron.* **28**, 2097 (1992).
- [42] S. A. Diddams, et al. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5102 (2000).
- [43] J. A. Barnes, et al. *IEEE Transaction on instrumentation and Measurement* **20**, 105 (1971).
- [44] D. H. Hunt *Opt. Lett.* **22**, 1553 (1997).
- [45] Y. S. Kim and R. T. Smith *J. Appl. Phys.* **40**, 4637 (1969).
- [46] T. J. Kane, R. L. Byer, *Opt. Lett.*, **10**, 65 (1985)
- [47] A. L. Schawlow, C. H. Townes, *Phys. Rev.* **112**, 1940 (1958).
- [48] H.R. Telle, B. Lipphardt and J. Stenger, *Appl. Phys. B* **74**, 1 (2002).
- [49] J. Stenger, H. Schnatz, C. Tamm and H.R. Telle *Physical review letters* **88**, 073601.
- [50] D. Mazzotti, P. Cancio, A. Castrillo, I. Galli, G. Giusfredi and P. De Natale, *J. Opt. A* **8**, S490 (2006).
- [51] A. G. Ullrich, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **3**, 318 (1991).
- [52] J. W. Czarske, R. Philipps and I. Freitag, *App. Phys. B*, **61**, 243 (1995).
- [53] B. Paldus, C. C. Harb, T. G. Spence, R. N. Zare, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, *Opt. Lett.* **25**, 666 (2000).

- [54] G. Gagliardi, F. Tamassia, P. De Natale, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, *Eur. Phys. J. D* **19**, 327 (2002).
- [55] S. Borri, S. Bartalini, P. De Natale, M. Inguscio, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, and A. Y. Cho, *Appl. Phys. B* **85**, 223 (2006).
- [56] S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, P. De Natale, S. Borri, I. Galli, T. Leveque, and L. Gianfrani, *Optics Letters* **32**, 988 (2007).
- [57] S. Borri, S. Bartalini, I. Galli, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, A. Castrillo, L. Gianfrani, and P. De Natale, *Optics Express* **16**, 11637 (2008).
- [58] V. S. Letokhov, *High-Resolution Laser Spectroscopy* K. Shimoda, ed. (Springer, 1976).
- [59] J. Belfi, I. Galli, G. Giusfredi and F. Marin, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1276 (2006).
- [60] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley and H. Ward *Appl. Phys. B* **31**, 97 (1983).
- [61] P. De Natale, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and P. Cancio in *Active Photonic Crystals II*, vol. 7031 of “SPIE Proceedings” S. M. Weiss, G. S. Subramania, and F. Garca-Santamara eds., (SPIE, 2008), 70310K.
- [62] I. Galli, S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti and P. De Natale sottomesso a *Nature Photonics*.
- [63] B. A. Paldus, C. C. Harb, T. G. Spence, R. N. Zare, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson and A. Y. Cho, *Opt. Lett.* **25**, 666 (2000).

- 
- [64] A. A. Kosterev, A. L. Malinovsky, F. K. Tittel, C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, *Appl. Opt.* **40**, 5522 (2001).
- [65] A. Popp, F. Müller, F. Kühnemann, S. Schiller, G. von Basum, H. Dahnke, P. Hering and M. Murtz, *Appl. Phys. B* **75**, 281 (2002).
- [66] D. Richter, A. Fried, B.P. Wert, J.G. Walega and F.K. Tittel, *Appl. Phys. B* **75**, 281 (2002).
- [67] M. S. Taubman, T. L. Myers, B. D. Cannon and R. M. Williams, *Spectroc. Acta A* **60**, 3457 (2004).
- [68] D. Halmer, G. von Basum, P. Hering and M. Mürtz, *Opt. Lett.* **30**, 2314 (2005).
- [69] E. J. Moyer, D. S. Sayres, G. S. Engel, J. M. St. Clair, F. N. Keutsch, N. T. Allen, J. H. Kroll and J. G. Anderson, *Appl. Phys. B* **92**, 467 (2008).
- [70] D. A. Kleinman *Phys. Rev.* **126**, 1977 (1962).
- [71] Tran-Ba-Chu and M. Broyer *J. Physique* **45**, 1599 (1984).
- [72] Tran-Ba-Chu and M. Broyer *J. Physique* **46**, 523 (1985).
- [73] S. Borri, P. Cancio, P. De Natale, G. Giusfredi, D. Mazzotti, F. Tamassia *Appl. Phys. B* **76**, 473(2003).
- [74] G. D. Boyd D. A. Kleinman *J. Applied Physics* **39**, 3597 (1968).
- [75] W. demtröder *Laser Spectroscopy* (Springer 2003).
- [76] B. H. Armstrong *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **7**, 61 (1967).

# Lista delle pubblicazioni

## Pubblicazioni su riviste e libri

*A comb-referenced difference-frequency spectrometer for cavity ring-down spectroscopy in the 4.5  $\mu\text{m}$  region*

D. Mazzotti, P. Cancio, A. Castrillo, I. Galli, G. Giusfredi, and P. De Natale.  
*Journal of Optics A* **8**, S490-S493 (2006).

*Intensity noise of an injection-locked Ti:sapphire laser: analysis of the phase-noise-to-amplitude-noise conversion*

J. Belfi, I. Galli, G. Giusfredi, and F. Marin.

*Journal of the Optical Society of America B* **23**, 1276-1286 (2006).

*Comb-referenced ultra-high sensitivity spectroscopic molecular detection by compact non-linear sources*

P. Cancio, G. Gagliardi, I. Galli, G. Giusfredi, P. Maddaloni, P. Malara, D. Mazzotti, and P. De Natale

*Proceedings of the 6th International Conference on Space Optics (ICSO 2006)*

A. Wilson ed., (ESA SP-621, 2006), session 28.

*Frequency-comb-referenced quantum-cascade laser at 4.4  $\mu\text{m}$*

S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, P. De Natale, S. Borri, I. Galli, T. Leveque, and L. Gianfrani.  
*Optics Letters* **32**, 988-990 (2007).

*Frequency-comb-assisted mid-infrared spectroscopy*

P. De Natale, D. Mazzotti, G. Giusfredi, S. Bartalini, P. Cancio, P. Maddaloni, P. Malara, G. Gagliardi, I. Galli, and S. Borri  
in *Laser Spectroscopy 2007 - Proceedings of the XVIII International Conference (ICOLS 2007)* L. Hollberg, J. Bergquist, and M. Kasevich eds., (World Scientific, Singapore, 2008), pp. 75-86.

*Lamb-dip-locked quantum cascade laser for comb-referenced IR absolute frequency measurements*

S. Borri, S. Bartalini, I. Galli, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, A. Castrillo, L. Gianfrani, and P. De Natale.  
*Optics Express* **16**, 11637-11646 (2008)

*Functional periodically poled-crystals for powerful intracavity CW difference frequency-generation of widely tunable high spectral purity IR radiation*

P. De Natale, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and P. Cancio  
in *Active Photonic Crystals II*, vol. 7031 of "SPIE Proceedings" S. M. Weiss, G. S. Subramania, and F. Garca-Santamara eds., (SPIE, 2008), 70310K.

## Presentazioni a conferenze

*An injection-locked, CW Ti:Sa laser for IR molecular spectroscopy*

J. Belfi, I. Galli, G. Giusfredi, F. Marin, and D. Mazzotti

*International Conference on Optical Diagnostics and Monitoring: from Advanced Components to Novel Devices (OpDiMon 2004)* Bacoli, Italy, 21-26/03/2004.

Conference digest, p 122.

*Trace gas detection of molecules by using a frequency-comb-based difference frequency IR spectrometer*

P. Cancio, P. De Natale, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and M. Prevedelli.

*Matter, Materials and Devices - Meeting (MMD 2005)*

Genova, Italy, 22-25 giugno 2005. Poster book of abstracts, pp. 280-281.

*A frequency-comb-based difference-frequency IR spectrometer for trace gas detection of molecules*

P. Cancio, P. De Natale, I. Galli, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and M. Prevedelli.

*XIX Colloquium on High Resolution Molecular Spectroscopy (HIRMS 2005)* Sa-

lamanca, Spain, 11-16 settembre 2005. Conference digest, pp. 352-353. Poster presentation

*Nonlinear optical devices for high resolution molecular spectroscopy*

D. Mazzotti, P. Cancio, I. Galli, G. Giusfredi, M. Prevedelli, and P. De Natale.

*Optical Microsystems (OMS 2005)* Capri, Italy, 15-18 settembre 2005. Oral presentation.

*Intensity noise of an injection locked Titanium:Sapphire laser. Analysis of the phase-noise to amplitude-noise conversion*

J. Belfi, I. Galli, G. Giusfredi, F. Marin.

*Second Rio de la Plata Workshop on Noise, Chaos, and Complexity in Lasers and Nonlinear Optics*, held at Colonia del Sacramento, Uruguay, 5-9 dicembre 2005. Conf. program, p. 9. Oral presentation.

*Comb-referenced ultra-high sensitivity spectroscopic molecular detection by compact non-linear sources*

P. Cancio, G. Gagliardi, I. Galli, G. Giusfredi, P. Maddaloni, P. Malara, D. Mazzotti, and P. De Natale *6th International Conference on Space Optics (ICSO 2006)* ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 27-30/06/2006.

*Gas detection in the mid IR with a femto-comb-referred DFG source*

D. Mazzotti, P. Cancio, P. De Natale, I. Galli, and G. Giusfredi

*CCQM-GAWG Workshop: Spectroscopy as a potential primary method for gas analysis* Torino, Italy, 12-13/07/2006.

*Mid-infrared difference-frequency optical combs for high-resolution spectroscopy*

P. Maddaloni, P. Cancio, I. Galli, G. Gagliardi, G. Giusfredi, P. Malara, D. Mazzotti, and P. De Natale

*19th Conference on High Resolution Molecular Spectroscopy (HIRMS 2006)* Praha, Czech Republic, 29/08-02/09/2006.

*Referencing mid-IR radiation to an optical frequency comb*

D. Mazzotti, S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, I. Galli, G. Giusfredi, and P. De Natale

*Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe 2007)* Munich, Germany, 17-22/06/2007.

*Frequency-comb-assisted mid-infrared spectroscopy*

P. De Natale, D. Mazzotti, G. Giusfredi, S. Bartalini, P. Cancio, P. Maddaloni, P. Malara, G. Gagliardi, I. Galli, and S. Borri  
*18th International Conference on Laser Spectroscopy (ICOLS 2007)* Telluride, USA, 24-29/06/2007.

*Frequency-comb-assisted mid-infrared high sensitivity spectroscopy*

P. Cancio, P. De Natale, I. Galli, G. Giusfredi, and D. Mazzotti  
*2nd International Workshop on Stable Isotope Ratio Infrared Spectrometry (SIRIS 2007)* Firenze, Italy, 07-08/09/2007.

*Quantum cascade laser-based spectrometer for high-precision spectroscopy in the mid infrared*

S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, I. Galli, L. Gianfrani, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and P. De Natale  
*Optical Microsystems (OMS 2007)* Capri, Italy, 30/09-03/10/2007.

*Intracavity CW difference-frequency generation of tunable and narrow-linewidth IR radiation*

I. Galli, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, and P. De Natale  
*Optical Microsystems (OMS 2007)* Capri, Italy, 30/09-03/10/2007.

*Accurate trace gas sensing with ultimate photonic tools: from environmental sensing to homeland security*

P. De Natale, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, I. Galli, S. Borri, S. Bartalini, P. Maddaloni, P. Malara, A. Rocco, M. De Rosa, and G. Gagliardi  
*Mindsh@re Event 2008* Rome, Italy, 05-06/02/2008.

*Frequency metrology with quantum cascade lasers*

S. Bartalini, S. Borri, I. Galli, D. Mazzotti, P. Cancio, G. Giusfredi, and P. De Natale

*International Quantum Cascade Lasers School & Workshop (IQCLSW 2008)*

Monte Verit, Switzerland, 14-19/09/2008. Conference digest, pp. 163-164.

# Ringraziamenti

Inizio col ringraziare il mio supervisore Giovanni Giusfredi che per me è stato, ed è tutt'ora, una guida saggia e meticolosa nel corso di questo lavoro e anche in quello di tesi di laurea. Ringrazio tutti i componenti del gruppo di ricerca in ordine alfabetico per non dover fare delle preferenze: Davide per la sua impareggiabile capacità di immagazzinare informazioni e disponibilità, Pablo per la sua simpatia e franchezza, Paolo per avermi finalmente convinto a registrare tutti i dati e a tenere un quaderno di laboratorio altrimenti chissà cosa scrivevo nella tesi di dottorato, Saverio per la sua santa pazienza e Simone per le sue freddure. A loro va anche un grazie per il loro prezioso aiuto teorico, pratico e morale che mi hanno dato in questi anni.

Un ringraziamento doveroso al coordinamento del dottorato e a tutti coloro che mi hanno permesso di svolgere questa attività di ricerca, sperando che non si concluda con questa tesi.

Ringrazio tutto lo staff tecnico del LENS per il loro contributo alla realizzazione di questo lavoro, con particolare attenzione a Alessio, Marco, Mauro, Riccardo e Ahmed.

Ringrazio il gruppo di compagni del pranzo che non sono solo compagni di un'ora, ma amici che hanno vissuto con me tutti i giorni di questi anni sopportando tutti i miei sbalzi di umore, le mie lamentele e i miei monologhi sul calcio, quindi grazie a Lara, Lucia, Luigi, Saverio, Simone e Valentina. Un ringraziamento particolare a Claudio simpatico amico senese dalle mille citazioni.

Ringrazio anche tutti i miei amici al di fuori dell'ambiente scientifico per avermi sempre detto che se faccio fisica vuol dire che sono intelligente e che a loro la fisica ha sempre fatto schifo e non ci capivano nulla.

Concludo con una catena di affetti che nessuno può spezzare, sono ultimi per ordine ma primi nella mia vita. Ringrazio i miei genitori per avermi sopportato (in tutti i sensi!) durante tutti questi anni alternati da periodi di buon umore e periodi di insopportabilità tale da disconoscermi, per avermi sempre dato la massima fiducia, per avermi appoggiato in ogni mia decisione e anche per avermi messo al mondo. Un ringraziamento particolare a Fabio compagno di mille avventure che ormai è un fratello più che un amico ed a Marco il fratello della mia fidanzata Aurora. A lei dedico questa tesi perché l'abbiamo vissuta tutta insieme e se sono arrivato in fondo è anche merito suo che mi ha sempre rimesso in carreggiata nei momenti di sbandamento, standomi vicina e dedicandomi tutta se stessa.

Dimenticavo, ringrazio anche gli uomini primitivi per aver inventato la pesca, attività a me così cara da meritarsi un ringraziamento particolare per tutti i bei momenti di relax e soddisfazione che mi ha dato negli anni.