



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA  
DE MÉXICO**

---

---

**FACULTAD DE CIENCIAS**

**ESPECTROSCOPIA DE RESOLUCIÓN TEMPORAL  
DE FEMTOSEGUNDOS EN SUPERFICIES  
SEMICONDUCTORAS**

**T E S I S**

**QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:**

**FÍSICA**

**P R E S E N T A:**

**BRISEIDA GUADALUPE PÉREZ HERNÁNDEZ**



**DIRECTOR DE TESIS:  
Dr. JESÚS GARDUÑO MEJIA  
2010**



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

**Jurado:**

Dra. Jazmín Carranza Gallardo

Dr. Miguel García Rocha

Dr. Jesús Garduño Mejía

Dr. Naser Qureshi

M. en C. Mirna Villavicencio Torres

*A mis padres con todo mi amor*

## ***AGRADECIMIENTOS***

*Expreso mi profunda gratitud a mi asesor, el doctor Jesús Garduño Mejía, por su ayuda y dirección a lo largo de este trabajo. Por brindarme su comprensión, paciencia y consejo en mis continuos momentos de desesperación y por mostrarse siempre como un amigo.*

*Agradezco también al doctor Roberto Ortega, quién me presento el increíble mundo de los láseres, a la familia del laboratorio de Pulsos Ultracortos, y por su incesante labor de acercar a los estudiantes a esta área de investigación.*

*A mis compañeros del laboratorio de Pulsos Ultracortos, el doctor Carlos Román, quien hizo las sesiones experimentales más llevaderas y nos proporcionó en todo momento su ayuda con los equipos.*

*Al doctor Antonio Rodríguez que me brindo su ayuda con el sistema de adquisición de datos.*

*A los miembros de mi comité de tesis; doctor Naser Qureshi, doctor Miguel García, por el interés que prestaron a mi trabajo y sus valiosas aportaciones.*

*A la doctora Jazmín Carranza con quien inicié a laborar en el área de la docencia, y me mostró con otra óptica el color.*

*A la doctora Mirna Villavicencio por sus aportaciones a este trabajo y por las excelentes cátedras que me brindo en la carrera.*

## **DEDICATORIAS**

*Este trabajo lo dedico principalmente a mis padres quienes con su amor, cariño y enseñanzas me motivaron a su realización y conclusión, y con los cuales estaré siempre agradecida.*

*A mi madre María de Jesús, que siempre ha estado a mi lado, que con su ejemplo me ha inculcado a no rendirme y quien siempre me muestra la vida desde otra perspectiva.*

*A mi padre Salomón, quien siempre me acompaña y fomentó mi interés por la física.*

*A mis hermanos Rodrigo y Ariday, a mi hermana Hypatia que ha estado a mi lado en todo momento, me ha escuchado, aconsejado y alentado a seguir siempre adelante, por brindarme su amor inmensurable mostrándome que todo es posible.*

*A mis amigos de la carrera, quienes han hecho este viaje largo tan agradable, estuvieron ahí en las buenas y en las malas, y con quienes pasé algunos de los mejores momentos de mi existencia.*

*A Delia y su maravillosa familia por su atención y apoyo, por escucharme y brindarme su amistad, a Cecilia, a Flor quien en últimos momentos ha estado a mi lado brindándome su apoyo y ayuda incondicional, a Cipactli por su amistad.*

*Al resto de mis compañeros de la carrera y amigos quienes me brindaron su compañía y apoyo, Adriana, María, Melida, Paty, Samanta, Francisco e Israel.*

*Y por supuesto a Briseida, que ha dedicado muchísimas horas a la realización de éste trabajo, quien se ha soportado en todo momento y porque no decirlo, le ha sufrido bastante.*

## ÍNDICE

|  |    |
|--|----|
| INTRODUCCIÓN .....                                       | 1  |
| Sinopsis de la Tesis .....                               | 2  |
| I. PULSOS DE FEMTOSEGUNDOS .....                         | 4  |
| I.1    Láseres Pulsados .....                            | 4  |
| I.1.1    Amarre de Modos .....                           | 6  |
| I.1.1    Domino de Frecuencias .....                     | 7  |
| I.2    Técnicas de Amarre de Modos .....                 | 8  |
| I.2.1    Modulación Activa .....                         | 8  |
| I.2.2    Modulación Pasiva .....                         | 10 |
| I.2.2.1    Amarre de Modos por Absorción Saturable ..... | 11 |
| I.2.2.2    Amarre de Modos en Medios Kerr .....          | 13 |
| I.2.2.3    Compresión de los Pulsos .....                | 16 |
| I.2.2.4    Láser de Ti:zaf .....                         | 19 |
| I.3    Características de los Pulsos .....               | 23 |
| II. CARACTERIZACIÓN DE LOS PULSOS .....                  | 26 |
| II.1    Autocorrelación de 2° Orden (SHG y TPA) .....    | 26 |
| II.1.1    Calibración .....                              | 31 |

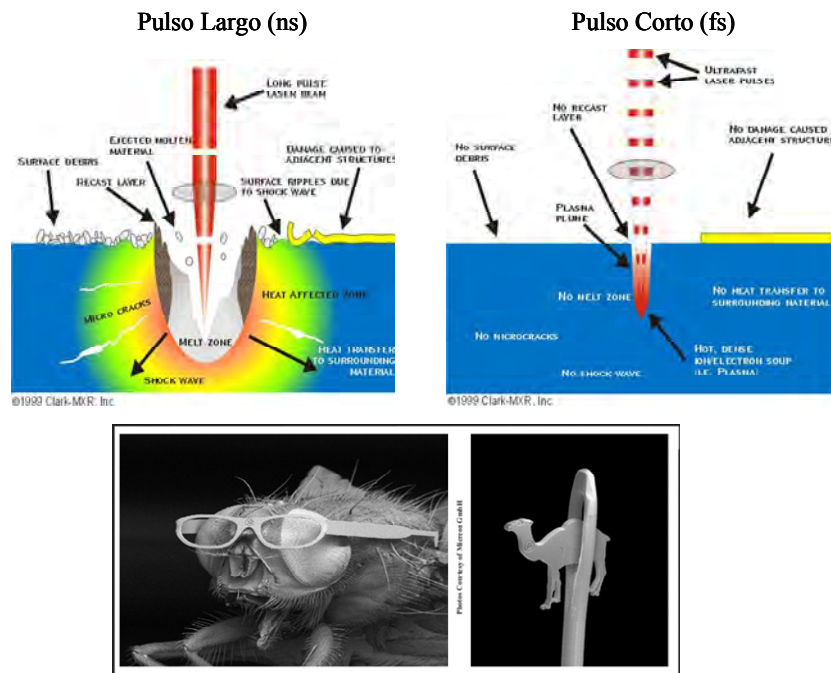
|       |  |    |
|-------|--|----|
| II.2  | Medida de la Autocorrelación de Intensidad .....                           | 33 |
| II.3  | Medida de la Autocorrelación Interferométrica .....                        | 35 |
| II.4  | Características Espectrales .....  | 37 |
| III.  | ESPECTROSCOPIA DE RESOLUCIÓN TEMPORAL .....                                | 39 |
| III.1 | Espectroscopía De Resolución Temporal .....                                | 39 |
| III.2 | Técnica TTR y TTT .....  | 40 |
| III.3 | Fases de Relajación en Semiconductores Excitados Ópticamente .....         | 41 |
| IV.   | EXPERIMENTO .....  | 50 |
| IV.1  | Montaje Experimental .....   | 50 |
| IV.1  | Adquisición de Datos .....   | 55 |
| V.    | RESULTADOS Y CONCLUSIONES .....  | 60 |
| V.1   | Evolución de las Propiedades Ópticas Transitorias .....                    | 60 |
| V.2   | Conclusiones .....   | 70 |
|       | APÉNDICES .....  | 73 |
|       | Apéndice A. EFECTO KERR .....  | 73 |
|       | Apéndice B. ABSORCIÓN DE DOS FOTONES Y GENERACIÓN DE SEGUNDO ARMÓNICO..... | 76 |
| B.1   | Absorción de Dos Fotones .....   | 76 |
| B.2   | Generación de Segundo Armónico .....                                       | 77 |



|  |    |
|--|----|
| Apéndice C. LOCK -IN Y CONTROL DE INSTRUMENTOS ..... | 81 |
| C.1    Lock – In .....                               | 81 |
| C.2    Control de Instrumentos .....                 | 85 |

## INTRODUCCIÓN

La invención del láser en 1960 abrió nuevas perspectivas en el estudio de la interacción luz-materia. A pesar de los numerosos avances en la tecnología láser, el interés cada vez mayor en la interacción de la luz con los materiales permanece. Consecuentemente, se ha aprendido mucho sobre cómo los fotones interactúan con los materiales y sobre otros cambios subsecuentes en las características de los mismos. El conocimiento ganado ha permitido el desarrollo de las nuevas tecnologías que están siendo aplicadas. Por citar un ejemplo, en el campo de procesamiento de materiales y micro maquinado por ablación láser, un mejor entendimiento de la deposición, transferencia y distribución de energía es importante para lograr cortes y perforaciones más finas y precisas (figura 1) [Shen et al, 2004].



**Figura 1.** Proceso de ablación y resultado de micromaquinado con pulsos de femtosegundos [www.cmxr.com].

El desarrollo de nuevas fuentes láser también ha permitido el estudio de nuevos fenómenos involucrados en las interacciones láser-materia, trayendo nuevas aportaciones a la comprensión científica básica. Los láseres de alta energía, no solo han permitido el procesamiento de materiales pesados, sino también han contribuido a la comprensión de diversos fenómenos físicos a escala atómica. Pulsos de duración extremadamente cortos del orden de femtosegundos ( $1 fs = 1 \times 10^{-15} seg$ ), desarrollados en los años 80's, son capaces de medir procesos que ocurren en escalas de tiempo de picosegundos y femtosegundos, tales como procesos en superficies, dispersión electrón-electrón y electrón-fonón, transiciones de fase, reacciones químicas, etc. Los pulsos ultracortos de femtosegundos actualmente proporcionan intensidades extremadamente altas las cuales anteriormente eran inalcanzables en un laboratorio convencional. Esta característica ha tenido como resultado el amplio uso de estas fuentes de luz en el estudio de las propiedades no lineales de los materiales. La intensidad alta y la corta duración de los pulsos láser ultracortos crean condiciones únicas en los materiales que pueden conducir a transiciones de fase. Esto ha abierto un nuevo capítulo en el estudio de interacciones láser-materia conllevando a nuevas técnicas para su estudio, lo cual es el foco de esta tesis.

## **Sinopsis de la Tesis**

Esta tesis presenta una técnica que permite realizar estudios de la dinámica de portadores de carga en superficies metálicas y semiconductoras, utilizando una técnica de espectroscopia de resolución temporal de femtosegundos, a partir del análisis de las propiedades ópticas del material. Para investigar la naturaleza de los cambios electrónicos y estructurales inducidos por los pulsos láser, se emplea la técnica de Reflectancia y Transmitancia Termo Transitoria (TTR y TTT, de sus siglas en inglés) que permite analizar las dinámicas del electrón y la red (lattice). Los cambios en la señal de reflectancia y transmitancia medidos proporcionan una medida indirecta de ciertas propiedades del material. Al ser éste un método no invasivo, es muy atractivo para medir las propiedades térmicas de películas semiconductoras y metálicas.

Este trabajo de tesis, se encuentra dividido en cinco capítulos. El primero presenta un estudio del sistema láser empleado para la técnica de espectroscopia ultrarrápida TTR y TTT, aborda los mecanismos y fuentes de generación de pulsos ultracortos, y se da una descripción detallada de la técnica de Amarre de Modos que permite que el láser de Ti:zaf opere de manera pulsada. En el segundo capítulo se presenta la caracterización de los pulsos del láser Ti:zaf empleando la técnica de autocorrelación de intensidad. En el tercero se describe la Técnica de Reflectancia y Transmitancia Termo Transitoria (TTR y TTT respectivamente) y se hace una revisión de los procesos de excitación y relajación en semiconductores. En el cuarto capítulo se describe el montaje experimental de la técnica TTR y TTT y el programa de adquisición de datos, para finalmente llegar al último capítulo en el que se presentan los resultados y conclusiones obtenidos con ésta técnica. Se demuestra que los efectos electrónicos, manifestados en cambios de la estructura de banda, dominan durante los primeros cien picosegundos que siguen a la excitación.

En resumen, el objetivo de este trabajo consiste en el montaje y aplicación de la técnica de Reflectancia y Transmitancia Termo Transitoria (TTR o TTT). Los resultados obtenidos consisten básicamente en la generación de procesos transitorios de la Reflectancia en la superficie de una muestra de GaAs, producidos por pulsos intensos de la luz láser de femtosegundos. La señal es resuelta en tiempo por un pulso de prueba, de baja intensidad, con un ancho temporal comparable al pulso de excitación o bombeo. Los procesos físicos involucrados son estudiados y asociados con la respuesta transitoria de la señal de Reflectancia obtenida.

## **REFERENCIAS**

1. M. Y. Shen, C. H. Crouch, J. E. Carey, and E. Mazur, Appl. Phys. Lett. 85, 5694 (2004).
2. Sitio de Internet Clark-MXR, Inc ([www.cmxr.com](http://www.cmxr.com)).

## CAPÍTULO I

### PULSOS DE FEMTOSEGUNDOS

En la generación de pulsos cortos se emplean diferentes mecanismos diseñados para ser cada vez más eficientes y para lograr los pulsos más angostos posibles. Así, para producir pulsos del orden de femtosegundos en el láser de Ti:zaf se emplea la técnica de Amarre de Modos por efecto Kerr óptico, debido a las ventajas que presenta un medio activo de estado sólido. En el presente capítulo se realiza la descripción del láser Ti:zaf de femtosegundos; sistema empleado en los experimentos realizados, así como los fundamentos de operación del mismo. Se presentan los antecedentes de los mecanismos, fuentes de generación de pulsos ultracortos y una descripción detallada de la técnica de Amarre de Modos por efecto Kerr óptico en el láser de Ti:zaf.

#### I.1 Láseres Pulsados

Los láseres de pulsos ultracortos, a diferencia del láser de onda continua de luz casi monocromática, generan una secuencia de pulsos con un ancho de banda asociado de algunos nanómetros. Un ejemplo de estos es el láser de Ti:zaf el cual representa una alternativa importante como fuente de pulsos ultracortos ya que además de producir los pulsos más angostos hasta ahora logrados directamente con un oscilador, ofrece mayor estabilidad en comparación con los láseres líquidos, anteriormente utilizados para este propósito.

La mayoría de los láseres pueden operar en modo continuo (CW) y se puede lograr que cualquiera pueda operar de forma pulsada, dependiendo del mecanismo que se utilice para ello. Básicamente existen tres métodos para lograr que un láser opere de manera

pulsada: Descarga Capacitiva (excitación por descargas eléctricas o de luz), Q-switch, y Amarre de Modos (Mode Locking) [Siegman, 1986].

En el primer caso el medio activo es sometido a descargas eléctricas pulsadas a través de capacitores o bien por lámparas de Flash. El objetivo en esta técnica consiste en producir la excitación eficiente de los medios activos, procurando que el proceso sea tan rápido como la duración misma de la emisión láser, con la menor cantidad de energía aplicada, ya que la duración temporal de los pulsos láser es independiente del tiempo de aplicación del bombeo. La excitación puede llevarse a cabo de dos formas, dependiendo también del medio activo. En el caso de láseres moleculares, como el  $N_2$ , la excitación se realiza a través de impacto electrónico directo transversal con una descarga uniforme, rápida y de muy alta densidad de corriente, para lo que se emplean diferentes tipos de configuraciones de descarga capacitiva [Garduño, 1993]. En el caso de láseres de estado sólido, el bombeo es óptico a través de lámparas de flash, las cuales son excitadas a su vez por circuitos de descarga capacitiva. Con este método se han logrado pulsos que van del orden de milisegundos hasta nanosegundos.

En el caso de la técnica *Q-switching* [Siegman, 1986], se permite que el proceso de bombeo produzca una inversión de población grande mayor a la usual dentro de la cavidad, la cual se logra incrementando las pérdidas dentro de la cavidad, quitando la retroalimentación proporcionada por alguno de los espejos. Después de lograr una inversión de población grande, se restablece la retroalimentación, es decir, se restablece el factor de calidad Q del láser a su valor usual, de ahí el nombre del mecanismo.

El resultado generalmente es un pulso corto, e intenso que toma toda la energía acumulada durante el proceso de bombeo, con un ancho temporal del orden de nanosegundos hasta picosegundos dependiendo de la técnica empleada.

Los métodos para producir pulsos mediante la técnica Q-Switch son logrados principalmente por modulación electro-óptica, modulación acusto-óptica y por absorción saturable. Con esta técnica se pueden lograr pulsos de unos cuantos picosegundos.

### **I.1.1 Amarre de Modos**

En el proceso de *Amarre de Modos o Mode Locking (ML)*, que es un tipo de Acoplamiento de Modos (Mode Coupling), se provoca que los diferentes osciladores en la cavidad se pongan en fase de forma que al sumarse dan como resultado un pulso tan angosto en proporción inversa al número de modos en fase o “amarrados”. El proceso de Amarre de Modos se logra por medio de métodos electro-ópticos y mecanismos ópticos no lineales, como por ejemplo: absorbedores saturables y el efecto Kerr óptico. Con esta última técnica se han podido generar pulsos ultracortos del orden de un par de femtosegundos en la región del infrarrojo cercano, siendo la más utilizada hoy en día para generar pulsos ultracortos en un láser y es la que permite que el láser de Ti:zaf funcione en modo pulsado.

En la salida de cualquier cavidad en la cual sus modos axiales se encuentran igualmente espaciados en frecuencia, sin que necesariamente sus fases y amplitudes sean iguales, se tendrá una señal modulada periódica en el tiempo, con periodo fundamental igual al espacio entre modos adyacentes. Esta situación, sin importar si la señal varía en un periodo, se conoce en términos generales como de modos acoplados (Mode-Coupled), en la que los modos estarán acoplados de forma fija, o hasta irregular, en amplitudes y fases. Cuando todos los modos se encuentran en fase, independientemente de la amplitud, se aplica el término Amarre de Modos (Mode-Locking).

Para describir el proceso, se analizará una señal circulante en una cavidad láser descrita en el dominio de frecuencias [Siegman, 1986].

### I.1.1.1 Dominio de Frecuencias

Supongamos que en la cavidad solo oscila un modo axial, lo que quiere decir que la amplitud, la fase y la frecuencia son constantes en el tiempo. Considerando ahora que oscilan dos modos axiales, en donde el campo de salida en función del tiempo es:

$$E(t) = Re[E_1 e^{-i(\omega_1 t + \phi_1)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t + \phi_2)}] \quad (1.1)$$

donde la intensidad de salida es entonces

$$I(t) = E_1^2 + E_2^2 + 2E_1 E_2 \cos[(\omega_1 - \omega_2)t - \phi_1 - \phi_2] \quad (1.2)$$

Con  $\phi_1$  y  $\phi_2$  los ángulos de fase de los dos fasores de amplitud  $E_1$  y  $E_2$ .

La intensidad de salida variará de manera senoidal con una frecuencia de batimiento igual a la diferencia de frecuencias  $\omega_1 - \omega_2$  entre los dos modos. Si se incrementa el número de modos oscilantes a  $N$  modos axiales igualmente espaciados y con la misma amplitud y fase al tiempo  $t = t_0$ , dicho en otras palabras, se “amarran los modos”, entonces la amplitud total asociada será, de acuerdo a la ecuación anterior

$$E^{(N)}(t) = \sum_{n=0}^{N-1} E_0 e^{-i(\omega_0 - n\omega_{ax})t} = E_0 \left[ \frac{e^{iN\omega_{ax}t} - 1}{e^{i\omega_{ax}t} - 1} e^{i\omega_0 t} \right] \quad (1.3)$$

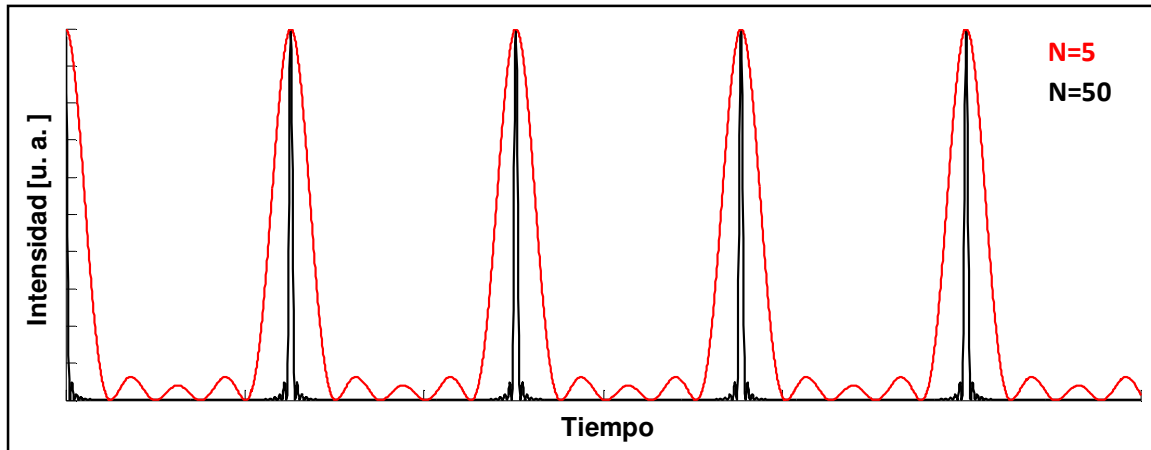
Donde  $\omega_{ax}$  corresponde a la frecuencia de oscilación axial y  $\omega_0$  a la frecuencia de oscilación al tiempo  $t = t_0$ . Con una intensidad dada por la siguiente ecuación:

$$I^{(N)}(t) = E_0^2 \frac{\text{sen}^2\left(\frac{N\omega_{ax}t}{2}\right)}{\text{sen}^2\left(\frac{\omega_{ax}t}{2}\right)} \quad (1.4)$$

El resultado serán envolventes periódicas en el tiempo traducido en un tren de pulsos cortos de modos amarrados, con anchos FWHM (Full Width at Half Maximum, es



decir,  $\tau_p$  se obtiene midiendo la anchura total del pulso a la mitad del máximo de su perfil de intensidad) de aproximadamente  $\Delta\tau_p \approx \frac{T}{N}$  cada uno, con una periodicidad de  $T = \frac{2L}{c}$  para el caso de una cavidad lineal, con  $L$  igual a la longitud total de la cavidad.



**Figura 1.1.** Tren de pulsos formados, para 5 y 50 modos amarrados.

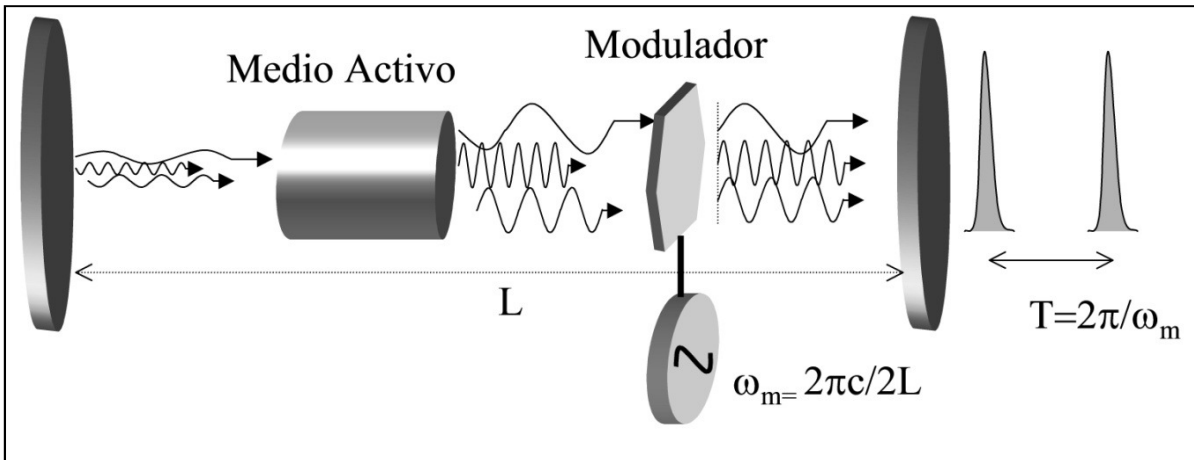
## I.2 Técnicas de Amarre de Modos

Para poder lograr la operación pulsada por medio de la técnica de amarre de modos, es necesario contar con un mecanismo de modulación para la señal circulante dentro de la cavidad, tal que nos permita empatar o amarrar las fases de los diferentes osciladores. Las técnicas de modulación utilizadas se dividen básicamente en dos grupos: *Modulación Activa* y *Modulación Pasiva*.

### I.2.1 Modulación Activa (Mode-Locking Activo)

Para este tipo de modulación intervienen elementos intracavidad electr3pticos o acust3pticos, los cuales son sincronizados cerca de la frecuencia intermodal, es decir, la frecuencia  $\omega_m$  de modulación es ajustada al tiempo de viaje redondo de la cavidad o un

múltiplo de este como lo indica la figura 1.2. Los métodos y/o dispositivos que intervienen para este tipo de modulación son básicamente la modulación de la ganancia, el bombeo síncrono y los moduladores acústico y electro-ópticos.



**Figura 1.2.** Amarre de Modos Activo

Al estar en fase todos los modos, éstos se superpondrán y entonces se producirá un tren de pulsos con una separación temporal igual a la de un viaje redondo en la cavidad. Desde el punto de vista temporal cuando inicia la oscilación láser, si un pequeño pulso llega al modulador cuando éste se encuentre en un máximo de transmitancia (modulador de amplitud), experimentará pocas pérdidas, en caso contrario se atenuará, el láser oscilará con pulsos más cortos e intensos cada vez que en un viaje redondo estos pasen a través del modulador en el momento adecuado tal como se muestra en la figura 1.3.

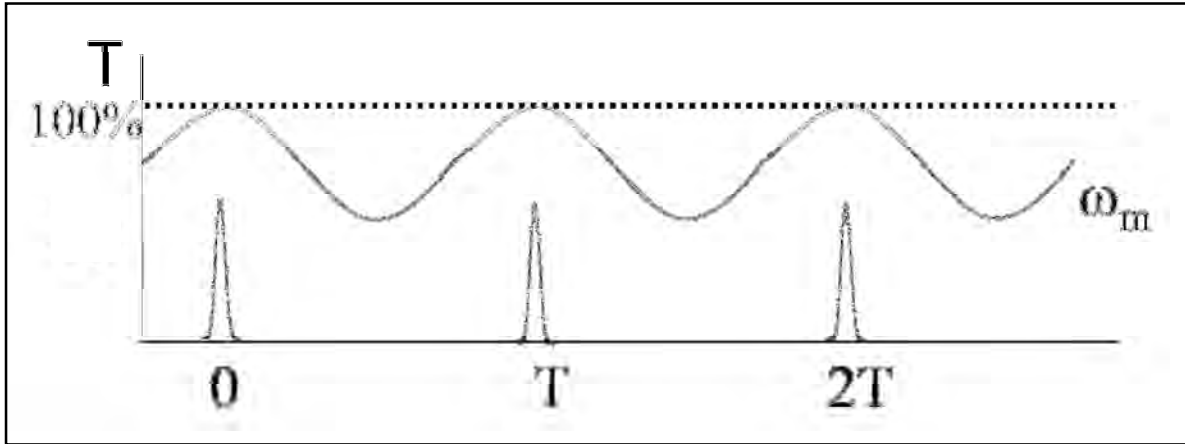


Figura 1.3. Modulador de Amplitud y tren de pulsos de salida.

El pulso en cada vuelta será más angosto, sufriendo cada vez menos pérdidas al pasar por el modulador. Al mismo tiempo el espectro del pulso se hará más ancho, y contendrá más modos axiales. Un medio activo con un ancho de banda grande podrá proporcionar ganancia a medida que el pulso se hace más angosto, pero la ganancia comenzará a decrecer a medida que el ancho espectral del pulso comienza a aproximarse al ancho de banda de amplificación del medio.

El ancho temporal para un sistema de amarre de modos activo, entonces dependerá del modulador mismo y del ancho espectral del medio de ganancia.

### I.2.2 Modulación Pasiva (Mode-Locking Pasivo)

Hasta ahora, con esta técnica se han podido lograr los pulsos más angostos del orden de dos oscilaciones ópticas [Morgener et al., 1999]. Sin embargo, resulta difícil lograr el control estable de la operación. El proceso involucrado para el amarre de modos es inherentemente no lineal y de ahí su efectividad para la obtención de pulsos ultracortos. La

técnica consiste en aprovechar la radiación del mismo medio, así como las fluctuaciones de la misma. Las fluctuaciones o el ruido, pueden ser originadas por medio de perturbaciones externas, o bien debido a las fluctuaciones de la emisión espontánea al arranque del proceso de emisión. Las fluctuaciones presentan ciertos picos de mayor intensidad que otros, los cuales pueden ser transformados en pulsos potentes a través de mecanismos de saturación, modulación de ganancias o pérdidas. En láseres de bombeo continuo, el ruido se debe a la emisión espontánea del medio activo, durante esta la potencia de bombeo tiene que exceder cierto umbral para que se produzca una transición del ruido a un pulso, el cual posteriormente será sometido a ciertos procesos de compresión que llevan a este de escalas del orden de ps a fs. El proceso tiene cierto límite ya que existen ciertos mecanismos de ensanchamiento del pulso que evitan su compresión de manera indefinida en la cavidad. El principal mecanismo de ensanchamiento lo presenta la limitación del ancho de banda de la cavidad definida por el ancho espectral de los modos por arriba de la línea de pérdidas.

Otros mecanismos que provocan el ensanchamiento provienen de la dispersión de orden superior producida por los elementos ópticos y de los efectos no lineales, tales como la saturación por absorción y el efecto Kerr óptico (Apéndice A), el cual entre otros efectos provoca automodulación de fase, que se traduce en dispersión cuando el pulso viaja a través de algún medio material.

Otro factor limitante en el ensanchamiento espectral se encuentra relacionado directamente con el ancho de banda limitado de los recubrimientos dieléctricos en los espejos que componen la cavidad del resonador.

### **I.2.2.1 Amarre de Modos por Absorción Saturable**

Un absorbedor saturable es un elemento que al colocarlo dentro de una cavidad láser introduce pérdidas selectivas que suprimen las componentes de baja intensidad o de continua del campo eléctrico, mientras que para las componentes de mayor intensidad se

satura haciéndose más transparente y las pérdidas son mucho menores. Podemos distinguir entre dos tipos de dispositivo según se comporte como absorbedor saturable lento o rápido. En el primer caso el absorbedor sólo atenúa la parte frontal del pulso. A partir de cierta intensidad el absorbedor se satura y debido a que el tiempo de recuperación es grande, el resto del pulso se transmite prácticamente igual. Hace falta un mecanismo adicional para atenuar la amplitud de la cola del pulso. Si la ganancia del medio láser se satura con la llegada de la parte delantera del pulso, entonces la parte trasera verá una ganancia mucho menor (o nula) y no será amplificada. De este modo se obtienen pulsos de duración menor que el tiempo de recuperación del absorbedor saturable [Siegman, 1986].

El funcionamiento con absorbedores saturables rápidos es más sencillo. En este caso el absorbedor atenúa tanto la parte delantera como la parte trasera del pulso. Como la ganancia del medio no se satura, la duración final de los pulsos será, en el mejor de los casos, igual al tiempo de recuperación del absorbedor. Si lo que queremos son pulsos muy cortos será necesario que el tiempo de recuperación del absorbedor sea igualmente corto.

Para obtener un amarre de modos estable, la absorción saturable y la ganancia deben recuperar su valor inicial antes de que el pulso concluya un viaje redondo.

De esta forma el amarre de modos pasivo depende de una combinación entre la energía del pulso, el bombeo, las pérdidas en la cavidad, los valores iniciales de energías de saturación, tanto de la ganancia así como de la absorción saturable, y el tiempo de recuperación de ambas, respecto al tiempo de viaje redondo del pulso. Aunque los tiempos de respuesta de los absorbedores son en general rápidos, es el tiempo de recuperación lo que restringe el ancho de pulsos, así como el de ganancia. La reducción de los pulsos también dependerá de la intensidad de entrada.

A partir de ahora nos enfocaremos en describir la técnica que emplea el láser de Ti:zaf, es decir la técnica de amarre de modos por efecto Kerr Óptico (KLML, de sus siglas en inglés), la cual permite la generación de pulsos de femtosegundos.

### **I.2.2.2 Amarre de Modos en Medios Kerr**

Las no linealidades ópticas más rápidas son reactivas y no resonantes, es decir, su índice de refracción no lineal puede llegar a tener tiempos de respuesta del orden de unos cuantos femtosegundos, y para propósitos prácticos son independientes de la longitud de onda. Sin embargo, aunque son rápidas son relativamente débiles. Por este motivo su aplicabilidad fue restringida a sistemas pulsados, hasta la aparición de láseres continuos de estado sólido de alta potencia.

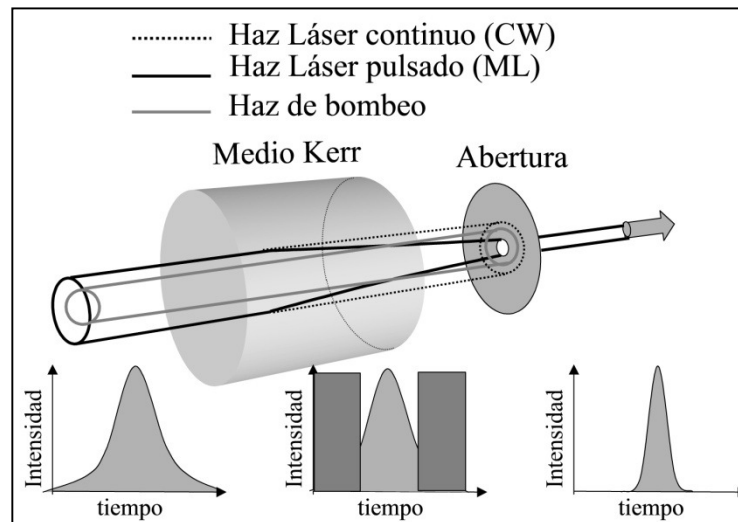
Estos mecanismos basan su principio de operación en la producción de pérdidas intracavidad de la amplitud de la señal, de tal manera que dichas pérdidas decrecen instantáneamente con la intensidad, no necesitan disipar la potencia, ya que no la absorben sino que la deflecan fuera de la cavidad láser. Los cambios en el índice de refracción con la intensidad son convertidos en modulación de amplitud.

El efecto Kerr óptico, descrito en el apéndice A, es un efecto no resonante y no lineal, con una respuesta temporal del orden de femtosegundos producido por la polarización electrónica en el material, con una débil dependencia con la longitud de onda. Estas características permiten la generación de pulsos ultracortos. El efecto Kerr óptico provoca automodulación de fase temporal y por consiguiente la modulación espacial del frente de onda, que su vez produce autoenfocamiento (Self-Focusing, descrito también en el apéndice A).

El autoenfocamiento producido con modulaciones no lineales de la fase en el medio de ganancia, se traducen en modulaciones de amplitud. Bajo ciertas condiciones se puede

lograr favorecer a los modos oscilantes de mayor intensidad. La modulación de amplitud se puede lograr de dos formas: una es modulando las pérdidas, y la otra modulando la ganancia.

En el caso de la modulación de pérdidas, el autoenfocamiento puede guiar al haz láser de mayor intensidad que se sustenta en la cavidad, de una forma más eficiente a través de una abertura “dura” ubicada en cierta posición particular en la cavidad, tal como se muestra en la figura 1.4. El haz de baja potencia (CW) al no haber sido afectado en su fase espacial por el proceso de autoenfocamiento, seguirá la misma trayectoria que el haz pulsado, pero con radios de curvatura del frente de onda, y tamaños de haz diferentes a lo largo de toda la cavidad.



**Figura 1.4.** Amarre de Modos por Efecto de Lente Kerr (KLML).

La abertura es colocada en una posición en la que el haz pulsado tenga menor diámetro que el haz continuo, de tal forma que este último sea bloqueado. De esta forma se producirán mayores pérdidas para la operación continua y pocas pérdidas para la operación pulsada. Tal como sucede con un absorbedor saturable rápido, en el cual también se modulan las pérdidas.

En el caso de la modulación de ganancia, nuevamente el autoenfocamiento producirá un efecto conocido como abertura “suave”, definida por la sección transversal de traslape entre el volumen de ganancia generada por el haz de bombeo y el haz láser. Se producirá modulación en la ganancia al cambiar el grado de traslape o acoplamiento entre el haz de bombeo y el haz láser, considerando además que existe una distribución gaussiana de intensidad en el haz de bombeo, en donde la mayor parte de la energía y por consecuencia la ganancia, se encontrará al centro del haz. Por otro lado, la reducción del tamaño del haz láser debido a los modos más intensos autoenfocados, se producirá un incremento de intensidad en el medio de ganancia, y con ello una mayor saturación del mismo. El mecanismo será favorable a los modos amarrados de mayor intensidad y la oscilación continua será dominada y prevenida por completo.

Después de realizar algunas vueltas alrededor de la cavidad, un pico de ruido será más intenso y de acuerdo a las condiciones de alineación y compensación de la dispersión de la velocidad de grupo (GVD), experimentará mayor ganancia en cada viaje redondo completo. El resultado final, después de varias vueltas a la cavidad, es un pulso ultracorto cuya duración final dependerá del ancho de banda y de la dispersión total dentro de la cavidad.

Desde su descubrimiento [Spence et al, 1991], el Amarre de Modos por efecto de Lente Kerr es la técnica más utilizada para producir pulsos ultracortos con láseres de estado sólido, sin embargo, cuenta con algunas desventajas con respecto a las otras técnicas de Amarre de Modos. Una es el débil mecanismo de arranque del proceso, debido a que el autoenfocamiento es efectivo sólo para intensidades pico altas, las fluctuaciones de ruido normales en láseres bombeados de forma continua no alcanzan las intensidades necesarias para la generación de pulsos a través del efecto Kerr.

El autoarranque en un láser del tipo KLML se ha logrado con láseres de Ti:zaf bajo ciertas condiciones de alineación cerca de los límites de estabilidad. Con el objetivo de lograr el autoarranque, también se han utilizado un gran número de diseños de cavidad



que incluyen por ejemplo: colorantes líquidos actuando como absorbedores saturables, moduladores acusto ópticos, espejos o elementos intracavidad vibratorios, y bombeo sincronizado. Todas estas técnicas básicamente lo que hacen es amplificar los picos de ruido inicial para iniciar la formación de los pulsos.

Por otro lado, el mismo efecto Kerr óptico al producir autoenfocamiento, y con ello un incremento en la intensidad, provocará un cambio en el índice de refracción y una modulación de la frecuencia instantánea. Este último proceso conocido como "Chirp" o automodulación de fase no es deseable, debido a que las diferentes frecuencias se esparcen en tiempo, llevando a una operación inestable del láser. Sin embargo, la generación de nuevas componentes en la frecuencia, combinada con un proceso de compensación por dispersión adecuada, es lo que permitirá una compresión posterior del pulso. El objetivo entonces es el arreglar esas componentes en tiempo de tal forma que interfieran y reduzcan la energía en la parte delantera y trasera del pulso, e incrementar la energía en la parte central del pulso. Esto producirá una reducción en el ancho temporal del pulso y estabilizará la operación del láser.

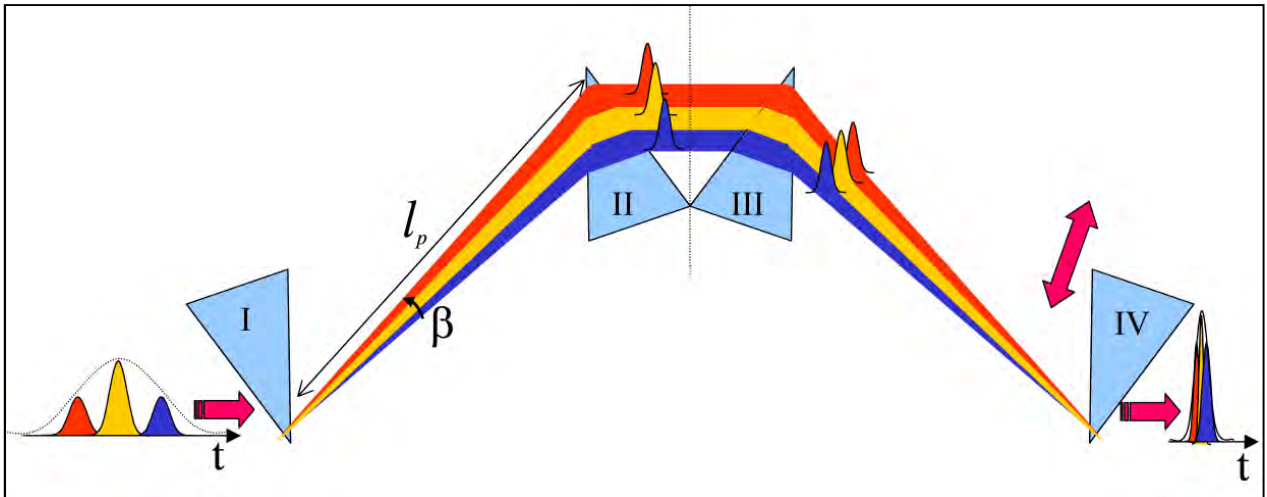
### **I.2.2.3 Compresión de los pulsos**

Un mecanismo que permite el arreglo de las diferentes componentes de frecuencias para formar un pulso corto hasta el orden de femtosegundos, es la llamada dispersión de la velocidad de grupo (GVD de sus siglas en inglés), que produce que diferentes longitudes de onda viajen a diferentes velocidades en un medio dispersivo. La combinación de la automodulación de fase (Self-Phase Modulation o SPM) y la dispersión de la velocidad de grupo (GVD) no se pueden evitar en un láser de femtosegundos, debido a una consecuencia natural de las propiedades de los pulsos ultracortos, y de la naturaleza dispersiva de la materia a través de la cual la luz se propaga.

Al igual que un arreglo de lentes que en combinación pueden ser utilizados para modificar la luz espacialmente, un medio de ganancia saturable y una pérdida saturable pueden ser utilizadas para modificar la luz temporalmente, a través de la automodulación de fase y la dispersión de la velocidad de grupo.

Para crear pulsos ultracortos en un láser, de alguna forma se procura que la automodulación de fase produzca un incremento en la frecuencia del pulso de manera suave y regular sobre todo el pulso, y que la dispersión de la velocidad de grupo produzca que la velocidad de las diferentes componentes de frecuencias se incremente de manera suave y regular a como se incrementa la frecuencia. Si estos procesos son debidamente balanceados, el efecto neto será la compresión del pulso.

En el caso del láser de Ti:zaf se requiere compensar el efecto de la automodulación de fase que se produce, dispersión de velocidad de grupo negativa [Fork et al, 1990], es decir, se requiere de un proceso en el que las longitudes de onda azules se propaguen más rápido que las rojas. El mecanismo consiste entonces en utilizar una secuencia de cuatro prismas, que al igual que una rendija, provocan que las diferentes componentes de frecuencia de la luz viajen en diferentes direcciones, y que la dirección de propagación cambie de forma suave y regular con la frecuencia (dispersión angular negativa). En las regiones que esto ocurre, los colores azules viajan más rápido que los otros colores. Un ajuste fino de la compensación se realiza cambiando la cantidad de vidrio o material dispersivo (dispersión positiva), desplazando de forma paralela uno de los prismas hacia atrás o adelante (Prisma IV), tal como se muestra en la figura 1.5.



**Figura 1.5.** Dispersión de la velocidad de grupo negativa

Un pulso de luz con las longitudes de onda azules retrasadas respecto a las rojas sufrirá, debido al primer prisma, una dispersión angular de las diferentes componentes de frecuencia; un segundo prisma redirecciona a las componentes de frecuencia para que viaje de nuevo en la misma dirección; debido a que los colores azules viajan más rápido que los rojos dentro del prisma, estos son atrapados, y con una separación  $l$  entre prismas adecuada, los diferentes colores viajan en la misma dirección, pero separados espacialmente. Debido a que esto previene la formación de un pulso corto, un segundo par de prismas es utilizado con el fin de reagrupar de nuevo a las componentes. Esto tiene el efecto adicional de corregir de manera aditiva las posiciones temporales de los diferentes colores.

#### I.2.2.4 El Láser de Titanio-Zafiro

Hasta ahora hemos visto los mecanismos encargados de la generación de pulsos ultracortos en un láser. En lo que sigue nos dedicaremos al láser de Ti:zaf, esto es, sus características particulares que lo han convertido en la fuente de luz láser de femtosegundos más utilizada, incluido el presente trabajo de tesis.

El láser de Ti:zaf es un láser del tipo que funciona mediante el Autoamarre de Modos por efecto Kerr óptico. El láser de Ti:zaf tiene el rango de sintonizabilidad más amplio de los láseres de estado sólido conocidos hoy en día, con longitudes de onda posibles ente los 670 y 1100 nm. Son muy eficientes con un rendimiento cuántico de hasta el 80% a temperatura ambiente.

$Al_2O_3:Ti^{3+}$ , es un cristal de Zafiro (elemento huésped) con impurezas de Titanio (encargado de la emisión) en una cantidad de alrededor de 0.1 %, que combinados representa un material de extraordinarias propiedades ópticas y físicas para ser utilizado como medio activo en un láser de femtosegundos.

Con un ancho de emisión muy amplio, resistencia térmica, mecánica y una no linealidad de tercer orden capaz de producir modulación temporal y espacial de fase (efecto Kerr óptico), este láser desplazó a los láseres líquidos de colorante. La línea de absorción del Ti:zaf se encuentra centrada a 490 nm, lo que lo convierte en un medio ideal para ser bombeado por láseres de: Argón, Nd:YAG y Nd:YLF doblados en frecuencia, y láseres de vapores de cobre. Debido al tiempo de vida media de 3.2  $\mu s$  puede ser bombeado de manera efectiva por lámparas de flash en sistemas láser pulsados de alta potencia.

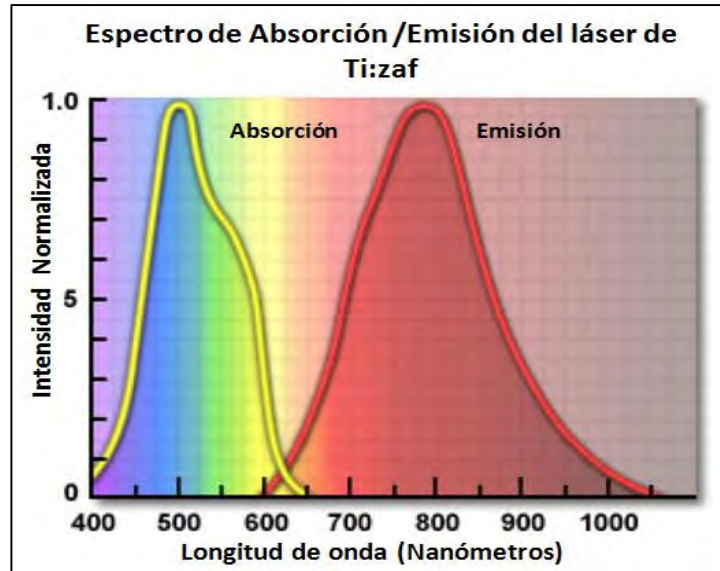


Figura 1.6. Espectros de absorción y de emisión del láser de Titanio-Zafiro

Las características físicas del cristal se muestran en la Tabla 1.1.

| Propiedades Físicas            |   | Propiedades Láser                 |                                   |
|--------------------------------|---|-----------------------------------|-----------------------------------|
| Fórmula química                | $Ti^{3+}:Al_2O_3$                           | Acción Láser                      | 4 niveles                         |
| Estructura                     | Hexagonal                                   | Tiempo de Vida Media ( $\tau_2$ ) | $3.2\mu s$ (T=300K)               |
| Densidad                       | $3990 \frac{Kg}{m^3}$                       | Intervalo de Emisión              | 660-1050nm                        |
| Dureza                         | 9   | Intervalo de Absorción            | 400-600nm                         |
| Conductividad Térmica          | $40.19 \frac{J}{msK}$                       | Pico de Emisión                   | 795 nm                            |
| Difusividad Térmica            | $1.3 \times 10^{-5} m^2 s^{-1}$             | Pico de Absorción                 | 488 nm                            |
| Calor Específico               | $775 \frac{J}{kgK}$                         | Índice de Refracción              | 1.76 @ 800nm                      |
| Temperatura de Fusión          | 2050°C                                      | Sección Transversal ( $\sigma$ )  | $3.5 \times 10^{-23} m^2$         |
| $((\Delta n)/(\Delta \theta))$ | $1 \times 10^{-6} \left(\frac{1}{K}\right)$ | Intensidad de Saturación          | $3 \times 10^9 \frac{W}{m^2}$     |
| Parámetro GVD ( $k_l''$ )      | $5.794 \times 10^{26} \frac{s^2}{m}$        | Índice de Refracción No Lineal    | $3 \times 10^{-20} \frac{m^2}{W}$ |

Tabla 1.1. Características del cristal  $Al_2O_3:Ti^{3+}$

Con este cristal como medio activo, elementos ópticos intracavidad adecuados y con cierta alineación muy particular es posible obtener, a partir de una emisión continua,

un tren de pulsos ultracortos con frecuencia de repetición que dependerá de la longitud de la cavidad.

A continuación se muestra la cavidad del sistema láser empleado en nuestro experimento de espectroscopia de resolución temporal, un láser de Ti:zaf (MIRA Optima 900, Coherent) bombeado por un láser de Argón de 8 Watts (Innova 300, Coherent). Este modelo de láser comercial de Ti:zaf es sintonizable entre 700 y 980 nm con una frecuencia de repetición de los pulsos de 76 MHz. El láser es capaz de emitir pulsos con una duración de hasta 130 fs.

Este consiste de una cavidad de onda estacionaria, con un filtro birrefringente (BRF) y un par de prismas que proporcionan la dispersión del pulso. El efecto de lente Kerr se alcanza con la abertura regulable de la ranura situada cerca del acoplador de la salida.

### Mira Optima 900-F / Mira 900-S

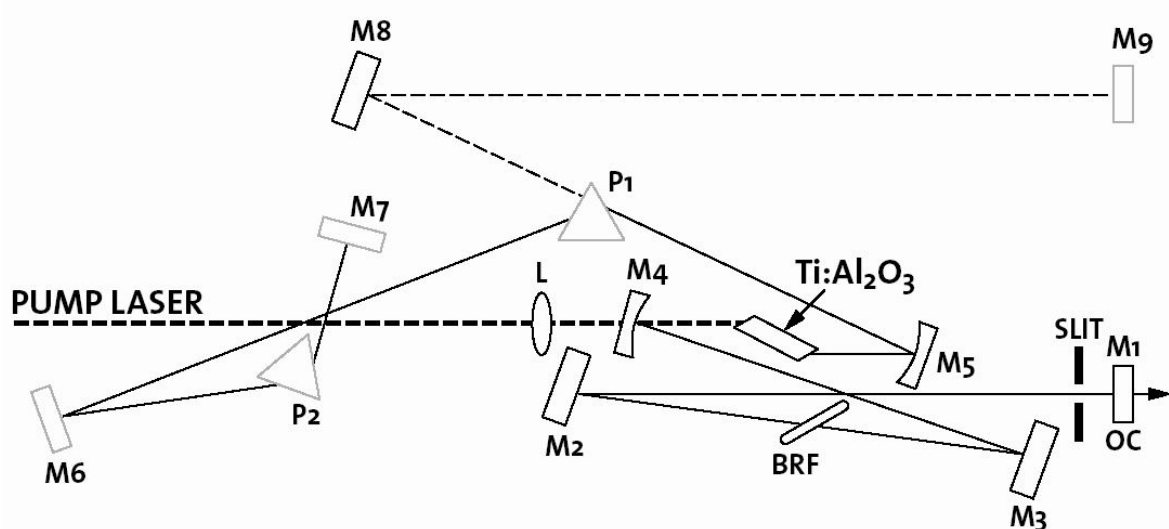


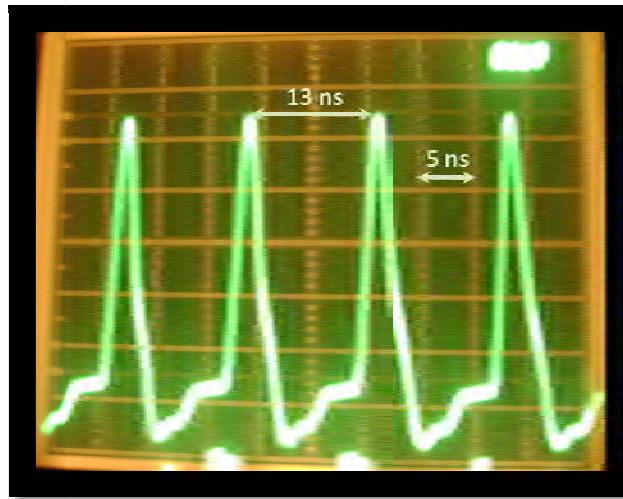
Figura 1.7. Cavidad del láser de Ti:zaf (MIRA 900-F).

A continuación una breve descripción:

El haz de bombeo entra por la izquierda y se enfoca con una lente (L), pasa por un espejo cóncavo (M<sub>4</sub>) y continúa hacia el cristal de Ti:zafiro. La fluorescencia emitida es

colectada por el espejo cóncavo  $M_5$ , y dirigida hacia el prisma  $P_1$ , el espejo  $M_6$ , el prisma  $P_2$ , el espejo  $M_7$  y regresa por el mismo camino hasta el cristal. Finalmente se refleja en los espejos  $M_4$  y  $M_3$ , pasa por el filtro birrefringente (BF), se refleja en  $M_2$ , pasa entre la apertura (SLIT), y una parte de la potencia se transmite al exterior por el acoplador de salida OC (Output Coupler). Los espejos  $M_8$  y  $M_9$  forman una cavidad auxiliar cuya función es facilitar la alineación de la cavidad principal.

La siguiente figura muestra una sección del Tren de Pulsos medida directamente con un fotodiodo de 1 ns de tiempo de respuesta.



**Figura 1.8.** Tren de Pulsos del láser Ti:zaf.

La separación correspondiente entre pulso y pulso corresponde a  $\sim 13$  ns.

### I.3 CARACTERÍSTICAS DE LOS PULSOS

Los pulsos ópticos y los trenes de pulsos ópticos regulares se pueden caracterizar en varios aspectos:

La *frecuencia de repetición o tasa de repetición*  $f_{rep}$  del pulso o tren regular se define como el número de pulsos emitidos por segundo, o el inverso del periodo  $T$ :

$$f_{rep} = \frac{1}{T} \quad (1.5)$$

Esta es usualmente medida con un fotodiodo de respuesta rápida y un osciloscopio.

La *duración del pulso* también llamado *ancho del pulso* y denotado como  $\Delta\tau$  se mide con respecto al ancho total del pulso a la mitad del máximo de su perfil de intensidad (FWHM).

Es importante mencionar que debido a que no existe un dispositivo electrónico capaz de resolver un pulso de femtosegundos es necesario medirlos con técnicas alternativas que involucran electrónica y óptica, en particular óptica no lineal. La duración del pulso se puede medir por varios métodos, descritos algunos de ellos en el capítulo 2.

El ancho del pulso mínimo  $\Delta\tau_{min}$  que se puede lograr para un determinado ancho de banda  $\Delta\nu$  cumplen con la relación:

$$\Delta\tau_{min}\Delta\nu = \frac{2\ln 2}{\pi} \approx 0.44 \quad (1.6)$$

Otra característica es la *energía del pulso*, que es simplemente el contenido de energía total óptica de un pulso, y es posible calcularla con la potencia promedio del pulso y la frecuencia de repetición. Es decir,

$$E_{pp} = \frac{P_{prom}}{f_{rep}} \quad (1.7)$$



Con la energía del pulso y con la duración del pulso se puede estimar la potencia pico correspondiente como:

$$P_{pico} = \frac{E_{pp}}{\Delta\tau} \quad (1.8)$$

Para un haz gaussiano con potencia óptica pico  $P_{pico}$  y radio  $w$  del haz gaussiano, la intensidad pico es:

$$I_{pico} = \frac{P_{pico}}{\pi w^2} = \frac{P_{pico}}{\text{área}} \quad (1.9)$$

En términos de la resolución espacial, un pulso con ancho temporal  $\Delta\tau$  tendrá una resolución espacial correspondiente  $\Delta\delta$ :

$$\Delta\delta = c\Delta\tau \quad (1.10)$$

Donde  $c$  representa la velocidad de la luz.

## REFERENCIAS

1. A. Siegman, *Lasers*, Primera Edición. University Science Books (1986).
2. J. Garduño Mejía, *Caracterización óptica y eléctrica de un láser de  $N_2$  excitado con circuito de transferencia de descarga capacitiva*, Tesis de Licenciatura UNAM (1993).
3. U. Morgener, F. X. Kärtner, S.H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J.G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow and T. Tschudi, *Sub-two-cycle pulses from a Kerr-Lens mode locked Ti:sapphire laser*, Optics Letters 24, 411 (1999).
4. D. E. Spence, P. N. Kean, W. Sibbett, *60-fsec generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser*, Optics Letters 16, 42-44 (1991).
5. R. L. Fork, J. A. Valdmanis, *Ultrashort Light Pulses*, American Scientist 78, 216-223 (1990).

## CAPÍTULO 2

### CARACTERIZACIÓN DE LOS PULSOS

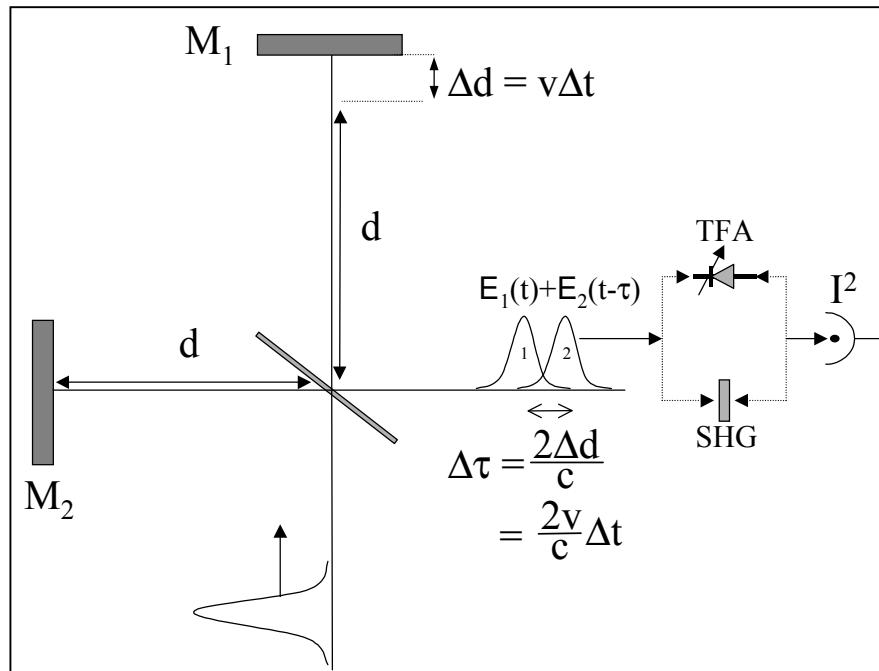
Este capítulo tiene como objetivo la caracterización de los pulsos ultracortos del láser de Titanio-Zafiro. Para dicha caracterización se emplean dos diferentes técnicas, la autocorrelación de intensidad utilizando la generación de segundo armónico (SHG) y la autocorrelación de interferencia por absorción de dos fotones (TPA). Con estas técnicas es posible estimar la duración de los pulsos suponiendo un tipo de perfil de intensidad determinado. A lo largo del capítulo se hace una descripción de la técnica de autocorrelación abordando los principios y métodos para la obtención de las características del pulso, para finalmente presentar las medidas experimentales obtenidas.

#### II.1 AUTOCORRELACION DE 2° ORDEN (SHG Y TPA)

Debido a que no existen dispositivos electrónicos lo suficientemente rápidos para resolver un pulso de femtosegundos, se utilizan técnicas alternativas que involucran básicamente arreglos interferométricos, espectrométricos y elementos ópticos no lineales.

Por su versatilidad la autocorrelación de intensidad es uno de los métodos más usados para medir pulsos ultracortos. En esta técnica un pulso descrito por  $E(t)$  y una réplica del mismo, retardada un tiempo  $t = \tau$ , son recombinados en un elemento no lineal y posteriormente la señal producida por la recombinación es integrada por un detector lineal con una respuesta temporal ordinaria (nanosegundos ó microsegundos).

El arreglo del autocorrelador consiste básicamente en un interferómetro de tipo Michelson, como se muestra en la figura 1. En este un pulso incidente es dividido en amplitud por un divisor de haz delgado, típicamente de 50%-50%.

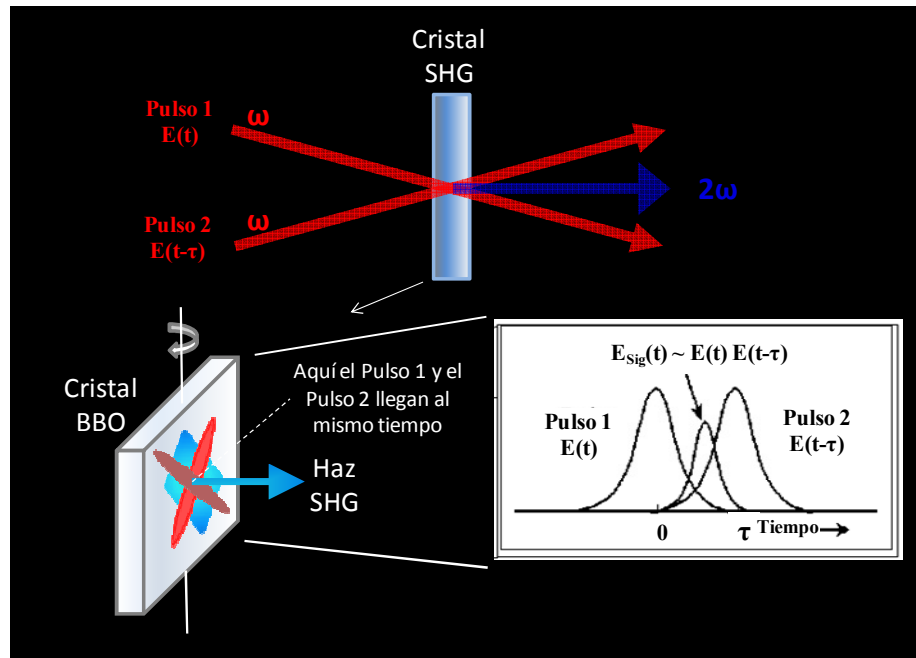


**Figura 2.1.** Autocorrelador

Los dos pulsos son nuevamente recombinados con un tiempo de retardo relativo  $\tau$ . El ancho del pulso de salida es medido de forma indirecta a partir de procesos ópticos no lineales, midiendo el grado de traslape entre pulsos, a través de la detección de la energía total producida por la suma de frecuencias de segundo armónico (SHG) del cristal o a través de la fotocorriente producida por la absorción de dos fotones (TPA) en un fotodiodo de baja absorción lineal (Apéndice A).

Para la generación de segundo armónico en nuestro arreglo, se empleó un cristal de BBO (Beta-Barium Borate) de  $100 \mu\text{m}$  de espesor. Este cristal está diseñado para convertir longitudes de onda de  $800 \text{ nm}$  a  $400 \text{ nm}$ , por lo que los pulsos deben de estar centrados alrededor de esta longitud de onda.

Cuando los dos haces con frecuencia fundamental (@800 nm) inciden en el cristal de SHG, dos fotones se combinarán y darán lugar a uno de 400 nm [Boyd, 2002]. Por otro lado un proceso inverso puede ser obtenido con un fotodiodo o LED con una longitud de onda de emisión determinada [Reid et al, 1998]. En este caso dos fotones a 800nm serán capaces de excitar un electrón de la banda de valencia a la banda de conducción.



**Figura 2.2.** Proceso de Generación de Segundo Armónico (SHG).

La intensidad de salida del cristal BBO o la absorbida por el detector será proporcional al producto de las intensidades instantáneas de los pulsos traslapados. Por lo que la señal observada por el detector será proporcional al producto de las intensidades instantáneas de cada pulso por el área  $A$  del detector, integrada en el tiempo:

$$S(\tau) \propto A \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t + \tau)dt \equiv G^{(2)}(\tau) \quad (2.1)$$

Donde  $G^{(2)}(\tau)$  es conocida como la función de autocorrelación de intensidad de segundo orden.

De la expresión del campo eléctrico para cada uno de los pulsos que inciden suponiendo de manera colineal en el detector

$$E(t) = E_0(t)e^{i\phi(t)}e^{i\omega t} \quad (2.2)$$

$$E(t + \tau) = E_0(t)e^{i\phi(t+\tau)}e^{i\omega(t+\tau)} \quad (2.3)$$

se tiene que el campo total será:

$$E_{Total} = E(t) + E(t + \tau) \quad (2.4)$$

por lo que la intensidad será:

$$I = |E_{Total}(t, \tau)|^2 = E_0^2(t) + E_0^2(t + \tau) + E_0(t)E_0(t + \tau) \cos(\Delta\phi - \omega\tau) \quad (2.5)$$

donde  $\Delta\phi = \phi(t) + \phi(t + \tau)$ . Sustituyendo en la ecuación (2.1), correspondiente a las señales detectadas provenientes del cristal BBO y considerando que las intensidades incidentes son iguales, tenemos

$$S(\tau) \propto A \int_{-\infty}^{\infty} I^2 dt = A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) + E_0^4(t + \tau) + 4E_0^2(t)E_0^2(t + \tau) \cos(2\omega\tau) + 4[E_0^3(t)E_0(t + \tau) + E_0(t)E_0^3(t + \tau)] \cos(\omega\tau) dt \quad (2.6)$$

Para valores grandes del retardo ( $\tau \rightarrow \infty$ ) no hay traslape temporal entre los pulsos, por lo que los términos cruzados serán cero. Por otro lado, como ambos pulsos son iguales independiente del tiempo de retraso, se cumple la siguiente condición:

$$\int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt = \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t + \tau) dt \quad (2.7)$$

$$\Rightarrow S(\infty) \propto 2A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt \quad (2.8)$$

Cuando el retardo es cero ( $\tau = 0$ ) la señal de autocorrelación es máxima, por lo que:

$$S(0) \propto 16A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt \quad (2.9)$$

Y la razón de contraste es decir, la relación entre máximo y la señal de fondo será:

$$\frac{S(0)}{S(\infty)} = \frac{16A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt}{2A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt} = \frac{8}{1} \quad (2.10)$$

La señal de autocorrelación oscila de máximo a mínimo cuando  $\tau$  cambia  $\pm \frac{\pi}{\omega}$ , es decir, la señal es igual a cero

$$S\left(\tau = \pm \frac{\pi}{\omega}\right) \propto A \int_{-\infty}^{\infty} [2E_0^4(t) + 6E_0^4(t) - 8E_0^2(t)E_0^2(t)] dt = 0 \quad (2.11)$$

Para valores de retardo en donde los pulsos se traslapan, los términos de interferencia causarán una oscilación en la señal. El resultado es entonces franjas de interferencia, con razón de contraste pico a fondo de 8:1, conocida como *Autocorrelación de Interferencia*.

La separación temporal entre franjas es  $\Delta\tau = \frac{2\pi}{\omega}$ , entonces si el interferómetro que se emplea para la medición de estas funciones no pueden resolver las franjas, es decir no cumple la condición:

$$\Delta x = c\Delta\tau = c \frac{2\pi}{\omega} = \lambda \quad (2.12)$$

donde  $\Delta x$  es el paso del desplazamiento de uno de los brazos para la generación de retardo, o bien el sistema de detección no tienen un tiempo de respuesta lo suficientemente rápido como para resolver las franjas de interferencia, los términos coseno se promediarán a cero, resultando entonces, una relación de contraste dada como:

$$\frac{S(0)}{S(\infty)} = \frac{6A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt}{2A \int_{-\infty}^{\infty} E_0^4(t) dt} = \frac{3}{1} \quad (2.13)$$

para este caso a la función  $S(\tau)$  se le conoce como *Autocorrelación de Intensidad*. Una medida equivalente a la Autocorrelación de Intensidad es obtenida cuando la incidencia de pulsos al elemento no lineal es no colineal, es decir, la señal será libre de franjas de interferencia.

### II.1.1 Calibración

En el autocorrelador mostrado en la figura 1, ambos pulsos recorren distancias diferentes, debido a que la longitud de los brazos es diferente. Uno de los pulsos recorre una distancia de ida y vuelta al divisor de  $2(\Delta d + d)$ , mientras que el otro recorre una distancia de ida y vuelta de  $2d$ . La diferencia o retraso de tiempos entre los dos pulsos será por lo tanto

$$\Delta\tau = \frac{2\Delta d}{c} \quad (2.14)$$

Por otro lado si la distancia  $\Delta d$  es variable, es decir, si el espejo  $M_2$  se desplaza a una velocidad  $v$  (constante) en un tiempo  $t$ , entonces

$$\Delta d = v\Delta t \quad (2.15)$$

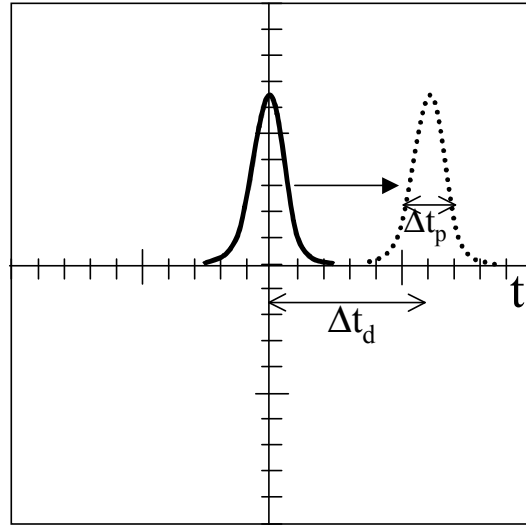
Sustituyendo en la ecuación 2.14, tenemos

$$\Delta\tau = \left(\frac{2v}{c}\right)\Delta t \quad (2.16)$$

es decir, un desplazamiento  $\Delta d$  en un tiempo  $\Delta t$ , implica una diferencia en tiempos para los dos pulsos de  $\Delta\tau$ . La diferencia  $\Delta t$  puede ser del orden de *ns* o mayor, en tanto que  $\Delta\tau$  es del orden de femtosegundos, con un factor de calibración igual a  $\frac{2v}{c}$ . De esta forma desplazamientos espaciales en el orden de micras, que se traducen en diferencias temporales de femtosegundos, es lo que nos permite medir los anchos temporales de los pulsos ultracortos de una forma indirecta.



Otra forma de calibrar se hace manteniendo el espejo  $M_1$  en movimiento continuo a través de un motor oscilatorio, se desplaza  $M_1$  una distancia  $\Delta D$  (del orden de unas cuantas micras) y se observa el desplazamiento temporal  $\Delta t_d$  (tiempo real) de la señal de autocorrelación directamente en el osciloscopio, como se muestra en la figura 2.3.



**Figura 2.3.** Desplazamiento de la señal de autocorrelación al mover el espejo  $M_2$ .

El desplazamiento  $\Delta D$  del espejo  $M_2$  produce un desplazamiento temporal  $\Delta \tau_d$  (del orden de femtosegundos) entre los dos pulsos de acuerdo a

$$\Delta \tau_d = \left( \frac{2\Delta D}{c} \right) \quad (2.17)$$

El ancho de la autocorrelación de los pulsos es  $\Delta \tau_p$  (del orden de femtosegundos), debe ser proporcional al ancho de autocorrelación  $\Delta t_p$  medida en el osciloscopio. De igual forma la diferencia de tiempos  $\Delta \tau_p$  producida al desplazar  $M_2$ , debe ser proporcional al desplazamiento temporal  $\Delta t_d$  medido en el osciloscopio. De esta forma

$$\frac{\Delta \tau_p}{\Delta \tau_d} = \frac{\Delta t_p}{\Delta t_d} \quad (2.18)$$

de donde

$$\Delta\tau_p = \Delta\tau_d \frac{\Delta t_p}{\Delta t_d} = \left(\frac{2\Delta D}{c}\right) \frac{\Delta t_p}{\Delta t_d} \quad (2.19)$$

Para estimar una autocorrelación con anchos temporales del orden de femtosegundos, será suficiente con medir el ancho temporal  $\Delta t_p$  de la autocorrelación en el osciloscopio, medir el desplazamiento temporal  $\Delta t_d$  producido por el desplazamiento del espejo  $M_2$  y el desplazamiento  $\Delta D$  del mismo.

## II.2 Medida de la Autocorrelación de Intensidad

En la sección anterior se mencionaron los dos tipos de autocorrelación (de intensidad e interferométrica), así como la calibración que nos permite obtener las características del pulso mediante esta técnica. En lo que sigue se describirá el procedimiento para obtener la duración de los pulsos a partir de las medidas experimentales, para el tipo de autocorrelación de intensidad y posteriormente para la autocorrelación interferométrica.

Primero se determina el criterio para la medida del ancho temporal que en nuestro caso es el del ancho total a la mitad de la señal de intensidad (FWHM) de la traza de autocorrelación. El FWHM de la autocorrelación está relacionado por un factor de  $1/\sqrt{2}$  con respecto al FWHM del perfil de intensidad del pulso suponiendo en este caso un perfil gaussiano.

Para obtener el ancho del pulso será necesario realizar una calibración de la escala de tiempos en la pantalla del osciloscopio. De encontrarnos en la posición central de oscilación del espejo móvil  $M_1$  los caminos ópticos entre ambos brazos del autocorrelador serán idénticos y se tendrá una señal de autocorrelación como en la figura 2.3.

El siguiente paso consiste en desplazar el espejo fijo mediante su base traslacional micrométrica. Nos fijaremos en el segundo pico (véase figura 2.3) y anotaremos el

desplazamiento en milisegundos de la pantalla del osciloscopio y el desplazamiento total de la base micrométrica.

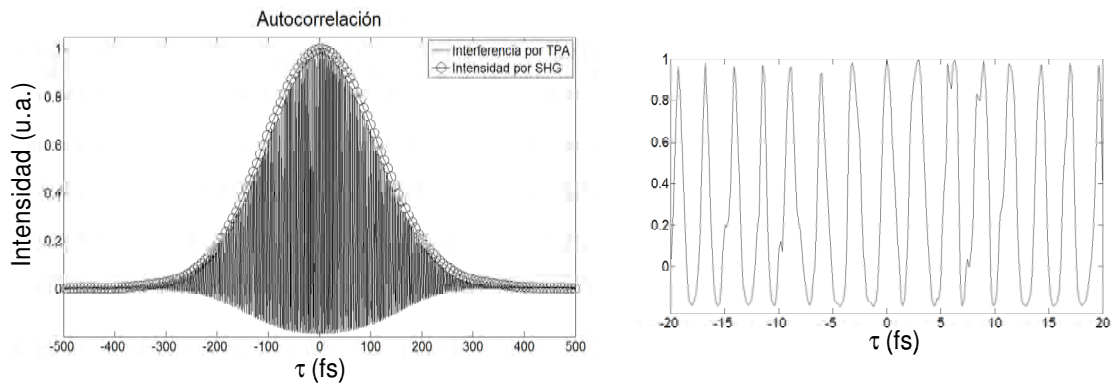
De esta forma se tiene que para un desplazamiento total del tornillo micrométrico de 0.16 mm se obtiene un desplazamiento del segundo pico en la pantalla del osciloscopio de 20 ms. Se tiene entonces que para 1 ms en la pantalla del osciloscopio corresponde en realidad una duración de:

$$\Delta\tau_d = \left(\frac{2\Delta D}{c}\right) \left(\frac{1 \text{ ms}}{\Delta t}\right) = \left(\frac{2 * 0.16 \times 10^{-3} \text{ m}}{3 \times 10^8 \text{ ms}^{-1}}\right) \left(\frac{1 \times 10^{-3} \text{ s}}{20 \times 10^{-3} \text{ s}}\right) = 53.3 \text{ fs}$$

Midiendo de la pantalla del osciloscopio el ancho del pulso se tiene que este es de 8.6 ms. Haciendo uso de la ecuación 2.19 se tiene que la duración real de la traza de autocorrelación  $\Delta\tau_p$  es:

$$\Delta\tau_p = \Delta\tau_d \frac{\Delta t_p}{\Delta t_d} = \left(\frac{2\Delta D}{c}\right) \frac{\Delta t_p}{\Delta t_d} = \left(\frac{2 * 0.16 \times 10^{-3} \text{ m}}{3 \times 10^8 \text{ ms}^{-1}}\right) \left(\frac{8.6 \times 10^{-3} \text{ s}}{20 \times 10^{-3} \text{ s}}\right) = 455.8 \text{ fs}$$

Finalmente aplicando el factor de corrección bajo la hipótesis de que los pulsos tienen un perfil de intensidad gaussiano, el ancho real del pulso es de  $\left(\frac{\Delta\tau_p}{\sqrt{2}}\right) = 322.3 \text{ fs}$ .



**Figura 2.4.** Autocorrelación de Intensidad (círculos) y de Interferencia (línea continua). Franjas de interferencia. Ancho de Autocorrelación

### II.3 Medida de la Autocorrelación Interferométrica

En este caso, con un arreglo colineal, es posible distinguir las franjas de interferencia debido a que el retraso es producido lentamente permitiendo que el detector resuelva las oscilaciones del campo eléctrico. La señal detectada oscila de máximo a mínimo para una variación del retardo de  $\tau = \pi/\omega$ . De esta forma, la separación entre franjas corresponde a media oscilación de la luz a la frecuencia central del pulso.

Si el pulso está limitado por su ancho de banda (no tiene *chirp*), la frecuencia instantánea es constante y la interferencia constructiva se produce tanto para retardos cercanos al máximo de la autocorrelación, como para retardos más grandes correspondientes a las colas del pulso. Cuando el pulso tiene *chirp* la frecuencia instantánea varía a lo largo del pulso, originando una pérdida de coherencia que aumenta a medida que el retardo se aleja de  $\tau = 0$ . En tal caso la interferencia de los dos pulsos (original y réplica) se pierde progresivamente, debido a que sus frecuencias instantáneas difieren cada vez más. Esto supone una disminución del número de franjas de interferencia por pérdida de visibilidad, que a su vez se traduce en una estimación errónea de la duración de los pulsos. Dado que la medida se obtiene básicamente contando franjas, el pulso parecerá más corto de lo que en realidad es. De esta forma, la autocorrelación interferométrica permite determinar cualitativamente si los pulsos tienen o no *chirp*.

El método para obtener la duración de los pulsos a partir de una autocorrelación interferométrica consiste en contar las franjas de interferencia que hay dentro del FWHM de la autocorrelación. Debido a que la longitud de onda es conocida, la calibración de la medida es directa y el ancho de la autocorrelación  $\tau_p$  puede ser estimado de acuerdo a la siguiente ecuación:

$$\tau_p = \frac{N \cdot \lambda}{c} \quad (2.20)$$

donde  $N$  es el número de franjas de interferencia,  $\lambda$  la longitud de onda central del pulso y  $c$  la velocidad de la luz en el vacío. Finalmente a este número se le aplica el factor de corrección bajo la hipótesis de que los pulsos tienen un perfil de intensidad gaussiano, con lo que se obtiene el ancho real del pulso.

A partir de la autocorrelación de interferencia, es posible obtener la autocorrelación de intensidad aplicando un proceso numérico de filtraje de las altas frecuencias. El factor de calibración temporal, estimado en la ecuación 2.20, será el mismo.

Existen otro tipo de técnicas que nos pueden proporcionar la caracterización completa del pulso, es decir, la medida directa del perfil de intensidad y la fase temporal o bien el espectro de potencias y la fase espectral. Un ejemplo de estas técnicas es la denominada Frequency Resolved Optical Gating o FROG por sus siglas en inglés [Trebino, 1993].

FROG es esencialmente un autocorrelador y un espectrómetro que en combinación generan lo que se conoce como el espectrograma del pulso ó traza FROG. Mediante un proceso numérico aplicado a la traza medida experimentalmente, combinada con otra traza producida de manera numérica y un algoritmo de deconvolución es posible lograr la caracterización completa del pulso ultrarrápido.

Aunque esta técnica es más completa y permite mayor información acerca del pulso, los requisitos en términos de instrumentación necesaria y programación son más demandantes en comparación a la técnica de autocorrelación.

En nuestros experimentos, dadas las características de los pulsos relativamente largos y prácticamente libres de “chirp”, la medida de autocorrelación de intensidad o interferencia son suficientes para la estimación del ancho temporal.

## II.4 Características Espectrales

A continuación se presenta el espectro del láser de Ti:zaf medido con una espectrómetro modelo BRC111A-USB-NIR de Edmund Optics.

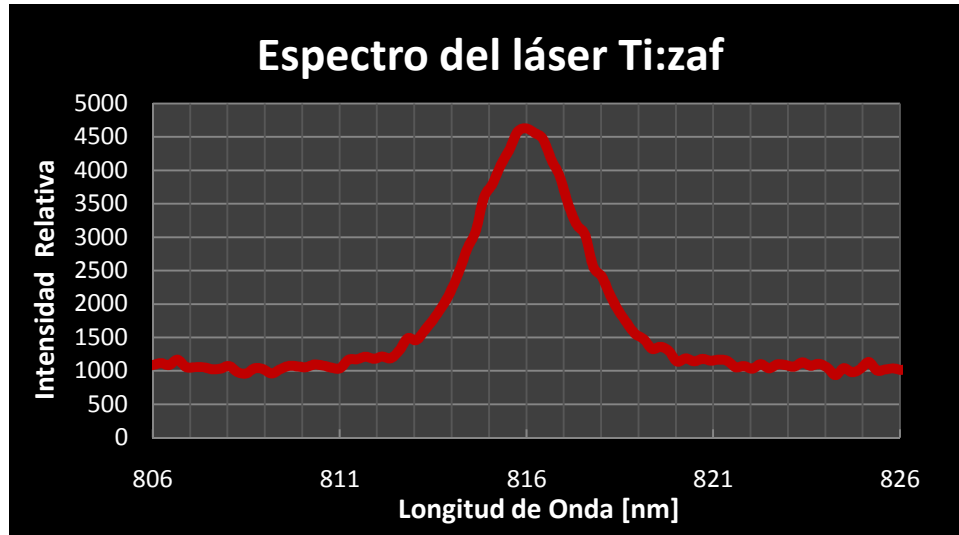


Figura 2.5. Espectro del láser de Ti:zaf.

El ancho de banda correspondiente es de 4 nm. El ancho de banda en frecuencia es de 1.8 THz, calculado a partir de la siguiente ecuación:

$$\Delta\nu = \frac{c}{\lambda^2} \Delta\lambda \quad (2.21)$$

Basados en el ancho espectral, el ancho temporal y de la relación (1.6) se puede considerar que se tienen pulsos libres de *Chirp*.

## REFERENCIAS

1. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Cap. 1 (2002).
2. D.T. Reid, W. Sibbett, J.M. Dudley, L.P. Barry, B. Thomsen, J. D. Harvey, *Appl. Opt.* 37 (1998) 8142.
3. J. C. Diels, W. Rudolph , *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, Primera Edición. Academic Press (1995).
4. R. Trebino, *Frequency Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrafast Laser Pulses* (2002).

## CAPÍTULO III

### ESPECTROSCOPIA DE RESOLUCIÓN TEMPORAL

Los láseres pulsados han demostrado ser herramientas eficaces para la examinación no destructiva de las propiedades de transporte de energía en películas metálicas y semiconductoras. Los pulsos ultracortos proporcionan intensidades extremadamente altas que de otra manera son inalcanzables en un laboratorio convencional, dando por resultado el amplio uso en el estudio de las propiedades no lineales de los materiales además, la duración extremadamente corta (femtosegundos) de estos permiten medir procesos que ocurren en escala de tiempo de picosegundos y femtosegundos, tales como la interacción electrón-electrón y electrón-fonón. En combinación, la alta intensidad y la corta duración de los pulsos ultracortos de un láser crean condiciones únicas en los materiales que pueden conducir a las transiciones de fase [Norris, 2003].

#### III.1 Espectroscopía de resolución temporal

En la espectroscopía de resolución temporal de femtosegundos, un pulso es utilizado para excitar la distribución electrónica fuera de equilibrio a una escala de tiempo mucho menor que el tiempo de interacción electrón – fonón (algunos picosegundos). La termalización interna del gas de electrones y equilibrio de la temperatura electrónica y de la red, termalización externa, son subsecuentemente registradas en el dominio temporal utilizando un pulso de prueba. De esta forma la dinámica de relajación e intercambio de energía entre electrones y electrones-fonones es resuelta temporalmente.

Existe un número de técnicas que pueden ser utilizadas para analizar la dinámica de electrones una vez que han sido perturbados. Por ejemplo: medida de la distribución de electrones por efecto fotoeléctrico [Fann et al., 1992] y la técnica de resolución temporal



de la emisión de dos fotones (TR-2PP de sus siglas en inglés) [Petek, 1997]. En ambos casos se requiere de sistemas de vacío y en el último, de un crióstato. Además de la complejidad del experimento, éste resulta costoso.

Otra alternativa, más simple y menos costosa, corresponde a la técnica de *Reflectancia Termo Transitoria (TTR de sus siglas en inglés)* y *Transmitancia Termo Transitoria (TTT de sus siglas en inglés)*. Las cuales son técnicas del tipo *bombeo-prueba*.

La técnica de *Reflectancia Termo Transitoria* es la empleada para nuestro estudio de una superficie semiconductor de Arseniuro de Galio (GaAs). La aplicación de la técnica en el estudio de fenómenos transitorios en superficies semiconductoras será presentada a lo largo de este capítulo. Los detalles del montaje experimental y la adquisición de datos serán abordados en el siguiente capítulo.

### III.2 TÉCNICA TTR Y TTT

En esta técnica, un pulso es dividido en dos, uno intenso (bombeo) y otro débil (prueba). El pulso de bombeo es utilizado para perturbar la superficie del material y por otro lado, controlando la longitud de camino óptico del pulso de prueba se produce un tiempo de retraso relativo entre ambos pulsos. El pulso de prueba, entonces, barre y toma una “fotografía” de la reflectancia o transmitancia a diferentes tiempos de retraso, con resolución temporal del orden de la duración del pulso de prueba.

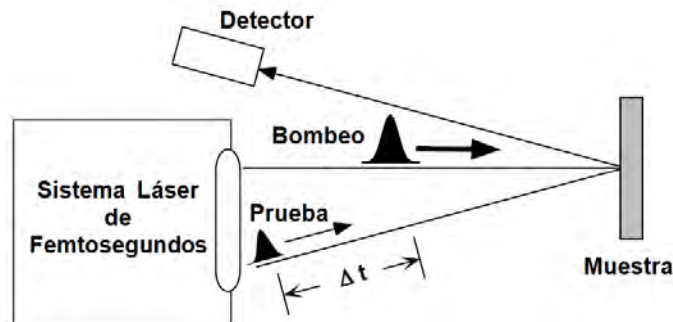


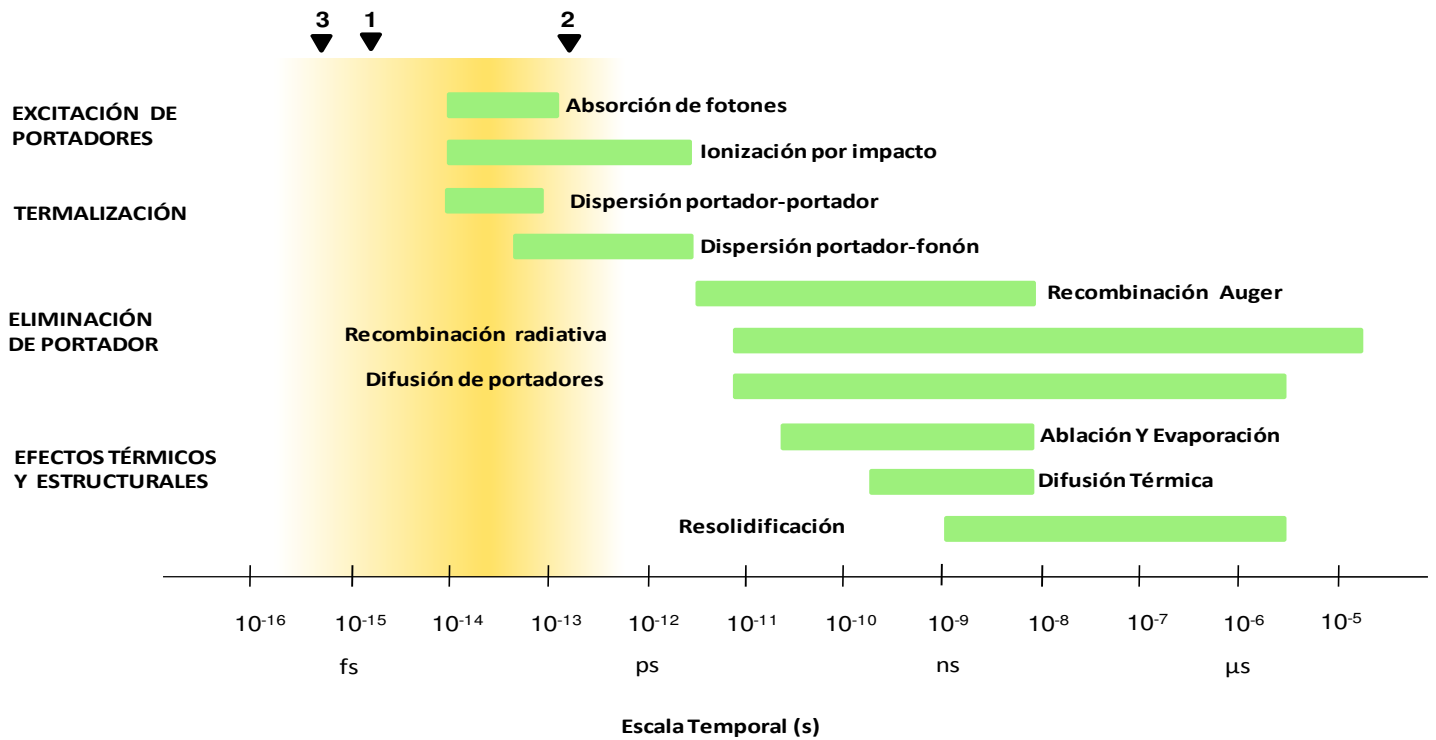
Figura 3.1. Sistema de Bombeo-Prueba.

Los cambios en la reflectancia y transmitancia medidos nos proporcionan una medida indirecta de ciertas propiedades del material. En el caso de metales, el cambio de reflectancia y transmitancia nos proporcionan información directamente de la evolución de la temperatura electrónica, evolución de la temperatura de la red del metal y el factor de acoplamiento entre electrones-fonones del material bajo prueba. En el caso de semiconductores, el cambio en la reflectancia y transmitancia está relacionado con los cambios en los estados electrónicos locales y la temperatura. De igual forma es posible obtener información sobre los tiempos de termalización.

En lo que sigue presentaremos una breve revisión de los procesos de excitación y relajación en semiconductores.

### **III.3 Fases de Relajación de Electrones en Semiconductores Excitados Ópticamente**

En la excitación con un pulso ultracorto, un semiconductor experimenta varias etapas de relajación antes de volver al equilibrio. En este proceso la energía se transfiere primero a los electrones y después a la red [Huang, 1997]. La interacción incluye varios regímenes de excitación y relajación del portador, de donde podemos distinguir los cuatro regímenes siguientes: (1) excitación del portador, (2) termalización, (3) eliminación del portador y (4) efectos térmicos y estructurales. Estos regímenes y las escalas de tiempo para los procesos correspondientes se muestran en figura 3.2. Los triángulos en la parte superior de la figura señalan el estado actual en la generación de pulsos ultracortos en varias longitudes de onda, abajo las escalas de tiempo más cortas. En la región visible (región amarilla), pulsos tan cortos como 5 fs permiten el sondeo directo de la dinámica del portador (triángulo 1). Difracción de los pulsos intensos de rayos X de duración de 200 fs (triángulo 2) permiten observar cambios estructurales y atómicos de materiales en bulto. Los pulsos más cortos obtenidos hasta la fecha, de 800 as (atosegundos) de duración (triángulo 3), está en la región de los rayos X, y se limita al sondeo de transiciones a nivel del núcleo en átomos excitados. [Mazur, 2002]



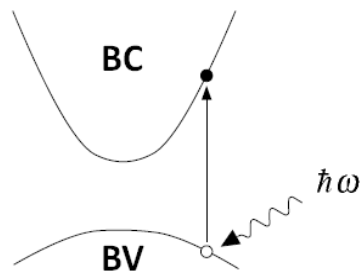
**Figura 3.2.** Escala temporal de los diferentes procesos del electrón y la red cristalina en sólidos láser-excitados. Cada barra verde representa un intervalo aproximado de tiempos característicos para un intervalo de densidades de portador de  $10^{17}$  a  $10^{22}$   $\text{cm}^{-3}$ . Los triángulos en la parte superior muestran el estado actual en la generación de pulsos cortos de radiación electromagnética: **1** 5 fs (visible), **2** 120 fs (rayos X), **3** 0.5 fs (ultravioleta lejano).

La figura 3.4 ilustra algunos de los procesos que ocurren en los cuatro regímenes de la figura 3.2 para un semiconductor típico de gap directo (p.ej. GaAs). Los diferentes procesos mostrados no ocurren secuencialmente; se traslapan en tiempo, formando una cadena de eventos continua que abarca el rango entero de femtosegundos a microsegundos. Por ejemplo, los portadores termalizan al mismo tiempo que se enfrían transfiriendo energía a los fonones de la red. Así como efectos estructurales no térmicos (por ejemplo formación de estructuras transitorias) pueden ocurrir mientras que la red sigue estando fría.

## EXCITACIÓN DE PORTADORES

Durante el proceso de la excitación óptica, los fotones interactúan con los portadores y transfieren energía a los electrones y huecos. El proceso de excitación óptica está regido por la conservación de la energía y momento. Con ésta forma de excitación, el semiconductor absorbe un fotón creando un par electrón-hueco, esto es, la absorción de fotones por electrones da lugar a una transición vertical de banda de valencia a la banda de conducción. El fotón deja un hueco detrás en la banda de valencia y crea un electrón libre en la banda de conducción. Dependiendo de la estructura de bandas del semiconductor, se pueden presentar transiciones directas o indirectas entre las bandas del mismo.

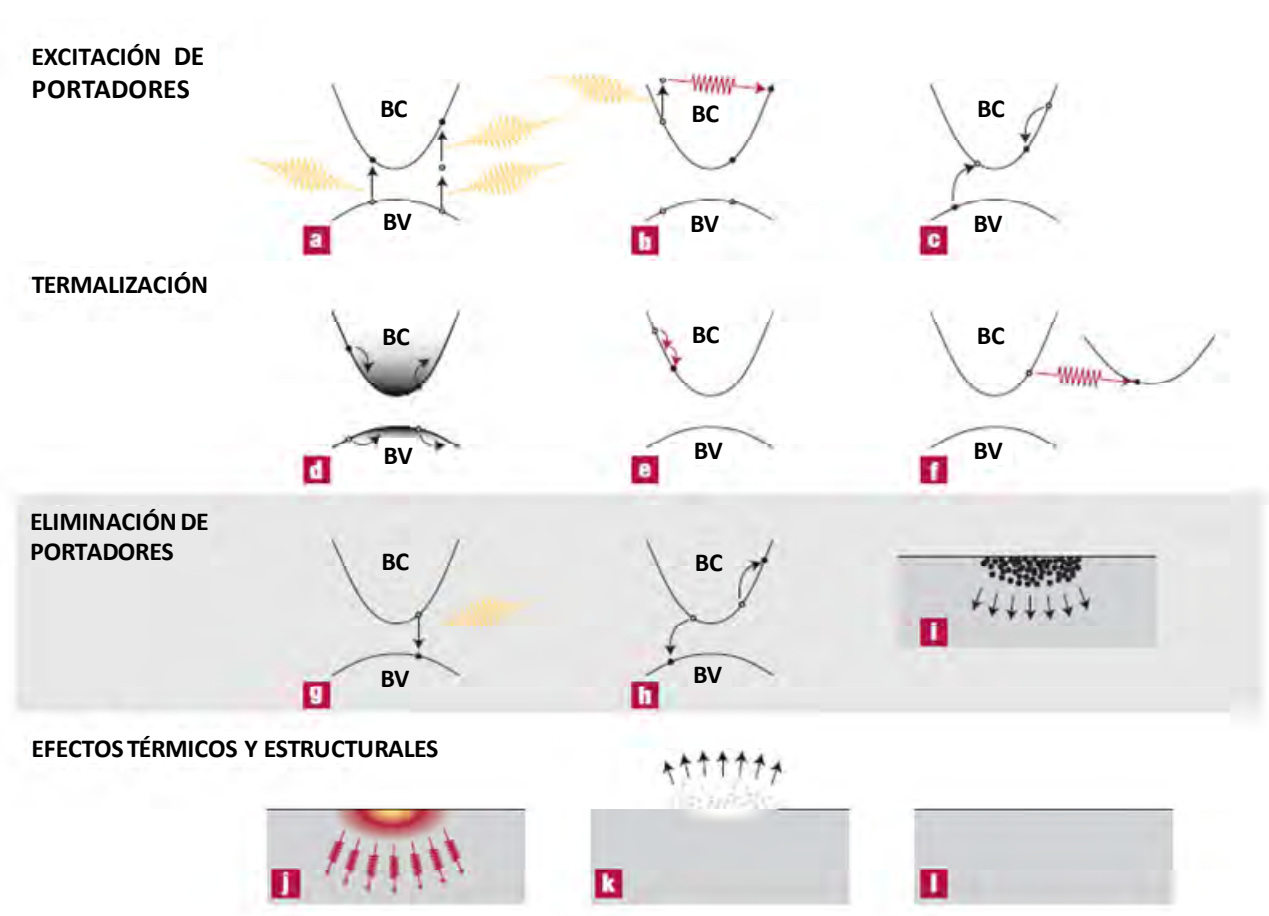
En las transiciones ópticas directas (semiconductores con estructura de banda directa como el GaAs) la absorción de un fotón causa la transición de un electrón entre estados de energía  $E_1$  y  $E_2$ , donde  $E_1$  y  $E_2$  son las energías del hueco y del electrón libre (figura 3.3).



**Figura 3.3.** Transiciones en semiconductores de gap directo.

La creación de un par electrón-hueco vía la absorción de un solo fotón es el proceso de excitación más significativo en la mayoría de los casos. Sin embargo, hay otros procesos de excitación que ocurren en semiconductores.

Los pares de portadores libres se pueden crear a través de procesos multifotón en los cuales un electrón absorbe más de un fotón para hacer la transición a la banda de conducción.



**Figura 3.4.** Procesos de excitación y relajación del electrón y el lattice en un semiconductor de gap directo excitado por un láser. BC es la banda de conducción y BV la banda de valencia. **a**, Absorción multifotón, **b**, Absorción de portador libre, **c**, ionización por impacto. **d**, Distribución del portador antes de la dispersión. **e**, Dispersión Portador-portador. **f**, Dispersión Portador-fonón. **g**, Recombinación radiativa. **h**, Recombinación Auger. **i**, Difusión de portadores excitados. **j**, Difusión térmica. **k**, Ablación. **l**, Resolidificación o condensación.

La figura 3.4 (a) muestra la creación de un par portador por absorción de dos fotones. Este proceso puebla diferentes estados, por lo que no compite con la absorción de un solo fotón y ayuda al llenado de banda. Por otra parte, es menos eficaz en crear los portadores puesto que dos fotones son requeridos para cada par electrón-hueco. Los procesos multifotón son mucho menos probables que ocurran que los procesos de un solo fotón, pero su probabilidad se incrementa con el aumento de la intensidad del láser.

La figura 3.4 (b) muestra la absorción de un fotón por un portador en la banda de conducción. A menos que haya una transición a una banda de conducción más alta, la absorción por electrón libre es un proceso de tres partículas, que requiere la emisión, absorción de un fonón o dispersión de otro electrón.

Si algunos de los portadores libres se excitan por encima del gap, la ionización por impacto puede ocurrir como se muestra en la figura 3.4 (c). El portador libre transfiere algo de su exceso de energía a un electrón de valencia, creando un nuevo par electrón-hueco. Este proceso conserva la energía total de los portadores libre, pero aumenta su número. En sólidos, la dispersión causa el desfase rápido de la coherencia entre la excitación y el campo electromagnético que lo causa. Para el GaAs, el tiempo de desfase está entre 3.5 y 11 fs. En consecuencia, los efectos coherentes - oscilación de los pares electrón-hueco entre las bandas de valencia y conducción – solo se observan en una escala de tiempo de 10 a 100 fs.

Así la excitación de portadores en un semiconductor se puede representar de la siguiente forma: La excitación de un fotón genera pares de electrón-hueco. Para pulsos láser intensos la excitación de un fotón saturará debido al llenado de banda, pero la excitación multifotón y la absorción de portador libre creará más portadores energéticos. Estos portadores altamente energéticos, alternadamente, pueden crear los portadores adicionales con la ionización por impacto.

## **TERMALIZACIÓN**

Después de la excitación, los electrones y los huecos son redistribuidos en toda la banda de conducción y de valencia por dispersiones portador-portador y portador-fonón. La dispersión portador-portador (figura 3.4d) causa termalización fuera de equilibrio en la distribución creada por el pulso láser.

En éste punto, los portadores libres excitados tienen exceso de energía por encima del borde de banda, y esta energía es disipada por interacciones portador-fonón. En el proceso de dispersión portador-fonón, los portadores libres pierden o ganan energía y momento por emisión o absorción de un fonón. Los portadores permanecen en el mismo valle de la banda de conducción o valencia (dispersión intravalle, figura 3.4e) o se transfieren a un valle diferente (dispersión intervalle, figura 3.4f). Aunque la dispersión portador-fonón no cambie el número de portadores, su energía disminuye debido a la emisión espontánea del fonón, que transfiere energía a la red cristalina (lattice). En metales y semiconductores, la dispersión portador-portador y portador-fonón ocurren al mismo tiempo durante los primeros cientos de femtosegundos después de la excitación. Ya que los fonones emitidos llevan poca energía, toma muchos procesos de dispersión, y por lo tanto varios picosegundos, antes de que los portadores y el lattice alcancen el equilibrio térmico.

## **ELIMINACIÓN O RETIRO DEL PORTADOR**

Una vez que los portadores y el lattice están en equilibrio, el material está a una temperatura bien definida. Aunque la distribución de portadores tenga la misma temperatura que el lattice, hay un exceso de portadores libres comparados a aquel en equilibrio térmico. El exceso de portadores es eliminado por la recombinación de electrones y huecos o por la difusión fuera de la región de excitación.

Durante la recombinación radiativa, lo contrario del proceso de excitación óptica, el exceso de energía del portador es cedido en forma de un fotón (luminiscencia, figura 3.4g). Los procesos de recombinación no-radiativos incluyen la recombinación Auger, y la recombinación de defecto y superficie. Durante la recombinación Auger, un electrón y un hueco se recombinan y el exceso de la energía excita un electrón más arriba en la banda de conducción (figura 3.4h). De igual modo otros mecanismos de recombinación, semejantes a la recombinación Auger disminuyen la densidad de portadores. En la recombinación de defecto y superficie, el exceso de energía es dado a un defecto o a un estado superficial. La difusión de portadores quita o remueve los portadores de la región de la muestra donde fueron originalmente excitados (figura 3.4i) y en contraste con los procesos de recombinación, no disminuye el número total de portadores libres en el material. En semiconductores, el confinamiento de portadores debido a una disminución del gap en la excitación de una alta densidad de portadores, retrasa la difusión lejos de la región fotoexcitada. Esta renormalización del gap inducido por láser ha sido confirmada teórica [Zimmerman, 1988] y experimentalmente [Kalt, 1992].

## **EFFECTOS TÉRMICOS Y ESTRUCTURALES**

Cuando los portadores libres y el lattice llegan a una temperatura de equilibrio y el exceso de portadores libres ha sido eliminado, el material es esencialmente igual que el calentado por medios convencionales. El material excitado por el láser de pulsos ultracortos puede alcanzar la temperatura de equilibrio en solo unos picosegundos, pero la eliminación de exceso de portadores tarda más tiempo. Si la temperatura del lattice excede el punto de fusión o de ebullición, la fusión o la vaporización puede ocurrir, aunque no en la escala de tiempo de picosegundos. El material es sobrecalentado pero sigue siendo sólido hasta regiones de líquido o de gas nucleado. A partir de sitios de nucleación en la superficie, la fase líquida y/o gas se expanden en el material (figura 3.4j). Mientras que la energía depositada por el pulso láser se convierte en energía cinética de los iones del lattice, los



átomos individuales, iones, moléculas o grupos de estos pueden salir de la superficie, llevando a la ablación (figura 3.4k, es decir, evaporación no térmica).

Si la fusión o evaporación ha ocurrido, entonces la resolidificación (figura 3.4l) o la condensación sobrevienen ya que la temperatura disminuye por debajo de los puntos de fusión o de ebullición, respectivamente; sin embargo, el material no regresa necesariamente a su estructura o fase original. [Glezer et al., 1995; Solis et al., 1994]

## REFERENCIAS:

1. P. M. Norris, *Review of Scientific Instruments*, Vol. 74, 400, (2003)
2. W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom and J. Bokor, *Phy. Rev. Lett.* 68, 2834, (1992).
3. H. Petek and S. Ogawa, *Progress in Surface Sciences*, 56, 239 (1997).
4. L. Huang, *Semiconductors under Ultrafast Laser Excitation: Optical Studies of the Dynamics* 14-26, Thesis, Harvard Univ. (1997).
5. E. Mazur, S.K. Sundaram, *Nature Materials*, Vol 1, (2002)
6. R. Zimmerman, *Many Particle Theory of Highly Excited Semiconductors* 5–86 (eds Eberling, W., Meiling, W., Uhlmann, A. and Wilhelmi, B.), (1988).
7. H. Kalt, M. Rinker, *Phys. Rev. B. Lett* **45**, 1139–1154 (1992).
8. E. N. Glezer, Y. Siegel, L. Huang & E. Mazur, *Phys. Rev. B.* **51**, 9589–9596 (1995).
9. J. Solis, C. N. Afonso, J. F. Trull, & M. C. Morilla, *J. Appl. Phys.* **75**, 7788–7794 (1994).
10. J. Hohlfeld, S. Wellerschoff, J. Gudde, U. Conrad, V. Jahnke, E. Matthias, *Chemical Physics* 237-258, 251 (2000).

## CAPITULO IV

### EXPERIMENTO

#### IV. MONTAJE EXPERIMENTAL

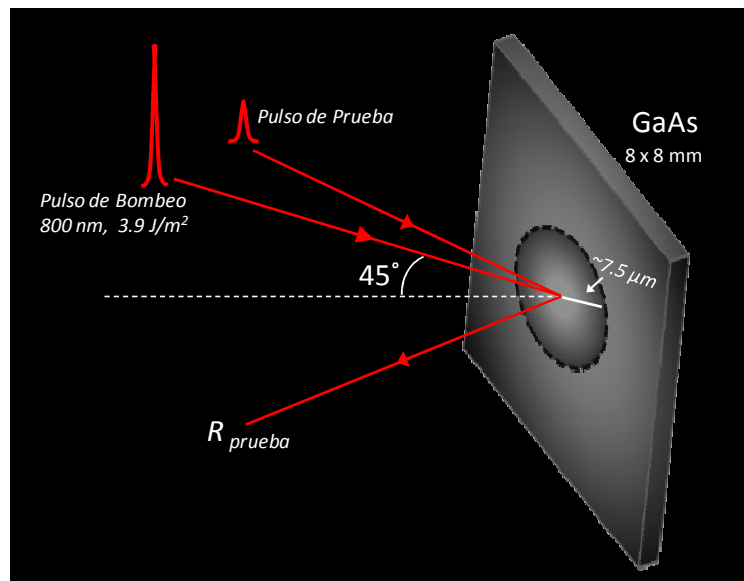
Los sistemas láser de pulsos ultracortos proporcionan la resolución temporal necesaria para la medición en escalas de subpicosegundos para estudiar efectos transitorios. La figura 4.2 es un diagrama del sistema experimental de bombeo-prueba empleado. Los pulsos del sistema Coherent MIRA900 de Titanio: zafiro ( $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ) son generados a 76 MHz con un ancho total del pulso a la mitad del máximo de su perfil de intensidad de  $\sim 200$  fs. En ésta técnica un pulso láser es dividido en dos, uno intenso denominado bombeo y otro débil denominado prueba con una proporción 80:20 por un divisor de haz no polarizado. Un polarizador lineal es colocado en la trayectoria principal antes del divisor de haz que se emplea para regular la intensidad tanto del bombeo como de la prueba.

La intensidad de haz de bombeo (0.71 nJ/pulso) se emplea como fuente de excitación ó calor mientras que el haz de prueba es utilizado para medir el cambio en la reflectividad o transmitancia de la muestra. El haz de bombeo pasa a través de un modulador opto-mecánico (chopper), creando un tren de pulso modulado a una frecuencia de 2 kHz. El haz de bombeo que alcanza la superficie de la muestra produce la perturbación necesaria para la detección de la Reflectancia o Transmitancia Termo Transitoria.

A la vez, el haz de prueba pasa a través de un espejo montado en una etapa traslacional motorizada (ODL-150 Scanning Optical Delay Line, Clark-MXR Inc) usada para variar la longitud de trayectoria óptica. Cuando ésta longitud de la trayectoria óptica de la prueba aumenta, se crea un tiempo de retraso experimental entre la llegada del haz de bombeo y el de prueba.

Posteriormente el haz de prueba pasa por una placa de media onda empleada para rotar la polarización de la prueba respecto al bombeo con el fin de prevenir efectos coherentes por el esparcimiento generado en la superficie.

Los haces de bombeo y prueba son enfocados a un punto de tamaño  $\sim 15\mu\text{m}$  a un ángulo de incidencia de  $45^\circ$  respecto de la normal, lo cual corresponde a una fluencia incidente  $< 4\text{ J/m}^2$ . El proceso de enfocamiento es logrado por un doblete acromático de 30 mm de distancia focal modelo NT45-794 para infrarrojo cercano de Edmund. Este posee la ventaja de permitir compensar efectos de dispersión y distorsiones espacio-temporales generados por la aberración cromática y esférica de los pulsos de femtosegundos [F. C. Estrada Silva, 2009].



**Figura 4.1.** Geometría del Bombeo y Prueba. El haz de Bombeo (800 nm) excita una región en la superficie del GaAs, mientras que simultáneamente el haz de prueba escanea la parte central de la región excitada.

El haz reflejado de la prueba es enviado a un detector fotodiodo InGaAs (Modelo EOT-InGaAs-ET-3000), induciendo una fotocorriente que crea una señal de voltaje de alrededor de 600 mV. Por otro lado el haz de bombeo reflejado en la superficie del material

es bloqueado por una pantalla y un filtro. Un polarizador (analizador) cruzado con respecto a la polarización del haz de bombeo es colocado antes del detector, en la dirección del haz de prueba. Esto permite filtrar la luz esparcida del bombeo generada por la superficie bajo prueba. Un amplificador de amarre de modos (Lock-In) determina la magnitud y la fase de la señal del voltaje en la frecuencia de la modulación del chopper (véase apéndice C1).

La longitud de la trayectoria óptica de prueba se cambia usando la etapa de retraso variable, teniendo en cuenta la medida del cambio transitorio en la Reflectancia o la Transmitancia de la muestra con una resolución del orden de la duración del pulso de prueba  $\sim 200$  fs . La medida correspondiente para cada retraso temporal o posición de la platina corresponde al promedio del tren de pulsos a 76 MHz, modulados por el chopper a 2 KHz. Lo que “observa” el detector prácticamente es un cambio en la señal DC a medida que cambia el retraso o la posición de la platina.

Después del detector la señal es dividida, en una que va directamente al Lock-In ( $\Delta R$ ) y otra que va a la tarjeta de adquisición de datos ( $R$ ) NT-USB-6211 de National Instruments, la cual permite la normalización o compensación de las fluctuaciones de la fuente de excitación (posibles cambios de intensidad por parte de la fuente de excitación son compensados con la normalización de la señal). De manera sincronizada a través de un programa de LabView, se realiza el cociente  $\Delta R/R$  como función del retraso  $\tau$ .

El resultado en un barrido de la posición de la platina será una “fotografía” de la evolución temporal de Reflectancia o Transmitancia.

La clave para la técnica que ha sido utilizada en éste trabajo, en términos de la resolución temporal tan fina que se puede lograr, radica en el hecho de que aunque no se dispone de detectores electrónicos lo suficientemente rápidos para resolver pulsos de femtosegundos, se cuenta con platinas y motores de paso que pueden lograr resoluciones espaciales del orden de nanómetros. Pero por medio de un arreglo tipo interferómetro-autocorrelador, desplazamientos espaciales son traducidos en cambios temporales. Así un

desplazamiento de 3  $\mu\text{m}$ , que es fácilmente resuelto por una etapa traslacional, representa un corrimiento temporal de 10 fs.

Técnicas como la que se describen en éste trabajo permiten prescindir de detectores ultrarrápidos de pico o subpicosegundos. En este caso detectores que responden en tiempos de nanosegundos son suficientes.

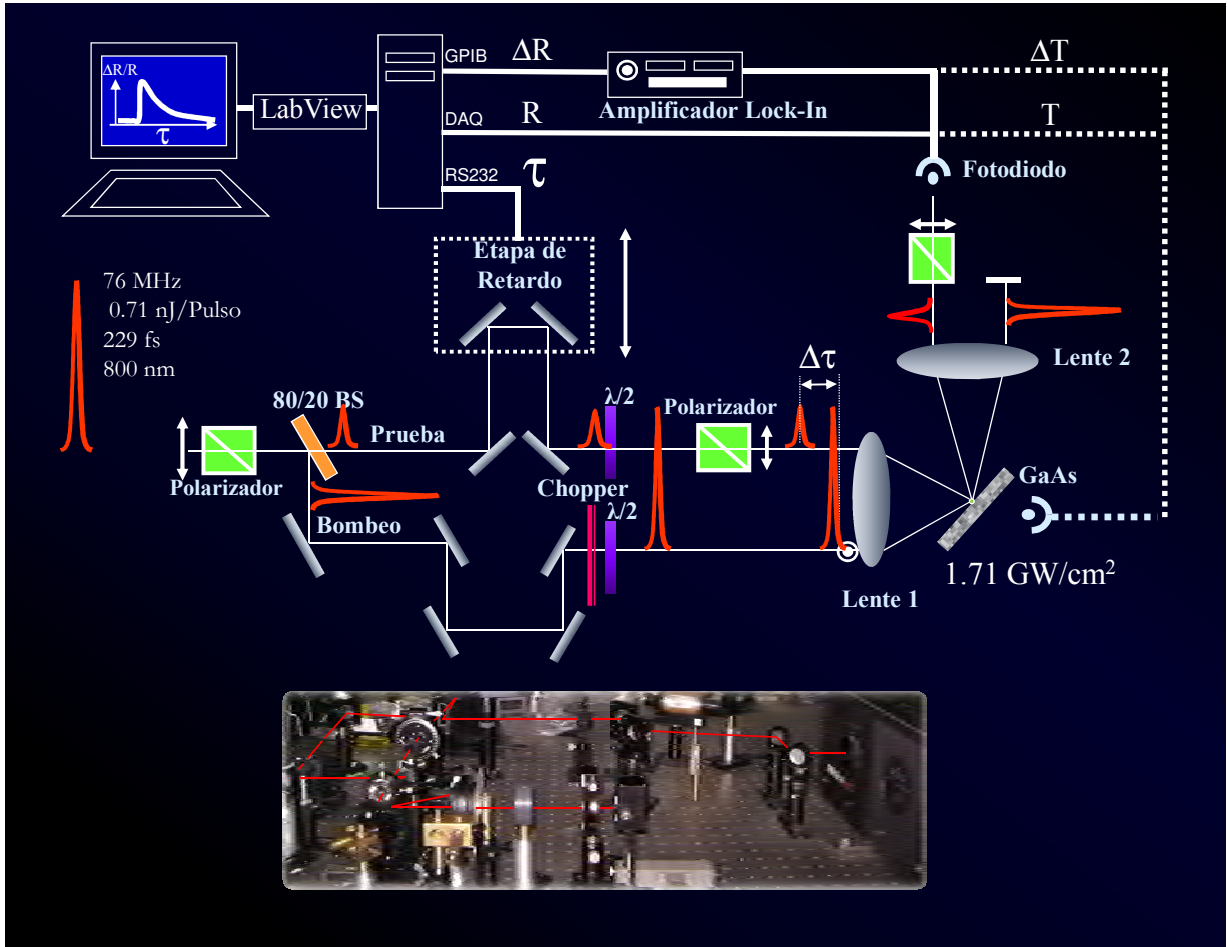
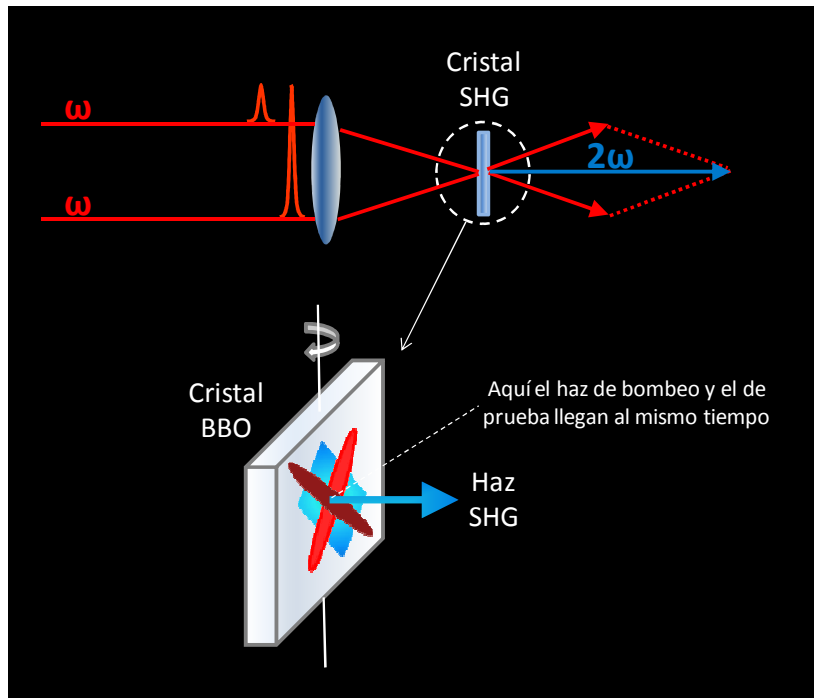


Figura 4.2. Montaje Experimental de la técnica TTR y TTT.

Para que se lleve a cabo la etapa de enfoque en la muestra, lo cual es crítico para obtener una señal medible, es necesario tomar ciertas consideraciones en la alineación del sistema, tales como la distancia que recorren ambos haces (bombeo-prueba) los cuales deben cumplir un recorrido de distancias iguales, en nuestro caso un recorrido total de

62.2 cm así como mantener la altura y distancia entre ambos pulsos constante, esto es, el haz de bombeo y el haz de prueba deben de mantenerse equidistantes y siempre a la misma altura antes de ser enfocados, para ello se observa el comportamiento de estos en campo lejano observando siempre que la oscilación o retraso generado en el haz de prueba no afecte la altura ni la distancia respecto al haz de bombeo, en caso de ser así se debe ajustar alguno de los espejos de la trayectoria de la prueba lo cual permite separar los haces o bien ajustar la altura del haz de prueba, con esto es posible marcar una referencia de la alineación de nuestro sistema para la posterioridad y cuando que se desee trabajar con el sistema bastará verificar rápidamente sobre las referencias. Bajo estas condiciones de alineación la etapa de enfoque es posible realizarla.

Por otra parte se requiere conocer el denominado “retraso cero”, es decir, la posición en la que ambos pulsos (bombeo y prueba) se traslapan en tiempo y espacio sobre la muestra para posteriormente obtener la señal de TTR o TTT. Para ello haremos uso de un cristal de BBO (Beta Borato de Bario), recordando que este es un cristal generador de segundo armónico (SHG), en el que los haces deben viajar equidistantes respecto al eje óptico de la lente, procurando además la mínima separación entre ellos lo cual se comprueba en el campo lejano. Esta condición de alineación garantiza el enfoque de ambos haces en el mismo punto del cristal con la mínima aberración posible. Posteriormente se ajustó el ángulo del cristal hasta cumplir con la condición de empatamiento de fases (*phase-matching*) para cada haz fundamental y así observar el correspondiente segundo armónico de cada uno. Con una alineación tal que permitiera observar de manera simultánea la generación del segundo armónico por parte del bombeo y la prueba, posteriormente se desplazó la platina lentamente hasta lograr observar la correspondiente suma de frecuencias, la cual únicamente sucede cuando los pulsos de bombeo y prueba se encuentran traslapados en tiempo y en espacio (figura 4.3).



**Figura 4.3.** Generación del segundo armónico.

Puesto que la alineación de nuestro sistema es crítica teniendo un máximo error posible de  $96 \mu\text{m}$  en la longitud de la trayectoria de cada haz, es necesario que el movimiento de la etapa de retraso se realice de forma lenta, esto nos dará la ventaja de observar por más tiempo el segundo armónico. La posición del retraso cero representará ahora nuestro punto de referencia o posición en la cual podemos esperar a que la señal transitoria de reflectancia inicie.

## VI. 2 ADQUISICION DE DATOS

Para la adquisición de datos de la técnica de TTR/TTT se ha desarrollado un programa de LabView el cual permite controlar el movimiento de la platina encargada de generar la etapa de retraso (Apéndice C2). Este movimiento debe ser coordinado exactamente con la señal registrada del fotodiodo. El movimiento de la etapa de retraso corresponde con una medida experimental en tiempo, con un tiempo mínimo asociado a cada lectura (toma de cada dato) denominado "constante de tiempo" el cual en nuestro



caso fue de 1000 ms. Esta constante de tiempo está relacionada directamente con la velocidad de la etapa de retraso y es también limitada por el retraso en tiempo real entre la adquisición de datos, es decir, éste tiempo le permite al programa tomar las lecturas del lock-in para posteriormente realizar una nueva lectura y de esta forma obtener otro punto o dato que conformará nuestra señal.

La etapa de microposicionamiento se puede realizar en intervalos de  $1 \mu m$ . De donde un desplazamiento de  $1 \mu m$  de la platina del espejo resulta en un tiempo de retraso de 6.67 fs, que es mucho menor que la resolución de la medición. El sistema de adquisición de datos controla la distancia de movimiento de la etapa, así como su velocidad, logrando el control preciso de las mediciones dependientes del tiempo. Es de gran ayuda mover la etapa a diferentes resoluciones durante un escaneo o exploración, ya que esto permite la resolución de transiciones rápidas y lentas, manteniendo el tiempo de la adquisición de datos manejable. De esta forma, el programa permite que el usuario prescriba cuatro escalas de tiempo diferentes y combinaciones de la resolución para cualquier medida particular, cabe aclarar que estas escalas de tiempo se refieren a un intervalo de tiempo en la señal y no al tiempo de adquisición de cada dato o punto (1000 ms), es decir, si suponemos que el tiempo de excitación es mucho menor que el tiempo total de la relajación, es necesario aumentar la resolución durante el proceso de excitación ya que se corre el riesgo de tomar muy pocas lecturas (puntos en la gráfica) y de esta forma tener una señal discontinua, para que no ocurra esto el programa permite ingresar cuatro escalas de tiempos diferentes, formando así tres intervalos (figura 4.4). El primer intervalo tomará mediciones antes del proceso de excitación, aquí no se requiere de mucha resolución o graficación de muchos puntos ya que únicamente nos permite corroborar el inicio de la excitación. Iniciada la excitación (Intervalo 2) se desea que la señal tenga una continuidad uniforme y ya que el tiempo que dura este proceso es muy corto, se requiere aumentar el número de lecturas (puntos en la gráfica) de esta forma se introduce en el programa un número mayor de mediciones a realizar, para el último intervalo

(relajamiento) no se requiere aumentar en gran medida la resolución, puesto que este proceso es muy lento.

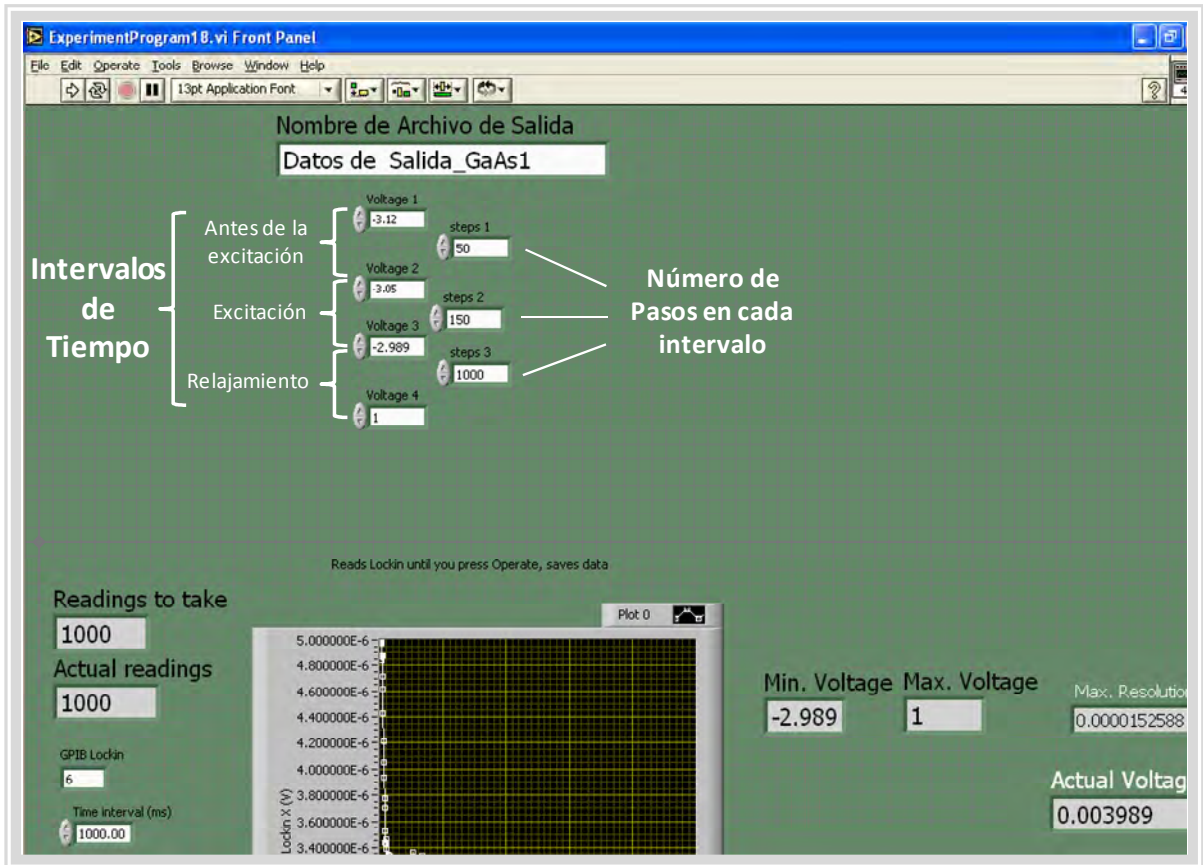
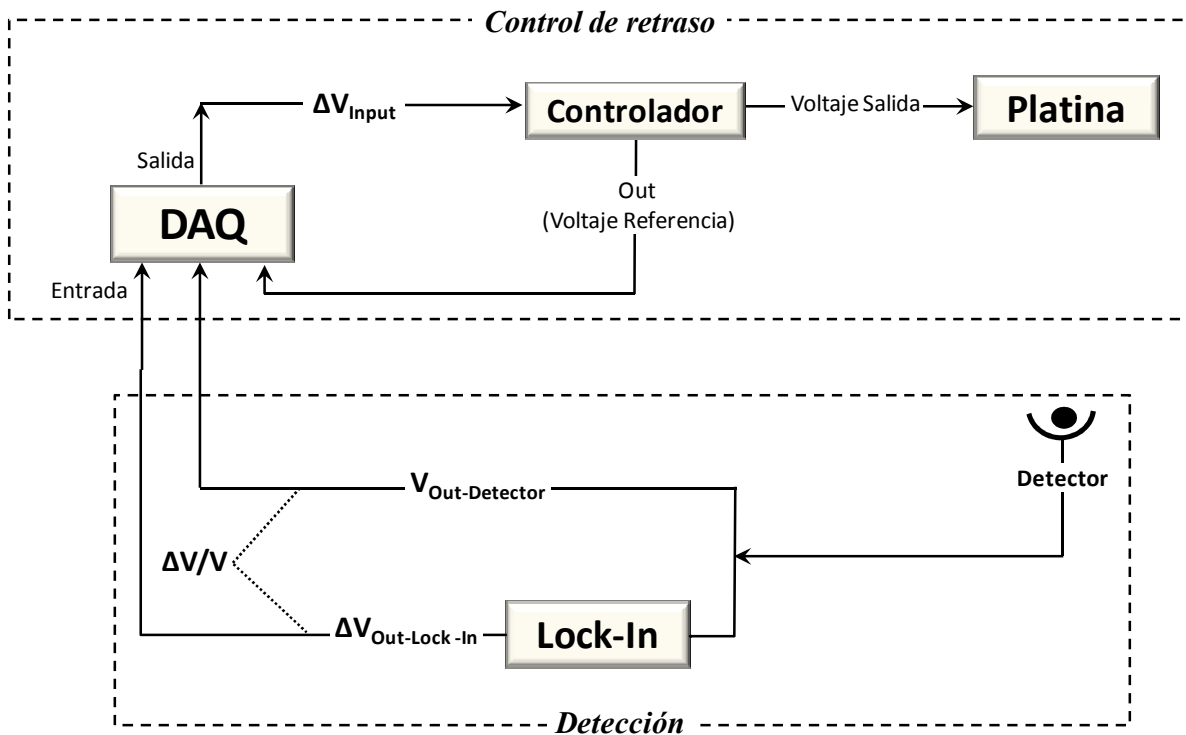


Figura 4.4. Interfaz gráfica del programa de adquisición de datos.

En cuanto a la medida de la señal de Reflectancia o Transmitancia, la magnitud y la fase de la señal es realizada por el amplificador de amarre de fase (Lock-In), los cuales se registran en cada paso de tiempo experimental. La importancia de la fase de la señal se ha demostrado para el uso con la técnica TTR. La magnitud,  $A_m(t)$ , y la fase  $\phi_m(t)$ , de la señal medida por el lock-in se puede separar en componentes transitorios y no transitorios,

$$A_m(t)e^{i[\omega t + \phi_m(t)]} = A_t(t)e^{i(\omega t + \phi_t)} + A_m e^{i(\omega t + \phi_n)} \quad (4.1)$$

La magnitud y la fase de la señal no transitoria se pueden obtener de la señal medida antes de la llegada del pulso de bombeo. La respuesta transitoria de la película (GaAs) generada por el pulso de bombeo se asume que estará en fase con el haz de bombeo modulado. Por lo tanto, lo único que se desconoce es la cantidad de interés, la magnitud de la señal transitoria que se presenta debido a la perturbación  $A_t(t)$ . Así, la señal DC del fotodetector se mide para cada posición de la platina o tiempo de retraso y se utiliza en el cálculo de  $\Delta V/V$ , que es proporcional a  $\frac{\Delta R}{R} \left( o \frac{\Delta T}{T} \right)$  [Norris, 2003].



**Figura 4.4.** Diagrama de Flujo del Programa de Control y Adquisición de Datos.

## REFERENCIAS

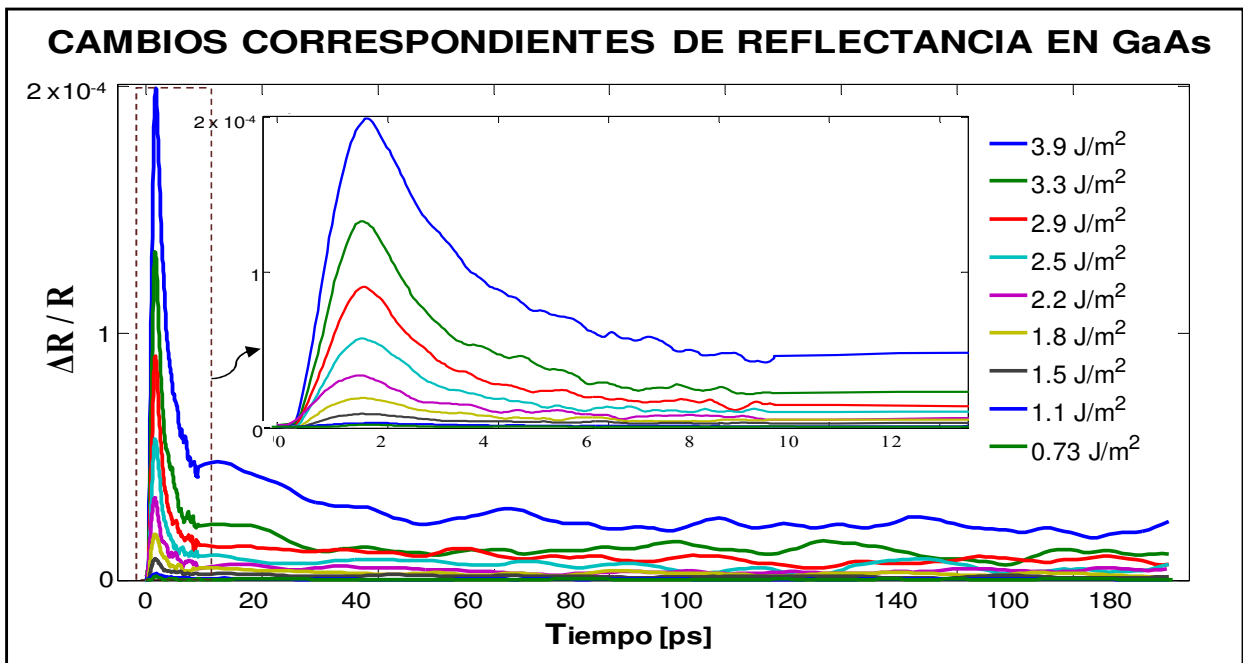
- 1 P. M. Norris, *Review of Scientific Instruments*, Vol. 74, 402, (2003).
- 2 F. C. Estrada-Silva, J. Garduño Mejía, M. Rosete Aguilar, C. J. Román Moreno, R. Ortega Martínez, *Aberration effects on femtosecond pulses generated by nonideal achromatic doublets*, *Applied Optics*, 48, 4723-4734 (2009).

## CAPÍTULO 5

### RESULTADOS Y CONCLUSIONES

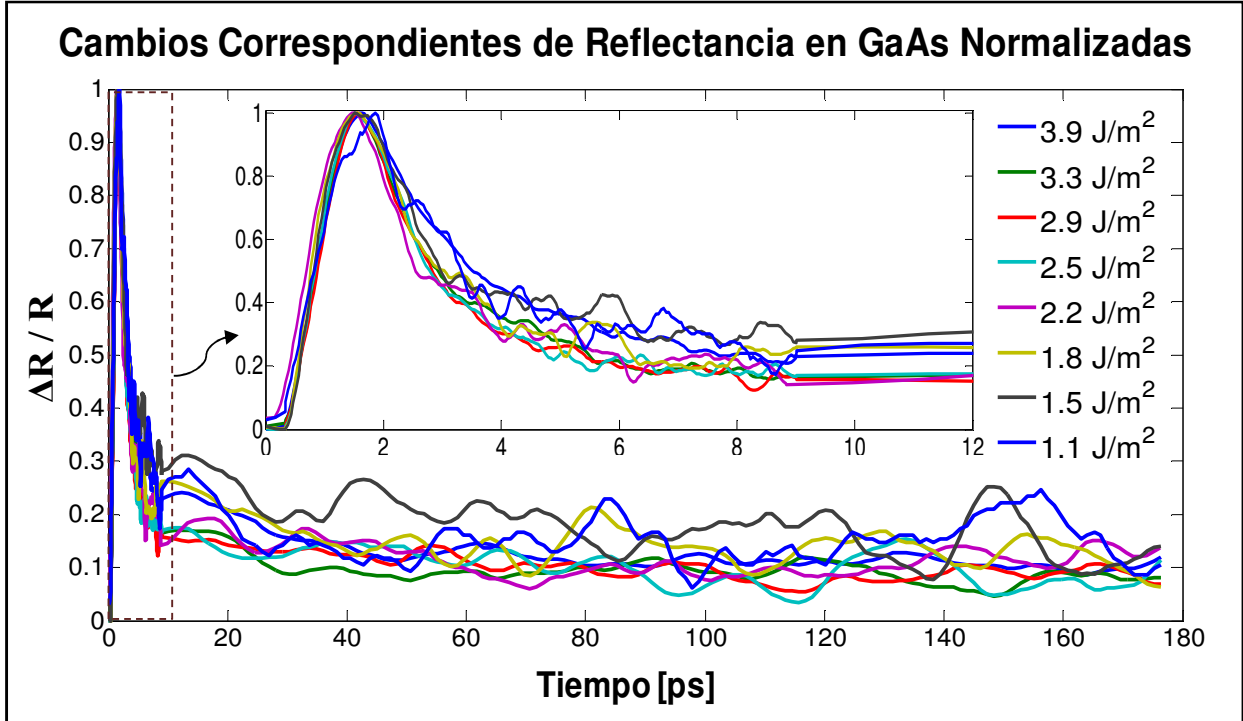
#### V.1 Evolución de las Propiedades Ópticas Transitorias

A partir de la técnica de Reflectancia Termo Transitoria, descrita en el capítulo anterior, se obtuvieron las siguientes respuestas ópticas en una superficie de GaAs. En la siguiente figura se muestra la respuesta del material al ser perturbado por diferentes fluencias de bombeo incidentes.



**Figura 5.1.** Curvas de los cambios en la Reflectancia.

Se realizó la normalización de las diferentes curvas con el fin de comparar los tiempos de respuesta en las diferentes etapas del proceso de excitación y relajación, dando por resultado las siguientes curvas mostradas en la figura 5.2.



**Figura 5.2.** Curvas de cambios en la Reflectancia Normalizadas.

De la figura 5.1, podemos observar que la respuesta del GaAs a la excitación depende en gran medida de la fluencia incidente. A medida que esta aumenta se crea una mayor excitación que se ve reflejada en los cambios en la Reflectividad (véase Tabla 5. 1), así para una fluencia de  $3.9 \text{ J/m}^2$  se obtienen cambios en la señal  $\Delta R/R$  de alrededor de  $2 \times 10^{-4}$  es decir, alrededor de un par de cientos de micras ( $200 \mu V$ ) en la señal de voltaje detectado, alcanzando para fluencias menores como  $0.73 \text{ J/m}^2$  cambios de alrededor de  $0.2 \times 10^{-4}$ .

**Tabla 5.1-** Datos Generales

| Potencias [w] | Energ-Pulso [J] | P-Pico [w] | Ipico [W/m <sup>2</sup> ] | Ipico [Gw/cm <sup>2</sup> ] | Fluencia [J/m <sup>2</sup> ] | Máximos ΔR/R |
|---------------|-----------------|------------|---------------------------|-----------------------------|------------------------------|--------------|
| 5.40E-02      | 7.11E-10        | 3.10E+03   | 1.71E+13                  | 1.710                       | 3.92                         | 1.99E-04     |
| 4.50E-02      | 5.92E-10        | 2.59E+03   | 1.41E+13                  | 1.406                       | 3.26                         | 1.33E-04     |
| 4.00E-02      | 5.26E-10        | 2.30E+03   | 1.25E+13                  | 1.250                       | 2.90                         | 9.07E-05     |
| 3.50E-02      | 4.61E-10        | 2.01E+03   | 1.09E+13                  | 1.094                       | 2.54                         | 5.71E-05     |
| 3.00E-02      | 3.95E-10        | 1.72E+03   | 9.38E+12                  | 0.938                       | 2.18                         | 3.34E-05     |
| 2.50E-02      | 3.29E-10        | 1.44E+03   | 7.81E+12                  | 0.781                       | 1.81                         | 1.87E-05     |
| 2.00E-02      | 2.63E-10        | 1.15E+03   | 6.25E+12                  | 0.625                       | 1.45                         | 8.49E-06     |
| 1.50E-02      | 1.97E-10        | 8.62E+02   | 4.69E+12                  | 0.469                       | 1.09                         | 2.68E-06     |
| 1.00E-02      | 1.32E-10        | 5.75E+02   | 3.13E+12                  | 0.313                       | 0.73                         | 1.51E-06     |

Por otra parte, se calculó la medida de los tiempos de excitación y relajación para cada una de las curvas normalizadas correspondientes a cada fluencia. Para ello se empleó un método de ajuste basado en algoritmos genéticos [Zeidler et al, 2001], el cual arroja una ecuación que está basada en los tres tiempos de las fases de relajación, esto es, un tiempo asociado a la duración excitación, otro a la fase de relajamiento posterior a la excitación y un último asociado a la fase de relajación final. La ecuación de ajuste queda entonces de la siguiente forma:

$$R = A(1 - \exp[-\tau/t_s])(\exp[-\tau/t_{R_1}]) + B(1 - \exp[-\tau/t_{R_1}])(\exp[-\tau/t_{R_2}]) + C(1 - \exp[-\tau/t_{R_2}]) \quad (5.1)$$

En donde

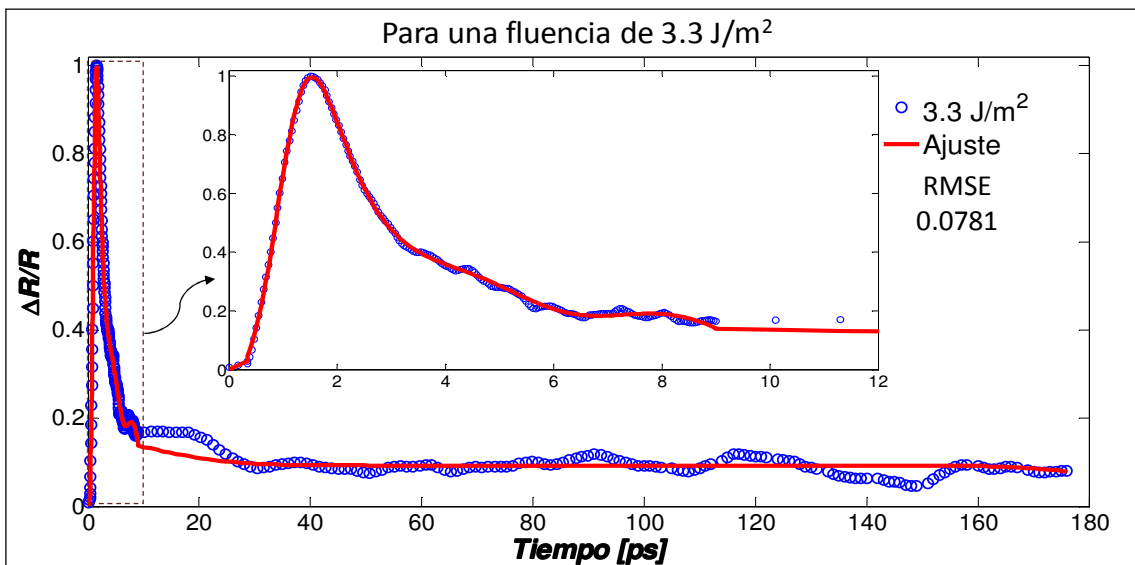
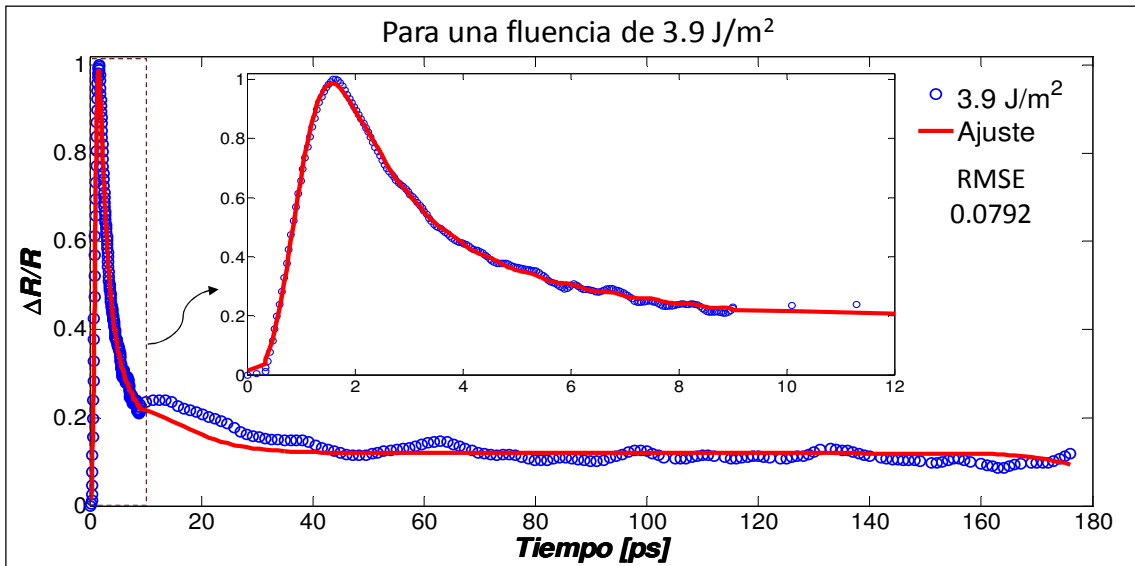
$\tau$  = tiempo de retraso

$t_s$  = tiempo de subida

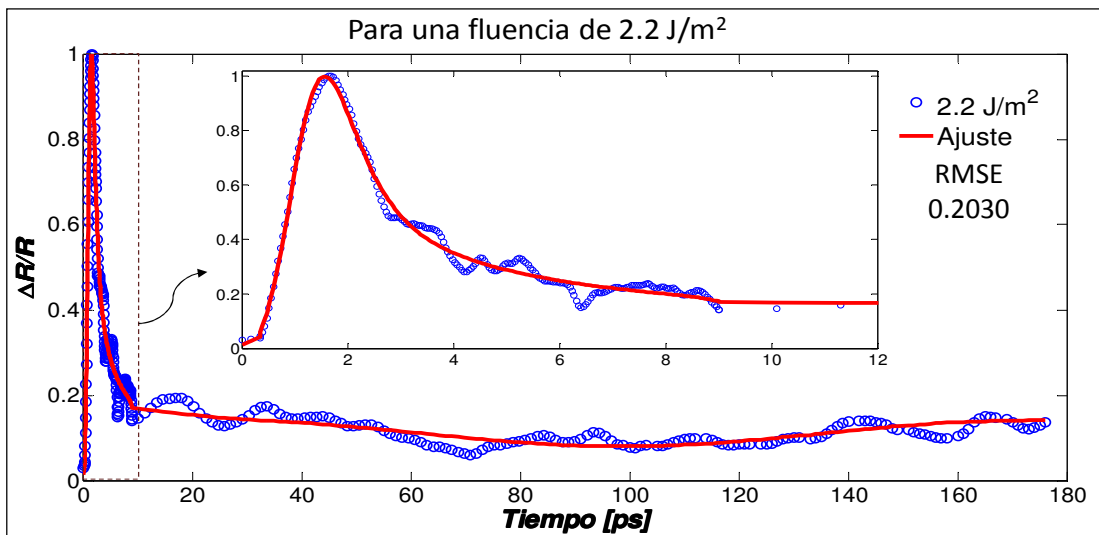
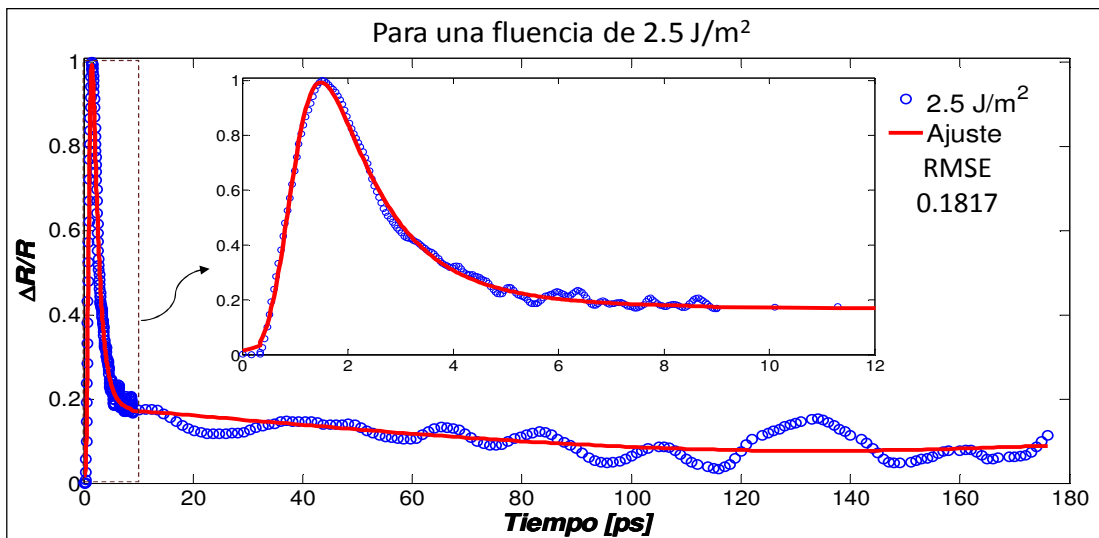
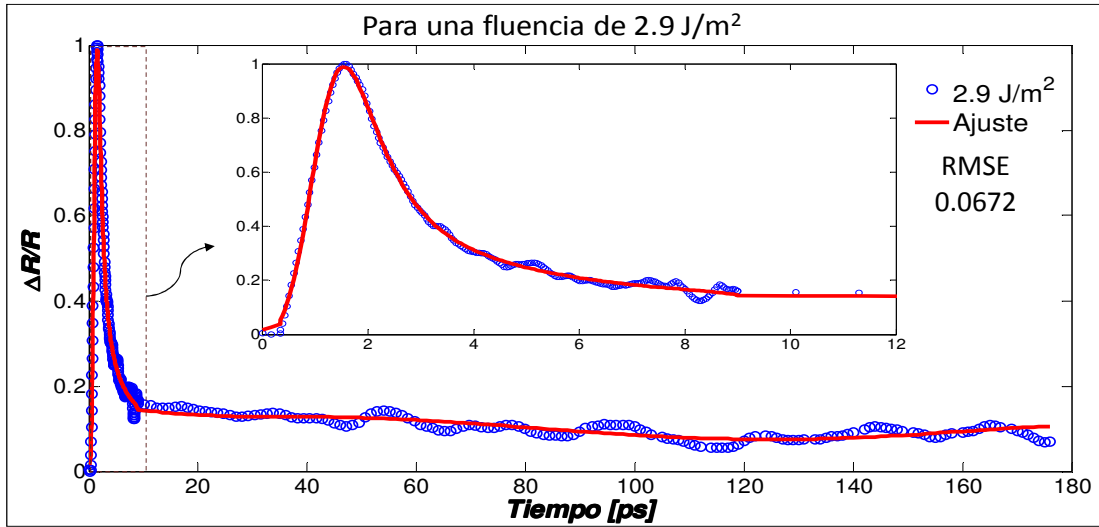
$t_{R_{1,2}}$  = tiempo de relajación 1,2

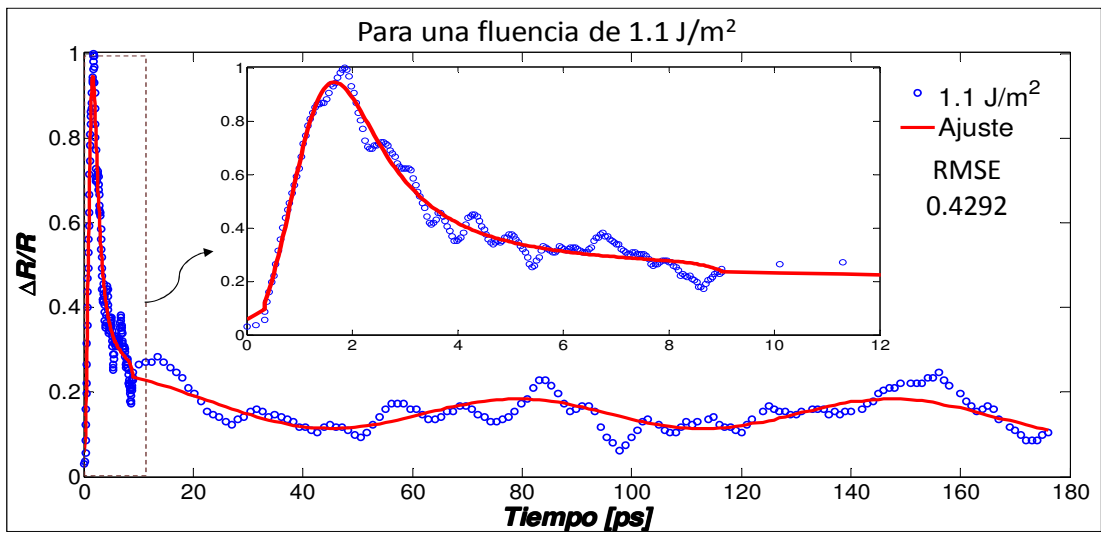
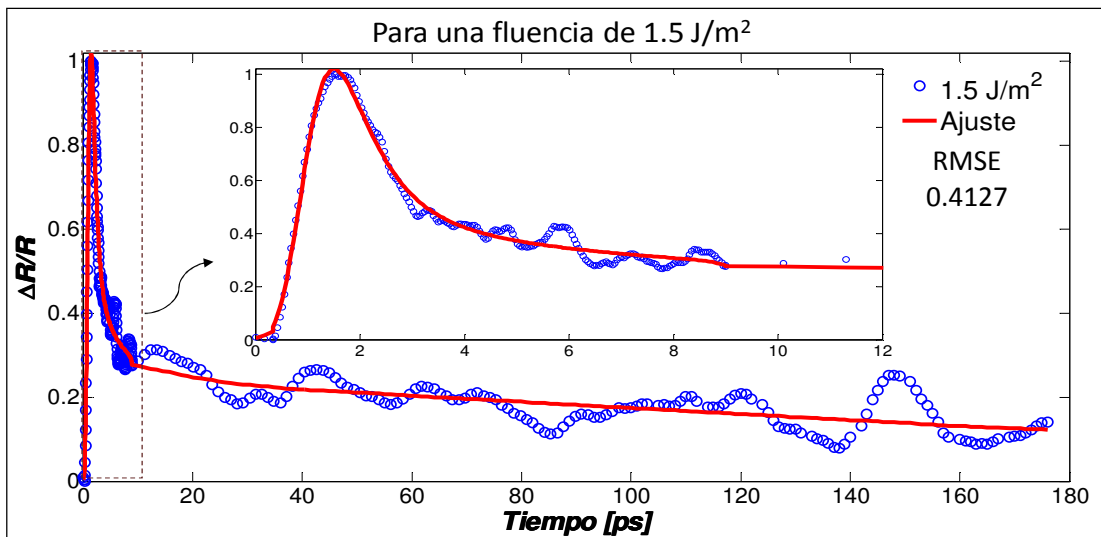
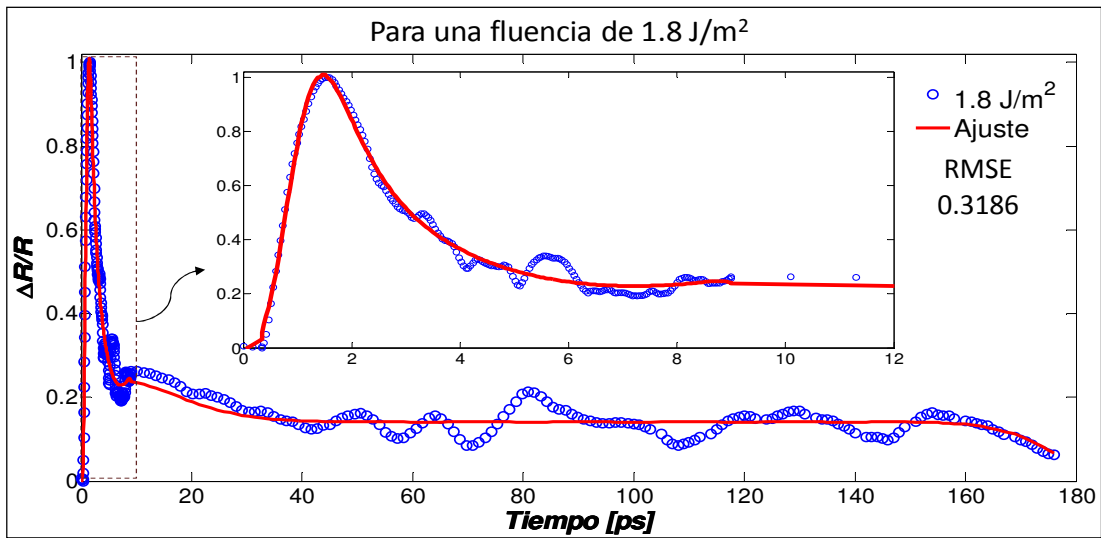
Las siguientes gráficas muestran los ajustes realizados mediante este método para cada una de las nueve fluencias empleadas, en éstas se observan los valores del cambio de reflectancia (círculos) así como su respectiva curva de ajuste (línea continua).

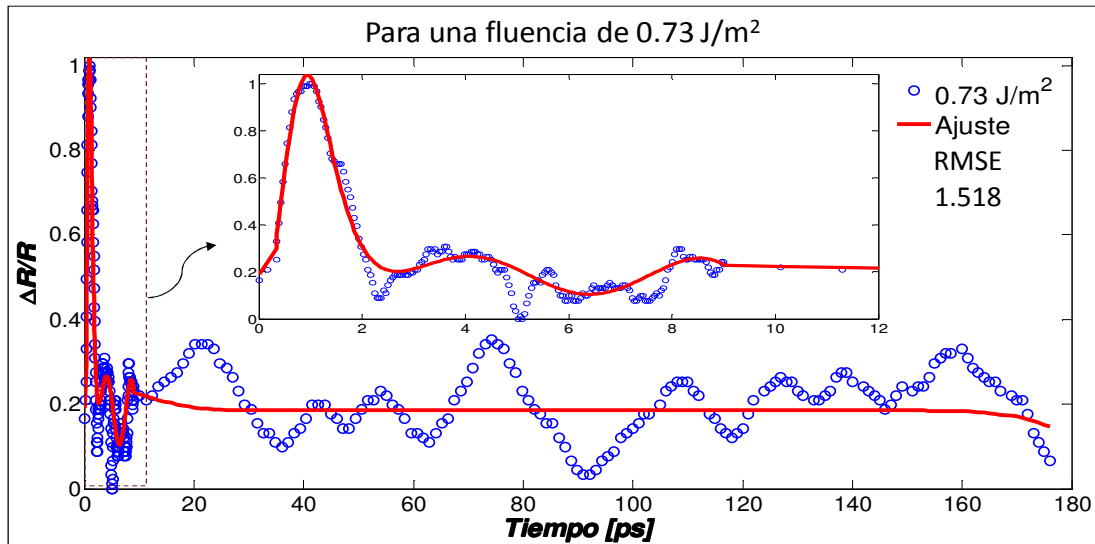
### AJUSTES DE CAMBIOS CORRESPONDIENTES DE REFLECTANCIA EN GaAs











Se observan los siguientes valores de los tiempos de excitación y relajación para cada una de las fluencias de excitación, así como el error cuadrático medio o RMSE (Root-mean-square error) que estos ajustes presentan (Tabla 5.2).

**Tabla 5.2.** Tiempos de las fases en el proceso de excitación del GaAs obtenidos mediante el método de ajuste de algoritmos genéticos.

| Fluencia [J/m <sup>2</sup> ] | TIEMPO1 [ps] | TIEMPO2 [ps] | TIEMPO3 [ps] | RMSE   |
|------------------------------|--------------|--------------|--------------|--------|
| 3.92                         | 1.026        | 0.825        | 5.478        | 0.0792 |
| 3.26                         | 0.224        | 0.706        | 3.641        | 0.0782 |
| 2.90                         | 0.301        | 0.661        | 3.222        | 0.0672 |
| 2.54                         | 0.281        | 0.576        | 1.347        | 0.1817 |
| 2.18                         | 0.296        | 0.578        | 3.543        | 0.2030 |
| 1.81                         | 0.273        | 0.675        | 5.135        | 0.3186 |
| 1.45                         | 0.510        | 0.686        | 4.855        | 0.4127 |
| 1.09                         | 0.765        | 0.792        | 2.565        | 0.4292 |
| 0.73                         | 0.629        | 0.433        | 0.438        | 1.5180 |

De estos valores se observa que a partir de la quinta medición no se aprecian cambios considerables en los tiempos de relajación, el RMSE aumenta y no se tiene una secuencia en los valores obtenidos, por lo que solo se consideran las cuatro primeras fluencias para los posteriores análisis.

Para apreciar estos cambios se grafican las cuatro diferentes fluencias.

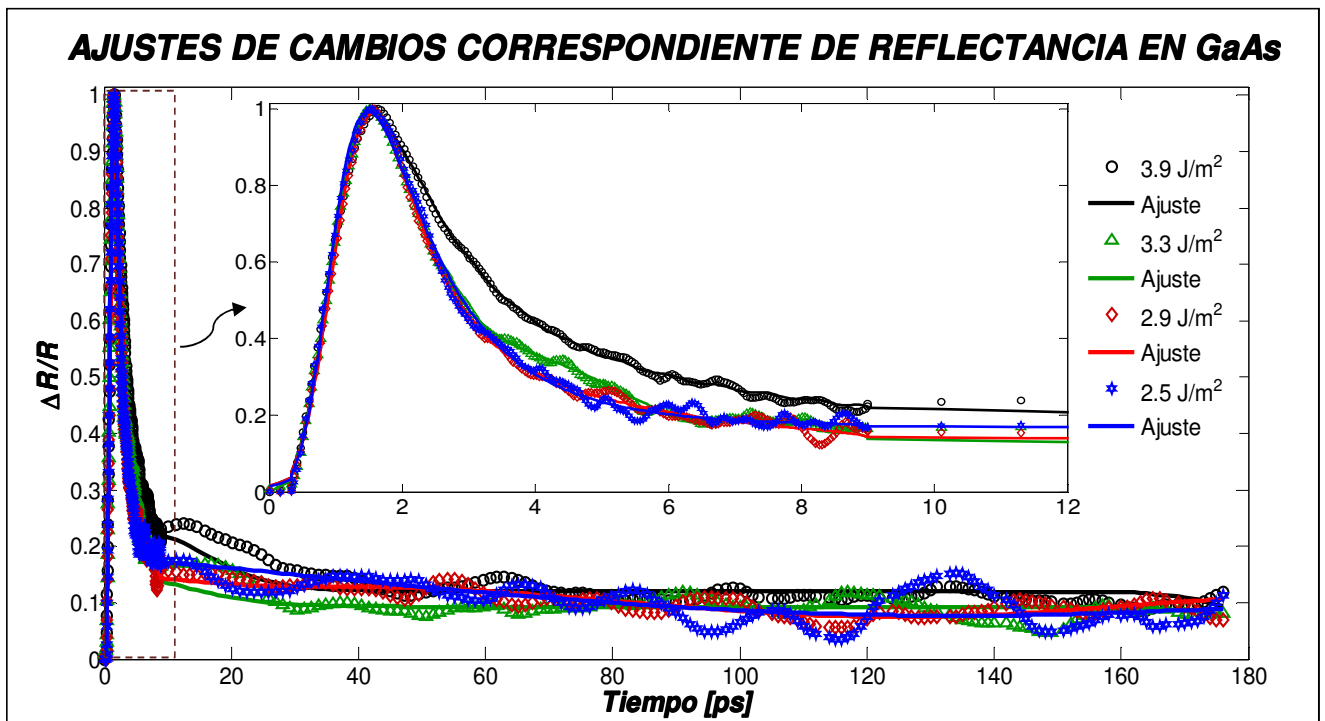
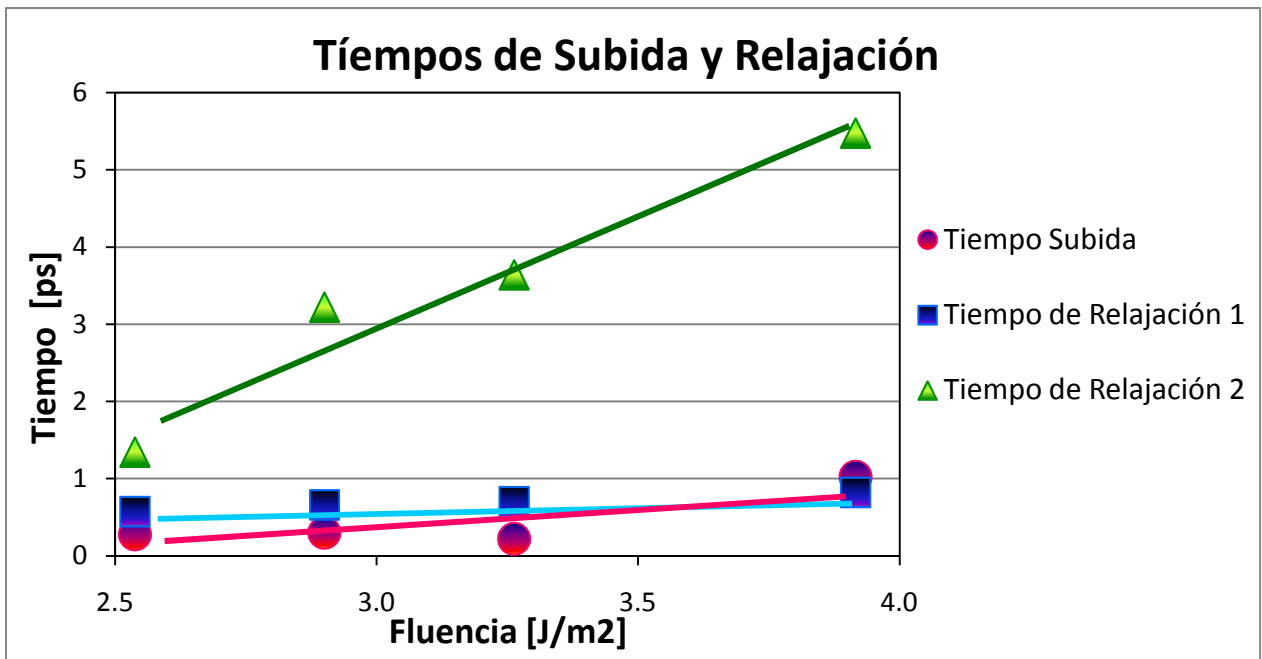


Figura 5.3. Curvas de Ajuste obtenidas mediante el método de algoritmos genéticos.

Graficando estos resultados, se obtiene:

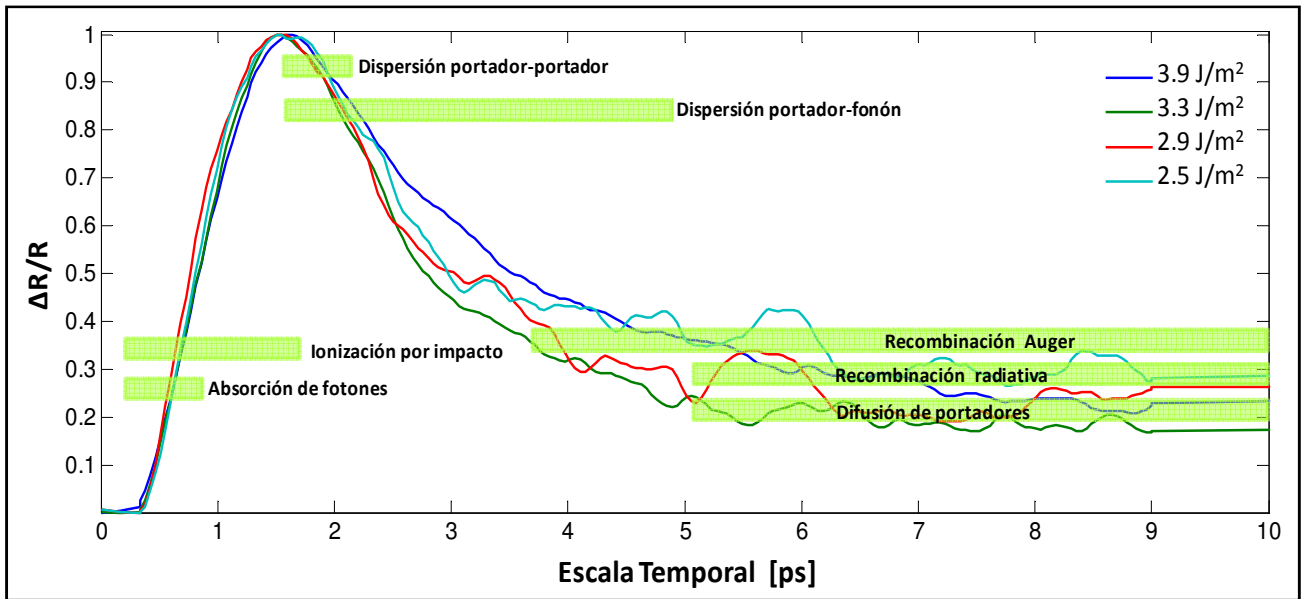


**Figura 5.4.** Gráfica de los tiempos de subida y relajación como función de las fluencias incidentes en el GaAs, obtenidos mediante el programa de ajuste de algoritmos genéticos (ec. 5.1).

De donde se observa que con el aumento de la fluencia incidente sobre el GaAs, el tiempo de subida o de excitación se incrementa, al igual que los tiempos de relajación. Con esto podemos comprobar lo que se observa en la figura 5.1, es decir, se tiene que para fluencias grandes los cambios en la señal de reflectancia aumentan debido a que se provoca una mayor excitación sobre el GaAs, los tiempos de subida se incrementan y el proceso de relajación es más suave tomándose un tiempo mayor para ello.

A partir de los resultados obtenidos mediante el método de ajuste (Tabla 5.2) podemos asociar los tiempos de los procesos físicos responsables del comportamiento observado.

La siguiente figura ilustra los principales procesos de excitación y relajación del electrón y el lattice estudiados en el capítulo tres, responsables de la señal de Reflectancia obtenida.



**Figura 5.5.** Procesos de excitación y relajación del electrón y el lattice en el semiconductor de GaAs, asociados a la curva de reflectancia obtenida. Las barras verdes indican la duración del proceso y su ubicación está asociada al comportamiento observado.

Para una mejor observación de los procesos asociados a la curva de Reflectancia Termo Transitoria obtenida, no se agrega la señal completa (como la observada en la figura 5.2). Sin embargo, se debe suponer que los procesos de Recombinación Auger, Recombinación radiativa y Difusión de portadores excitados continúan a lo largo de la señal restante, es decir, ocurren también para el intervalo de 10 a 180 ps ya que estos procesos llegan a tardar hasta el orden de nanosegundos.

## V.2 CONCLUSIONES

Se implementó la Técnica de Reflectancia Termo-Transitoria (TTR) en una superficie de GaAs utilizando un sistema láser de Ti:zaf comercial con anchos temporales de fs @ 800 nm y 76 MHz de frecuencia de repetición. Se obtuvieron los siguientes resultados:

- Se aplicó la técnica de SHG y TPA para realizar la caracterización de los pulsos de femtosegundos por medio de una Autocorrelación de Segundo Orden. Se obtuvieron respectivamente la Autocorrelación de Intensidad y la Autocorrelación de Interferencia.
- A partir de la Autocorrelación de Interferencia y de la medida del espectro, se concluye que los pulsos no presentan automodulación de fase o “Chirp”.
- Se midió, suponiendo pulsos con perfil Gaussiano, un ancho temporal de 229 fs.
- Variando la fluencia de bombeo de  $0.73 \text{ J/m}^2$  a  $3.9 \text{ J/m}^2$  se logró observar respuestas Termo Transitorias del orden de  $1 \times 10^{-6}$  hasta  $2 \times 10^{-4}$ . El tiempo de observación fue de hasta 180 ps con resolución por paso variable de 6 fs hasta 0.1 ps.
- A partir de los resultados obtenidos se aplicó un método de ajuste y se concluye que para el intervalo de fluencias de bombeo empleadas los cambios en los tiempos de subida van de 281 fs hasta 1.025 ps, los de relajación posteriores a la subida correspondiente a los procesos de dispersión (interacción portador-portador y portador-fonón) van de 576 fs a 825 fs y los de relajación donde ocurre principalmente la eliminación o retiro de portadores para comenzar alcanzar el equilibrio térmico entre los portadores y el lattice va de 1.347 ps a 5.478 ps.

- Se observó que, en términos generales, los tiempos de subida son mayores para fluencias más grandes y para aquellas menores a  $2 \text{ J/m}^2$  prácticamente no se observan cambios por lo que es necesario emplear fluencias de excitación mayores para la observación de cambios evidentes.
- A medida que la fluencia se incrementa, arriba de  $2 \text{ J/m}^2$ , dentro del intervalo de penetración (skin-depth), existirá una mayor densidad de energía depositada para un mismo volumen y mecanismos de interacción para la desexcitación, el resultado será un mayor tiempo de relajación.
- Se estima un proceso de relajación remanente del orden de microsegundos.
- Esta técnica puede emplearse en superficies metálicas, para ello es necesaria fluencias de excitación mayores a las reportadas en el presente trabajo.



## REFERENCIAS

1. D. Zeidler, S. Frey, K. -L. Kompa, and M. Montzkus, *Phy, Rev. Lett.* 64, (2001).

# APÉNDICE

## Apéndice A

### Efecto Kerr Óptico

El Efecto Kerr Óptico

Cuando la luz que incide en un material es suficientemente intensa se comienzan a manifestar una serie de fenómenos no lineales, en el sentido de que la respuesta óptica del material deja de depender linealmente del campo eléctrico aplicado. En tal caso la Polarización Eléctrica que se induce en el material es

$$P(t) = \chi_1 E(t) + \chi_2 E^2(t) + \chi_3 E^3(t) + \dots \quad (A.1)$$

Donde  $\chi_2$  es la susceptibilidad no lineal de segundo orden,  $\chi_3$  la de tercer orden y así sucesivamente. La respuesta no lineal del material es evidente cuando algún término  $\chi_i$ , a partir de  $i=2$ , es distinto de cero y la amplitud del campo eléctrico incidente es suficientemente grande como para hacerlo evidente.

La susceptibilidad de tercer orden  $\chi_3$  que aparece en la ecuación es responsable de una serie de efectos no lineales de tercer orden, entre ellos el de generación de tercer armónico (THG) y el efecto Kerr óptico. Este último es el que da lugar a dos fenómenos muy interesantes en el contexto de la generación de pulsos ultracortos: Autoenfocamiento (Self-Focusing) y Automodulación de fase (Self-Phase Modulation) [Boyd, 1991].

Cuando se tienen altas intensidades en un medio, el índice de refracción dependerá de una parte lineal y de otra no-lineal según

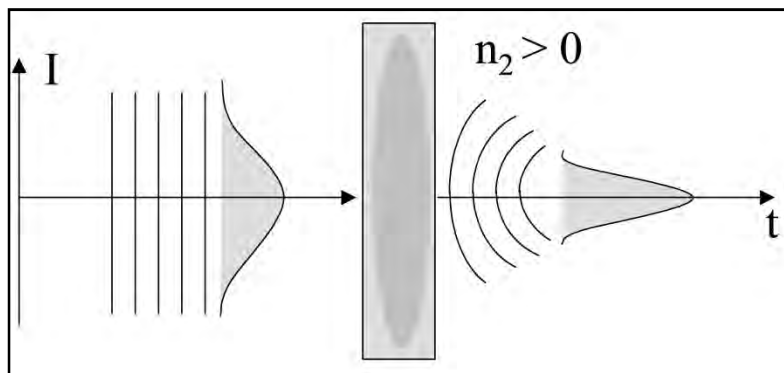
$$n(t) = n_0 + n_{21} \cdot I(t) \quad (A.2)$$

donde  $n_{21}$  es el coeficiente de Kerr, y que depende únicamente de las propiedades del material como

$$n_{21} = \frac{6\chi_3}{8\varepsilon_0cn_0} \quad (A.3)$$

donde  $n_0$  es el índice de refracción lineal,  $\chi_3$  la susceptibilidad dieléctrica de tercer orden del material,  $\varepsilon_0$  la constante de permisividad dieléctrica y  $c$  la velocidad de la luz en el vacío. En tal caso, el índice de refracción en un medio láser cambiará en función de la intensidad del pulso que se propaga. El cambio del valor del índice de refracción promediado en el tiempo, producido por una señal óptica, se conoce como *Efecto Kerr Óptico*.

Asumiendo que  $n_{21}$  es un valor positivo, la parte central del haz experimentará un índice de refracción mayor que en los extremos, donde la intensidad es menor. El resultado es que el haz tenderá a enfocarse en la dirección transversal a medida que se propaga por el material. A este efecto se le conoce como *Self-Focusing o Autoenfocamiento*.



**Figura A.1.** Autoenfocamiento producido por el Efecto Kerr Óptico.

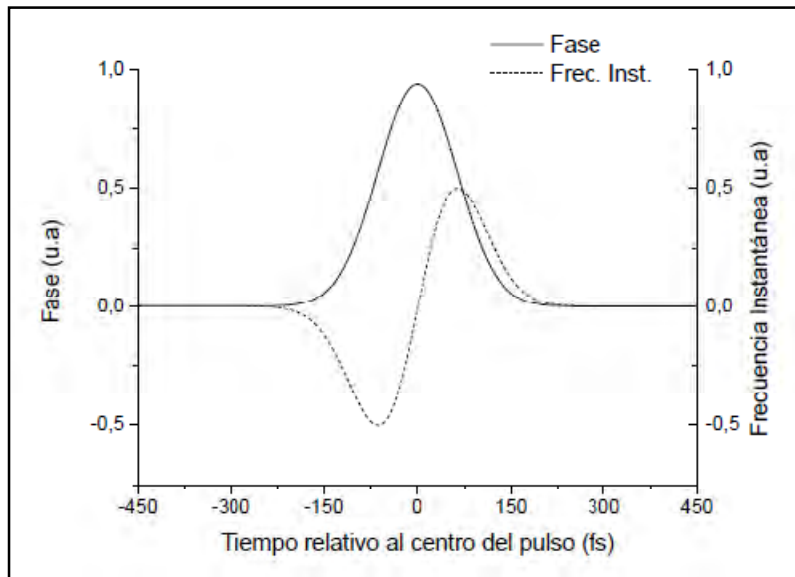
Si además asumimos que el efecto Kerr óptico es instantáneo, el índice de refracción cambiará a su vez con el perfil de intensidad del pulso, siendo máximo en la parte central de este. La variación del camino óptico  $\Delta n(t)L$  da lugar a un cambio de fase de

$$\Delta\phi(t) = \frac{2\pi L n_{21} I(t)}{\lambda} \quad (A.4)$$

que a su vez da lugar a un ensanchamiento espectral del pulso. Esto se conoce como Self-Phase Modulation (SPM). El incremento de la frecuencia instantánea que resulta de SPM se puede escribir como

$$\Delta\omega(t) = -\frac{2\pi L n_{21}}{\lambda} \left[ \frac{dI(t)}{dt} \right] \quad (A.5)$$

En la figura se muestra la representación gráfica de  $\Delta\omega(t)$  y  $\Delta\phi(t)$  para un pulso gaussiano de 150 fs.



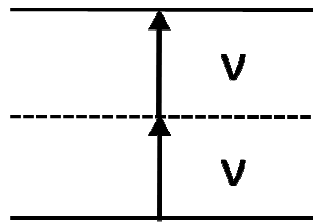
**Figura A.2.** Variación de la fase (línea continua) de la frecuencia instantánea (línea discontinua) debida a SPM, para un pulso gaussiano de 150 fs. Las unidades de la fase y la frecuencia instantánea son arbitrarias, y dependen del índice de refracción no lineal, de la longitud de onda central del pulso y de la longitud del material.

## Apéndice B

### Absorción de dos fotones y Generación de Segundo Armónico

#### B.1 ABSORCIÓN DE DOS FOTONES (TPA)

Los dispositivos semiconductores pueden proporcionar la respuesta cuadrática que necesita un autocorrelador cuando trabajan como absorbedores de dos fotones. En la figura B.1.1 se muestra el proceso que tiene lugar a nivel energético. Un primer fotón de energía  $h\nu$  es el encargado de excitar electrones de la banda de valencia a un nivel virtual de energía. El segundo fotón, también de energía  $h\nu$ , termina por llevar el electrón excitado a la banda de conducción. La respuesta resultante del semiconductor es una fotocorriente que depende cuadráticamente de la intensidad óptica incidente.



**Figura B.1.1.** Proceso de absorción de dos fotones.

La longitud de onda con que se trabajó era de alrededor de 800 nm. Un fotón a dicha longitud de onda no es lo suficientemente energético como para excitar electrones de la banda de valencia a la banda de conducción del GaAsP. Sin embargo, si la intensidad de la luz es muy grande, lo cual se consigue en régimen pulsado, entonces es posible excitar electrones de la banda de valencia a la banda de conducción mediante la absorción de dos fotones (700 – 1400 nm).

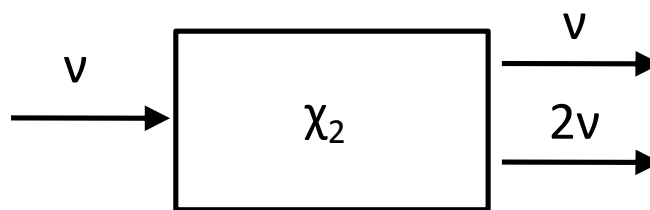
## B.2 Generación de Segundo Armónico

Cuando la luz que incide en un material es suficientemente intensa se comienza a manifestar una serie de fenómenos no lineales, en el sentido de que la respuesta óptica del material deja de depender linealmente con el campo eléctrico aplicado. En tal caso la Polarización Eléctrica que se induce en el material es:

$$P(t) = \chi_1 E(t) + \chi_2 E^2(t) + \chi_3 E^3(t) + \dots \quad (B.1)$$

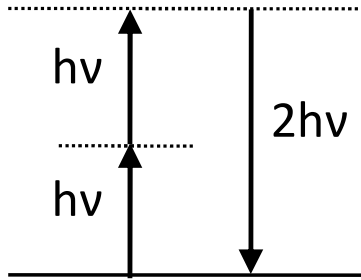
donde  $\chi_2$  es la susceptibilidad no lineal de segundo orden,  $\chi_3$  la de tercer orden y así sucesivamente. La respuesta no lineal del material es evidente cuando algún término  $\chi_i$ , a partir de  $i = 2$ , es distinto de cero y la amplitud del campo eléctrico incidente es suficientemente grande como para hacerlo evidente.

La susceptibilidad de segundo orden  $\chi_2$  es responsable del proceso de generación de segundo armónico (SHG), en el que la intensidad de la luz de segundo armónico generada aumenta cuadráticamente con la intensidad incidente del haz fundamental. La figura B.2.1 muestra la geometría básica del proceso de generación de segundo armónico [Boyd, 2002].



**Figura B.2.1.** Diagrama de bloques del proceso de generación de segundo armónico (SHG).

La figura B.2.2 es un esquema de lo que sucedería a nivel energético, donde dos fotones de energía  $h\nu$  se funden en el medio para dar lugar a un fotón de energía  $2h\nu$ .



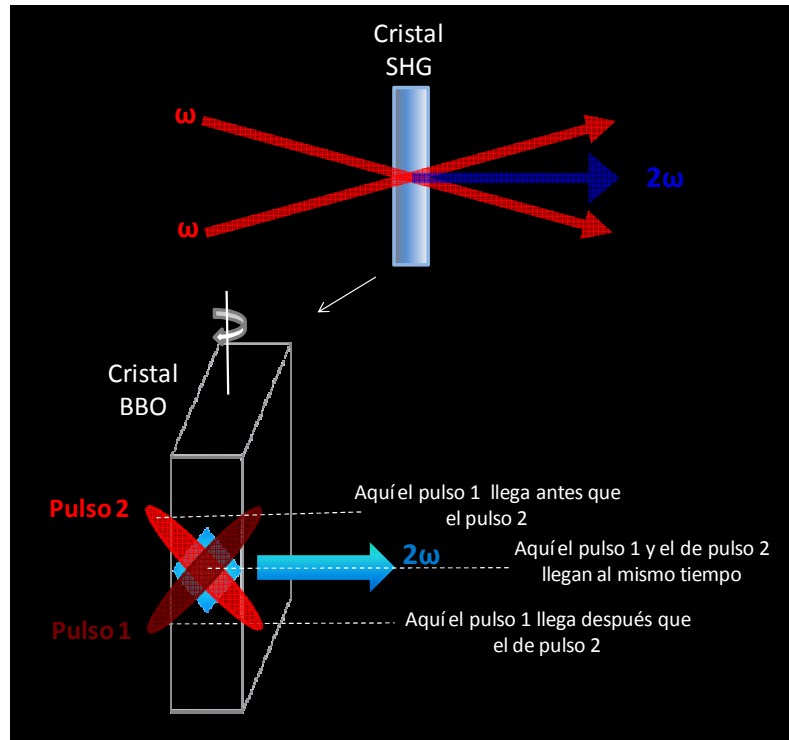
**Figura B.2.2.** Diagrama de los niveles energéticos que describen el proceso de SHG.

Bajo ciertas condiciones el proceso de SHG puede ser muy eficiente, llegando a convertir gran parte de la potencia de fundamental a segundo armónico. Esta eficiencia depende altamente de la fase relativa entre las ondas que interactúan en el cristal. Dicho proceso puede entenderse como la suma de dos fotones, y como tal, tiene que conservar tanto la energía como el momento. La conservación de la energía da lugar a  $h\nu_3 = h\nu_1 + h\nu_2$ . Teniendo en cuenta que para SHG  $\nu_1 = \nu_2$  es la frecuencia de las dos ondas de fundamental que inciden en el cristal y  $\nu_3$  la del segundo armónico, la relación que resulta es  $h\nu_3 = 2h\nu_1$ . Por otra parte, la conservación del momento implica que  $k_3 = k_1 + k_2$ , lo que se conoce también como condición de *phase-matching*. Cuando las dos ondas de fundamental tienen ambas la misma polarización (*phase-matching* de Tipo I), entonces  $k_1 = k_2$  y la condición de *phase-matching* se puede escribir como  $k_3 = 2k_1$ . Dicha relación es equivalente a  $n(\nu) = n(2\nu)$ , y que en principio no es posible conseguir teniendo en cuenta que en un material con dispersión normal el índice de refracción crece monótonamente con la frecuencia. Sin embargo, podemos hacer uso de la birrefringencia que muestran muchos cristales [Hecht, 1997], es decir, de la dependencia del índice de refracción con la dirección de propagación y/o polarización del haz incidente, para que  $n(\nu)$  sea igual, o prácticamente igual a  $n(2\nu)$ . En tal caso, la onda de segundo armónico se polariza siempre en la dirección que da un índice de refracción menor, para que la birrefringencia del material pueda compensar la dispersión. El *phase-matching* de Tipo II se da cuando las ondas del fundamental tienen distinta polarización, una ordinaria y la otra extraordinaria.

En la práctica existen dos métodos para conseguir que la condición de *phase-matching* se cumpla [Ledingham et al., 2000]. En primer lugar, el ángulo del cristal  $\theta$  con respecto a la dirección de propagación de los rayos incidentes permite un ajuste fino del *phase-matching*. Siguiendo en el caso de un cristal uniaxial negativo como el BBO (Beta-Barium Borate), la luz polarizada perpendicularmente al plano que contiene el vector de propagación  $k$  y el eje óptico del cristal experimenta un índice de refracción ordinario  $n_e$ , que depende del ángulo  $\theta$  entre el eje óptico y  $k$ . De esta forma, ajustando el ángulo del cristal es posible entonces obtener la condición de *phase-matching*.

El segundo método para obtener la condición de *phase-matching* con un cristal SHG, depende de la birrefringencia del cristal la cual es función de la temperatura, este método es el utilizado en el láser de Nd: YNO<sub>4</sub> (Nd: Vanadate) en el que un cristal SHG de LBO (Lithium Triborate), es calentado a 148°C para que la generación de segundo armónico a 532 nm sea máxima, lo cual se logra fijando el ángulo  $\theta$  entre  $k$  y el eje óptico del cristal a 90°, mientras se ajusta la condición de *phase-matching* variando la temperatura.





**Figura B.2.3.** La señal de segundo armónico en la frecuencia  $2\omega$  es generada por el cristal de BBO, orientado para el *phase-matched* tipo I SHG para dos haces. El cruce de los frentes de onda del pulso induce el proceso de segundo orden.

## REFERENCIAS

1. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Cap. 1 (2002).
2. E. Hecht, *Optics* (Addison – Wesley Pub. Co., 3a ed. 1997), Chap. 8.
3. K. W. D. Ledingham, I. Spencer, T. McCanny, R. P. Singhal, M. I. K. Santala, E. Clark, I. Watts, F. N. Beg, M. Zepf, Krushelnick, M. Tatarakis, A. E. Dangor, P. A. Norreys, R. Allot, D. Neely, R. J. Clark, A. C. Machacek, J. S. Wark, A. J. Cresswell, D. C. W. Sanderson, and J. Magill, *Photonuclear physics when a multiterawatt laser pulse interacts with solid targets*, *Physical Review Lett.* **84**, 899 – 902 (2000).

# Apéndice C

## Lock-In y Control de Instrumentos

### C.1 LOCK IN

El amplificador de Lock-In es el modelo SR810 de Stanford Research Systems y opera junto con un chopper opto-mecánico. Este amplificador puede medir señales AC de unos pocos nanovoltios incluso en situaciones en las que el ruido es mucho mayor que la propia señal.

Los amplificadores del Lock-in utilizan una técnica conocida como detección de fase sensitiva para seleccionar la componente de la señal a una frecuencia y fase de la referencia específica. Las señales de ruido en las frecuencias con excepción de la frecuencia de la referencia se rechazan y no afectan a la medida.

Para entender el funcionamiento de éste consideremos un ejemplo. Supongamos que se desea medir una señal sinusoidal de 10 nV cuya frecuencia es de 10 kHz. Por lo que se requiere una amplificación, sea éste un amplificador de bajo ruido con  $5 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$  de ruido de entrada, un ancho de banda de 100 kHz y una ganancia típica de 1000. La relación señal a ruido (SNR) resultara entonces:

$$SNR = \frac{10 \text{ nV} \times 1000}{\frac{5 \text{ nV}}{\sqrt{\text{Hz}}} \times \sqrt{100 \text{ kHz}} \times 1000} = \frac{10 \text{ } \mu\text{V}}{1.6 \text{ mV}} \quad (C.1)$$

Con lo que está claro que no tendríamos mucho éxito en medir la señal de salida a menos que seleccionemos la frecuencia de interés.

Si seguimos el amplificador con un filtro pasa banda con  $Q=100$  y centrado a 10 kHz. Entonces el ancho de banda de ruido pasa a ser de 100 Hz ( $10 \text{ kHz}/Q$ ) y la nueva SNR se calcularía como

$$SNR = \frac{10 \text{ nV} \times 1000}{\frac{5 \text{ nV}}{\sqrt{\text{Hz}}} \times \sqrt{100 \text{ Hz}} \times 1000} = \frac{10 \text{ } \mu\text{V}}{50 \text{ } \mu\text{V}} \quad (\text{C.2})$$

El ruido sigue siendo mucho mayor que la señal que queremos detectar. Supongamos ahora que en lugar del filtro utilizamos un detector sensible a la fase (PSD), capaz de detectar la señal de 10 kHz en un ancho de banda de 0.01 Hz. La relación señal a ruido resultante es

$$SNR = \frac{10 \text{ nV} \times 1000}{\frac{5 \text{ nV}}{\sqrt{\text{Hz}}} \times \sqrt{0.01 \text{ Hz}} \times 1000} = \frac{10 \text{ } \mu\text{V}}{0.5 \text{ } \mu\text{V}} = 20 \quad (\text{C.3})$$

De esta forma sí es posible realizar la medida, incluso con una buena SNR. El amplificador de lock-in SR830 funciona igualmente con un amplificador y un detector sensible a la fase (PSD). Las medidas del Lock-in requieren así una frecuencia de referencia. Típicamente un experimento es excitado en a una frecuencia fija (de un oscilador o de un generador de función) y el Lock-in detecta la respuesta del experimento en la frecuencia de referencia. En el diagrama abajo, la señal de referencia es una onda cuadrada a frecuencia  $\omega_r$ . Si la función seno a la salida del generador de función se utiliza para excitar el experimento, la respuesta podrá ser la señal de forma de onda mostrada abajo. La señal es  $V_s \sin(\omega_r t + \theta_s)$  donde  $V_s$  es la amplitud de la señal.

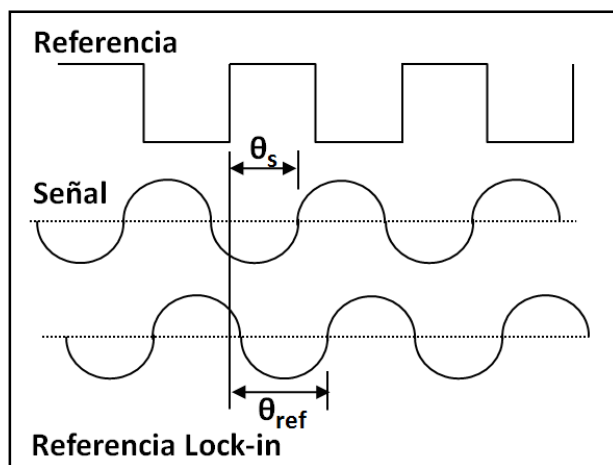


Figura. C.1.1. Señal de un Lock-In.

El SR810 genera su propia onda de seno, mostrada como la referencia del lock-in abajo. La referencia del lock-in es  $V_L \text{sen}(\omega_L t + \theta_L)$ .

El SR810 amplifica la señal y después la multiplica por la referencia del lock-in usando un detector o un multiplicador sensible a la fase. La salida del PSD es simplemente el producto de dos ondas senoidales.

$$V_{PSD} = V_s \text{sen}(\omega_r t + \theta_s) \times V_L \text{sen}(\omega_L t + \theta_L) \quad (C.4)$$

donde  $V_s(t)$  es la señal que deseamos medir y  $V_L(t)$  es la señal de lock-in. Desarrollando la ecuación (4) se llega a

$$V_{PSD} = \frac{1}{2} V_s V_L \cos[(\omega_r - \omega_L)t + \theta_s - \theta_L] - \frac{1}{2} V_s V_L \cos[(\omega_r + \omega_L)t + \theta_s + \theta_L] \quad (C.5)$$

de donde vemos que la tensión  $V_{PSD}(t)$  está formada por dos señales AC, una a la frecuencia  $(\omega_r - \omega_L)$  y la otra a  $(\omega_r + \omega_L)$ .

Si hacemos que  $\omega_L$  sea igual a  $\omega_s$  entonces tendremos una de las señales a  $2\omega_s$ , mientras que la otra será una señal de continua. Con un filtro paso bajo apropiado la tensión a la salida del PSD será

$$V_{PSD} = \frac{1}{2} V_s V_L \cos(\theta_s - \theta_L) \quad (C.6)$$

obteniéndose una señal proporcional a  $V_s \cos(\theta_s - \theta_L)$ . Para eliminar la dependencia con la fase tan sólo es necesario añadir un segundo PSD con la señal de lock-in desfasada  $90^\circ$ , en cuyo caso obtendremos una señal proporcional a  $V_s \sin(\theta_s - \theta_L)$ . La tensión medida calculada como

$$V_M \propto \sqrt{V_{PSD1}^2 + V_{PSD2}^2} \propto V_s \quad (C.7)$$

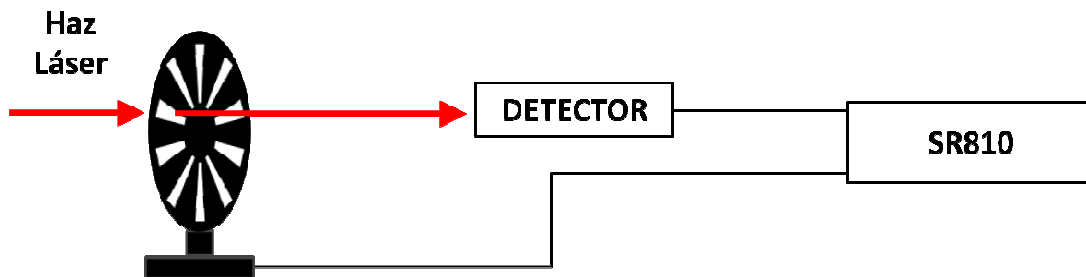
será directamente proporcional a  $V_s$ , independientemente de las fases  $\theta_s$  y  $\theta_L$ .

En nuestro caso el SR810 construye la señal de lock-in a partir de la señal de referencia del chopper.



**Figura C.1.2.** Vista frontal del Chopper opto-mecánico.

La figura 3 muestra los distintos elementos que forman el sistema de detección. El chopper se coloca cortando el haz, de modo que la luz únicamente pasa cuando encuentra una ranura.



**Figura C.1.3.** Diagrama de bloques del sistema de detección cuando se utiliza el amplificador de lock-in SR810.

El detector verá una señal con una frecuencia que depende de la velocidad a la que gira el chopper y del número de ranuras de éste. Así mismo el chopper envía una señal de

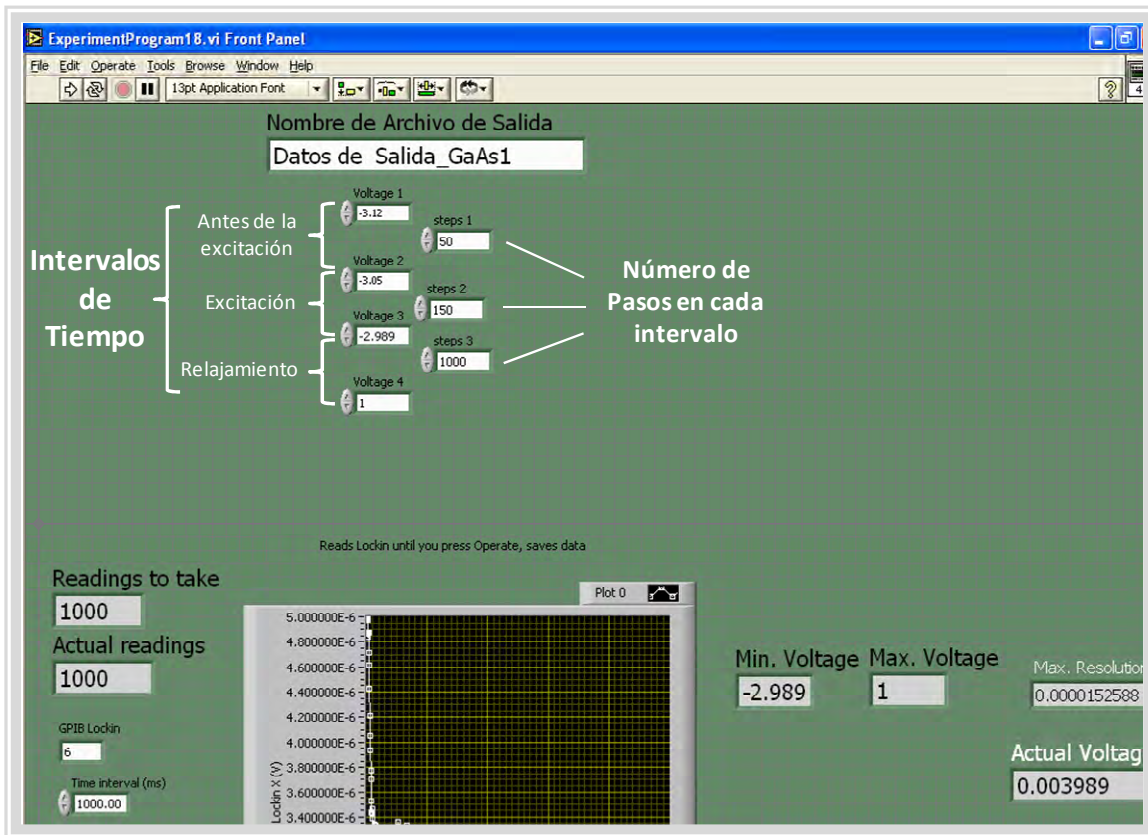
referencia al amplificador de lock-in, exactamente a la misma frecuencia de 2000 Hz, a partir de la cual se genera la señal de lock-in. Finalmente la medida se obtiene tal y como hemos visto anteriormente.

## **C.2 Control de Instrumentos**

Una parte fundamental del montaje del sistema es la automatización y control de los instrumentos desde el ordenador (PC). Los programas escritos en LabView permiten modificar cualquier parámetro de entrada al sistema así como analizar los resultados obtenidos en la pantalla de la computadora. Mediante una tarjeta de adquisición de datos es posible controlar y medir señales a través de sus puertos de entrada y salidas tanto analógicas como digitales.

El lenguaje de programación Labview suprime el código fuente de los programas tradicionales por elementos gráficos que representan y realizan los diferentes comandos. Se trata así de un lenguaje visual y modular, diseñado para controlar instrumentos de laboratorio.

En nuestro caso, un conjunto de sub-programas realizan las funciones del movimiento del espejo que produce el retraso mediante una automatización del motor de pasos de éste, comenzando con la inicialización donde se definen parámetros como posición inicial, el número de pasos por etapa, intervalo de voltajes de salida de la tarjeta (definición de intervalos temporales o de posición de la platina), tiempo de retraso entre cada medición.



**Figura C2.1.** Interfaz gráfica del programa de adquisición de datos.

La calibración del movimiento de la platina fue realizada previamente a través de la autocorrelación de interferencia de los pulsos utilizando un fotodiodo de GaAsP por medio del proceso de absorción de dos fotones [Reid et al., 1998].

La medida fue realizada con un arreglo interferométrico similar al descrito previamente, con la diferencia que en este caso se aplicó una alineación tipo colineal entre ambos haces. Los dos haces fueron enfocados en el fotodetector y a medida que se fue barriendo la posición de la platina, la señal de Autocorrelación fue grabada. [Diels, 1995]

La resolución de las franjas de interferencia permitió la calibración directa del desplazamiento de la platina, tal como se describió en el capítulo I de ésta tesis.

## REFERENCIAS

1. <http://www.thinksrs.com/downloads/PDFs/Manuals/SR810m.pdf>, 3-1,2.
2. D.T. Reid, W. Sibbett, J.M. Dudley, L.P. Barry, B. Thomsen, J. D. Harvey, *Appl. Opt.* 37 (1998) 8142.
3. J. C. Diels, W. Rudolph , *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, Primera Edición. Academic Press (1995).